

**МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ ИМЕНИ
М.В.ЛОМОНОСОВА**

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

Степанов Евгений Александрович

**Формирование предельно коротких импульсов среднего
инфракрасного диапазона и их применение для нелинейной
спектроскопии полупроводников на основе генерации высших
оптических гармоник**

01.04.21 – Лазерная физика

ДИССЕРТАЦИЯ
на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
кандидат физико-математических наук
Андрей Борисович Федотов

Москва – 2022 г.

Оглавление

Введение	4
Глава 1. Методы формирования предельно коротких импульсов в среднем инфракрасном спектральном диапазоне.....	16
1.1 Техника генерации сверхкоротких импульсов в среднем инфракрасном диапазоне.....	17
1.2 Нелинейно-оптические методы формирования однопериодных импульсов в среднем инфракрасном диапазоне.....	27
1.3 Сверхкороткие импульсы в задачах нестационарной нелинейно-оптической спектроскопии и анализа сверхбыстрой динамики носителей заряда в твердых телах	33
Глава 2. Экспериментальная техника и методика измерений	39
2.1 Генерация перестраиваемых сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона микроджоулевого уровня энергии на основе многофункциональной фемтосекундной Ti:Sapphire лазерной системы	39
2.2 Фемтосекундная иттербиевая килогерцовая лазерная система для генерации лазерных импульсов в области 3.1-3.7 мкм с энергией до сотен микроджоулей	47
2.3 Методы XFROG и SPIDER характеристики предельно коротких импульсов в ближнем и среднем спектральном диапазоне длительностью порядка одного периода поля	54
Глава 3. Источник перестраиваемых микроджоулевых предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона на основе компрессии и самокомпрессии импульсов накачки в полупроводниках.....	64
3.1 Генерация перестраиваемых сверхкоротких импульсов и формирование суперконтинуума в режимах нормальной и аномальной дисперсии полупроводникового кристалла арсенида галлия	65
3.2 Формирование предельно короткого импульса в среднем инфракрасном диапазоне длительностью порядка одного периода поля в области нулевой дисперсии групповых скоростей арсенида галлия.....	70

Глава 4. Нелинейно-оптические преобразования импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона в полых антирезонансных фотонно-кристаллических волноводах для формирования мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких импульсов	77
4.1 Генерация мультиоктавного суперконтинуума в полном фотонно-кристаллическом волноводе при накачке сверхкороткими импульсами на центральной длине волны 3.2 мкм	77
4.2 Формирование и полная характеристика импульсов ближнего инфракрасного диапазона длительностью порядка одного периода поля	96
Глава 5. Нелинейно-оптическая спектроскопия на основе генерации высших оптических гармоник с использованием предельно коротких импульсов ближнего и среднего ИК диапазона	101
5.1 Методика нелинейно-оптической спектроскопия на основе генерации высших оптических гармоник поликристаллического селенида цинка.....	101
5.2 Полностью оптический анализ зонной структуры и сверхбыстрой динамики электронов в монокристаллическом полупроводниковом материале на основе генерации высших оптических гармоник	112
Заключение	124
Приложение: список используемых аббревиатур и сокращений.....	126
Литература	127

Введение

Актуальность работы

С момента начала «лазерной эры» одной из основных тенденции ее развития стало уменьшение длительности лазерных импульсов [1,2], что обеспечивает достижение более высоких пиковых мощностей и открывает возможность использования подобных инструментов для изучения всё более быстрых процессов и явлений в практически необъятном спектре задач науки и технологий. Использование сверхкоротких лазерных импульсов стало одним из основных направлений развития нелинейно-оптической спектроскопии [3,4], давая возможность реализации высоких эффективностей преобразования и беспрецедентно высокого временного разрешения. При этом в задачах спектроскопии обычно требуются импульсы с умеренными уровнями энергий от нано- до сотен микроджоулей. С другой стороны, современные лазерные технологии позволяют эффективно усиливать сверхкороткие лазерные импульсы, создавая электромагнитные поля с напряженностью на 5-6 порядков превосходящей внутриатомное поле, что обеспечивает беспрецедентное расширение экспериментальных горизонтов физики высоких энергий и релятивистской электродинамики [5].

Одной из основных современных тенденций развития оптики сверхкоротких импульсов является расширение диапазона их генерации относительно ближнего инфракрасного диапазона (где присутствуют высокотехнологичные Ti:Sapphire системы с центральной длиной волны 800 нм) как в более коротковолновую, так и в длинноволновую области. Предельно короткие импульсы среднего инфракрасного диапазона (с центральной длиной волны 2-10 мкм) с длительностью порядка менее одного периода поля представляют собой важнейший инструмент исследования сверхбыстрых процессов [6–8]. Благодаря тому, что энергия фотона в этом диапазоне частот меньше ширины запрещённой зоны большинства технологически значимых твёрдых полупроводниковых материалов, такие предельно короткие импульсы дают возможность регистрировать и управлять сверхбыстрой динамикой электронов не только на поверхности, но и в объеме полупроводника, открывая путь к прецизионному управлению физическими процессами в твёрдых телах [9–20], что определяет мощный импульс к развитию сверхбыстрой (петагерцовой) оптоэлектроники [21–25]. Квадратичная зависимость ponderomotorной энергии электрона в поле

электромагнитного импульса от центральной длины волны приводит к возникновению более мощных фотоиндуцированных токов носителей заряда, и, следовательно, к более сильному и широкополосному нелинейному оптическому отклику как в газах, так и в твёрдых телах [14–17]. Импульсы среднего инфракрасного диапазона позволяют сформировать излучение оптических гармоник в газах необычайно высокого порядка [26], и далее с их помощью возможна реализация прецизионного анализа сверхбыстрой динамики электронных волновых пакетов в разнообразных физических, химических и биологических системах [11,12,15,16,18,25]. Благодаря тому, что интенсивность излучения, необходимая для достижения релятивистского режима взаимодействия поля с веществом в базовом приближении [26] обратно пропорциональна квадрату длины волны, мощные предельно короткие импульсы среднего инфракрасного диапазона открывают пути к развитию сверхбыстрой фотоиндуцированной релятивистской электродинамики [27,28].

Степень разработанности темы исследования

Генерация импульсов длительностью около одного периода поля на центральной длине волны накладывает, в соответствии с теоремой Фурье, высокие требования на спектральную ширину излучения и возможность точного управления фазой всех спектральных компонент. Уже в конце 1980-х годов была показана возможность генерации спектрально ограниченных импульсов длительностью в несколько периодов поля в видимом диапазоне частот [29], а к настоящему времени развиты и широко применяются различные методы формирования предельно коротких импульсов длительностью порядка одного или нескольких периодов поля в ближнем инфракрасном диапазоне, включающие в себя непосредственную генерацию в осцилляторе [30,31], спектральное уширение в волноводной геометрии с последующей компенсацией фазового набегу [32–34], спектрально-временное преобразование в режиме самокомпрессии в процессе филаментации в благородных газах [35–38], генерацию предельно коротких импульсов в процессе широкополосного оптического параметрического усиления [39,40], когерентный синтез предельно коротких волновых форм из нескольких импульсов различных спектральных диапазонов [41]. Распространение методов генерации и компрессии предельно коротких импульсов в области более длинных волн, в частности в средний инфракрасный спектральный

диапазон, до сих пор остаётся актуальной задачей, для решения которой требуется реализация новых идей и решений - прямая генерация ограничена отсутствием подходящих широкополосных лазерных материалов, а волноводные устройства должны обладать уникальной комбинацией свойств, объединяя в себе предельно низкие потери, определённый специфичный дисперсионный профиль и высокую оптическую нелинейность. Примерами волоконных структур, обладающих такой уникальной комбинацией свойств и позволяющих получать предельно короткие импульсы среднего инфракрасного диапазона с энергиями до сотен микроджоулей, являются полые фотонно-кристаллические волокна с оболочкой в форме решётки кагоме [42,43], а также антирезонансные волокна с оболочкой в виде одного кольца капилляров [44,45]. Для эффективной нелинейно-оптической компрессии импульсов, обладающих меньшей энергией (до десятка микроджоулей), реализуются иные подходы, связанные с применением материалов, обладающих большей нелинейностью по сравнению с газами. Поэтому начиная с пионерской работы [46], в настоящее время активно развиваются методики нелинейного преобразования и компрессии сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона в твердых телах. При этом основные трудности в масштабировании по энергии и длине волны относительно газовых сред связаны со сложной пространственно-временной солитонной динамикой волновых пакетов в твердых телах. Изложенные современные тенденции развития методов генерации и перспективы использования предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона определили направление выполненных и представленных в диссертационной работе исследований.

Цели и задачи диссертационной работы

Развитие существующих и реализация новых методов формирования лазерных импульсов длительностью порядка одного периода поля в среднем и ближнем инфракрасном диапазоне (2 - 10 мкм) с энергиями от единиц до нескольких десятков микроджоулей. Эти методы включают использование нелинейно-оптических преобразований фемтосекундных импульсов в твердотельных и газовых средах, в том числе с применением волоконных технологий на основе широкополосных полых фотонно-кристаллических световодов. Получаемые импульсы используются для реализации новых методик нелинейной спектроскопии на основе генерации высших

оптических гармоник для зондирования сверхбыстрой электронной динамики и энергетической структуры полупроводников и диэлектриков, а также реализации двумерной инфракрасной Фурье-спектроскопии.

Научная новизна

Найдены новые режимы компрессии фемтосекундных импульсов в диапазоне 4 - 8 мкм в полупроводниковом кристалле арсенид галлия, позволяющие формировать предельно короткие импульсы с длительностью порядка одного периода поля на центральной длине волны. В условиях нормальной (4 - 6.8 мкм) и аномальной (6.8 - 8 мкм) дисперсии групповых скоростей материала были получены импульсы менее двух периодов поля. При преобразовании импульсов накачки вблизи нуля дисперсии групповых скоростей в области 6.8 мкм происходит эффективная генерация суперконтинуума и формирование импульсов длительностью менее одного периода поля на центральной длине волны 6.8 мкм с пиковой мощностью около 50 МВт.

Впервые экспериментально продемонстрирована возможность генерации мультиоктавного суперконтинуума, простирающегося от 0.3 до 4.2 мкм, при нелинейном распространении 200-фс импульса накачки на центральной длине волны 3.2 мкм в полом антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе, заполненном аргоном при давлении в несколько атмосфер. Проведенный анализ показал, что основным фактором, позволяющим получить столь протяженный спектр и сформировать импульсы с длительностью менее половины цикла поля, является солитонная самокомпрессии. Методика прямого измерения светового поля X-SEA-F-SPIDER позволила измерить спектрально-временную структуру импульсов, формируемых в этом режиме импульсов на центральной длине волны 2.1 мкм. Их длительность составляет 6.6 фс по полувысоте, что соответствует одному колебанию поля, а пиковая мощность импульса достигает 1.5 ГВт.

Реализован полностью оптический метод зондирования зонной структуры полупроводника на основе генерации высших оптических гармоник от сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона. При зондировании селенида цинка импульсами с центральной длиной волны 5.0 – 6.7 мкм обнаружено, что при интенсивностях поля накачки выше 0.1 ТВт/см² реализуется механизм генерации четных и нечетных оптических гармоник, не описываемый стандартной теорией возмущений.

Взаимодействие поля с носителями заряда в полупроводнике в таком режиме позволило различить внутри- и межзонные механизмы генерации гармоник, а также восстановить профиль зоны проводимости селенида цинка вдоль направления ГЛ, обладающего наибольшей нелинейностью. Продemonстрировано, что поляризационные карты гармоник высшего порядка позволяют полностью охарактеризовать анизотропные свойства петагерцовых фотоиндуцированных токов, возникающих в монокристаллическом полупроводниковом материале (селенида цинка) под действием сверхкоротких импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона.

Зарегистрирован спектр высших оптических гармоник вплоть до 16-го порядка от импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона с длинами волн от 5.0 до 6.7 мкм, сгенерированный в поликристаллическом образце селенида цинка и простирающийся в диапазоне 250 - 400 нм, что соответствует энергии фотона больше ширины запрещённой зоны ($\Delta_0 \approx 2.8$ эВ).

Научная и практическая значимость работы состоит в разработке новых методов формирования предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона длительностью около одного периода поля на центральной длине волны 3.2 мкм с энергией порядка 10-100 мкДж, а также в диапазоне длин волн 4-8 мкм с энергией порядка единиц микроджоулей для широкого класса актуальных задач лазерной физики, в том числе для сверхбыстрого анализа и управления динамикой носителей заряда в твёрдых телах и развития петагерцовой электроники.

Методология и методы исследования

В диссертационной работе используются экспериментальный и теоретический подход к исследованию нелинейно-оптических процессов, приводящих к формированию предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона, и генерации оптических гармоник высокого порядка в твёрдых телах под действием таких импульсов. Экспериментальный метод заключался во всестороннем анализе спектральных, временных и пространственных характеристик исследуемого излучения при помощи инструментов, в том числе и оригинальных, описанных в тексте диссертации. Измерения проводились при различных параметрах нелинейно-оптической среды и исходного импульса накачки. Для теоретического анализа полученных в эксперименте результатов

применялось численное моделирование, позволившее определить вклад отдельных процессов и явлений в общую картину пространственно-временной эволюции исходного излучения, приводящей к формированию предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона, и генерации высших оптических гармоник в полупроводниковом материале.

На защиту выносятся следующие положения:

1. Спектрально временная эволюция фемтосекундных импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона в кристалле арсенида галлия в условиях нормальной (4 - 6.8 мкм) и аномальной (6.8 - 8 мкм) дисперсии групповых скоростей материала позволяет сформировать предельно короткие импульсы с длительностью менее двух периодов поля.
2. Режим нелинейно-оптического преобразования от импульсов накачки в области 6.8 мкм в условиях сверхширокого фазового синхронизма вблизи нуля дисперсии групповых скоростей кристаллов арсенида галлия приводит к генерации суперконтинуума, индуцированного четырёхволновым процессом, связывающим вызванных ионизацией высокочастотные спектральные компоненты с длинноволновой частью спектра импульсов, что обеспечивает возможность формирования импульса длительностью менее одного периода поля с пиковой мощностью до 50 МВт.
3. Сочетание параметров структуры полого антирезонансного фотонно-кристаллического волновода и давления газа внутри него позволяет обеспечить широкополосную аномальную дисперсию при волноводном распространении импульсов накачки среднего и ближнего инфракрасного диапазона с энергиями до несколько сотен микроджоулей, что приводит к эффективной генерации мультиоктавного суперконтинуума в режиме солитонной самокомпрессии и сжатию импульсов до длительностей одного и менее периода оптического поля, что соответствует гигаваттному уровню пиковой мощности.
4. Методика генерации высших оптических гармоник от сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона позволяет осуществить полностью оптическое зондирование зонной структуры и динамики носителей заряда в полупроводниковых материалах. Генерация чётных и нечетных оптических

гармоник в селениде цинка от микроджоулевых импульсов с центральной длиной волны 5.0 – 6.7 мкм при интенсивностях выше 0.1 ТВт/см² проходит в не описываемым теорией возмущений режиме. Высокая напряженность поля 0.1 В/Å, реализуемая в таком непertурбативном режиме, возбуждает нелинейную колебательную динамику электрона в пределах всей зоны Бриллюэна, что позволяет разделить внутри- и межзонные механизмы генерации гармоник высоких порядков и получить информацию о топологии зонной структуры полупроводника.

Апробация результатов

Основные результаты диссертационной работы были представлены Степановым Е.А. на научных семинарах кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова, а также на российских и международных научных конференциях:

1. Savitskii I.V., **Stepanov E.A.**, Voronin A.A., Lanin A.A., Li Y., Hu M., Ivanov A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M., «High order harmonics generation in ZnS dielectric plate pumped by few cycles near infrared pulses», *IV International Conference «Photonics and Quantum Technologies»*, December 19–21, 2021, Kazan, Russia (устный доклад)
2. **Степанов Е.А.**, Жданов А.Н., Иванов Г.Д., Ланин А.А., Федотов И.В., Федотов А.Б., Желтиков А.М., «Динамика колебательных мод изомеров октакарбонила дикобальта», *IV Международная конференция «Фотоника и Квантовые Технологии»*, 19 – 21 декабря 2021, Казань, Россия (устный доклад)
3. Савицкий И.В., **Степанов Е.А.**, Ланин А.А., Иванов А.А., Федотов А.Б., Желтиков А.М., «Генерация гигаваттных однопериодных фазо-стабилизированных импульсов в полых антирезонансных волноводах», *IV Международная конференция «Фотоника и Квантовые Технологии»*, 19 – 21 декабря 2021, Казань, Россия (устный доклад)
4. **Stepanov E.A.**, Voronin A.A., Meng F., Mitrofanov A.V., Sidorov-Biryukov D.A., Rozhko M.V., Glek P.B., Li Y., Fedotov A.B., Pugzlys A., Baltuska A., Wang C., Hu M., Zheltikov A.M., «Multioctave Supercontinua from Shock-Coupled Soliton Self-Compression in Hollow-Core Antiresonance-Guiding PCF», *CLEO/EUROPE-EQEC 2019*, 23-27 June 2019, ICM Munich, Germany (устный доклад)

5. **Stepanov E.A.**, Lanin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M., «Electron band structure analysis by intraband high-harmonic generation», *8th International Symposium "Modern Problems of Laser Physics" (MPLP-2018)*, 25-31 августа 2018, Новосибирск, Россия (стендовый доклад)
6. **Stepanov E.A.**, Lanin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M., «Nonlinear Spectroscopy with Few-Cycle Pulses in Mid-Infrared: Mapping the Electron Band Structure by Intraband High-Harmonic Generation in Solids», *Международная школа "Нелинейная фотоника"*, 21-24 августа 2018 г., НГУ, Новосибирск, Россия (стендовый доклад)
7. **Stepanov E.A.**, «Few-Cycle Tunable Mid-Infrared Pulses for Advanced Nonlinear Spectroscopy», Workshop and School for Young Scientists on Advanced Photonics and Quantum Optics, 2-5 августа 2017, Москва, МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия (устный доклад)
8. **Степанов Е.А.**, Ланин А.А., Федотов А.Б., Желтиков А.М., «Nonlinear Spectroscopy with Few-Cycle Pulses in Mid-Infrared: Mapping the Electron Band Structure by Intraband High-Harmonic Generation in Solids», *CLEO Europe & EQEC 2017*, 25-29 июня 2017, Мюнхен, Германия (устный доклад)
9. **Stepanov E.A.**, Lanin A.A., Sidorov-Biryukov D.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M., «Spectral-temporal pulse construction for optimal nonlinear Raman brain imaging», *The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO 2016) / The Lasers, Applications, and Technologies Conference (LAT 2016)*, 26-30 сентября 2016, Минск, Беларусь (устный доклад)
10. **Степанов Е.А.**, Ланин А.А., Воронин А.А., Федотов А.Б., Жёлтиков А.М., «Формирование предельно коротких лазерных импульсов в среднем инфракрасном диапазоне в кристалле арсенида галлия», *V Международный симпозиум по когерентному оптическому излучению полупроводниковых соединений и структур*, 23-26 ноября 2015, Москва – Звенигород, Россия (устный доклад)

Материалы диссертационной работы опубликованы в 13 печатных работах в таких рецензируемых журналах, входящих в базы данных Web of Science, Scopus, RSCI и Перечень изданий МГУ, в том числе Scientific Reports, Physical Review Letters, Optica, Optics Letters, Physical Review A, Успехи физических наук, Письма в "ЖЭТФ" и Квантовая электроника:

1. И.В. Савицкий, **Е.А. Степанов**, А.А. Ланин, А.А. Воронин, Е.Е. Серебрянников, А.А. Иванов, М. Ху, Я. Ли, А.Б. Федотов, А.М. Желтиков, «Измерение временной структуры поля и фазы несущей однопериодных импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона», *Письма в "Журнал экспериментальной и теоретической физики"*, **115**(7):437–443 (2022)
2. **E.A. Stepanov**, A.A. Voronin, F. Meng, A.V. Mitrofanov, D.A. Sidorov-Biryukov, M.V. Rozhko, P.B. Glek, Y. Li, A.B. Fedotov, A. Pugžlys, A. Baltuška, B. Liu, S. Gao, Y. Wang, Pu Wang, M. Hu, A.M. Zheltikov, «Multioctave supercontinua from shock-coupled soliton self-compression», *Physical Review A*, **99**:033855 (2019)
3. A.A. Lanin, **E.A. Stepanov**, A.V. Mitrofanov, D.A. Sidorov-Biryukov, A.B. Fedotov, A.M. Zheltikov, «High-order harmonic analysis of anisotropic petahertz photocurrents in solids», *Optics Letters*, **44**(8):1888–1891 (2019)
4. **Е.А. Степанов**, А.Н. Жданов, И.В. Савицкий, П.Б. Глек, А.А. Ланин, А.Б. Федотов, А.М. Желтиков, «Широкополосная двумерная спектрохронография с использованием сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона», *Квантовая электроника*, **52**(3):227-232 (2022)
5. A.V. Mitrofanov, D.A. Sidorov-Biryukov, P.B. Glek, M.V. Rozhko, **E.A. Stepanov**, A.D. Shutov, S.V. Ryabchuk, A.A. Voronin, A.B. Fedotov, A.M. Zheltikov, «Chirp-controlled high-harmonic and attosecond-pulse generation via coherent-wake plasma emission driven by mid-infrared laser pulses», *Optics Letters*, **45**(3):750–753 (2020)
6. A.V. Mitrofanov, A.A. Voronin, D. A. Sidorov-Biryukov, M.V. Rozhko, **E. A. Stepanov**, A. B. Fedotov, V. Shumakova, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. Baltuška, A. M. Zheltikov, «Mapping anomalous dispersion of air with ultrashort mid-infrared pulses», *Scientific reports*, **7**:2103–2103 (2017).
7. A.A. Lanin, **E.A. Stepanov**, A.B. Fedotov, A.M. Zheltikov, «Mapping the electron band structure by intraband high-harmonic generation in solids», *Optica*, **4**(5):516–519 (2017).
8. **E.A. Stepanov**, A.A. Lanin, A.A. Voronin, A.B. Fedotov, A.M. Zheltikov, «Solid-state source of subcycle pulses in the midinfrared», *Physical Review Letters*, **117**(4):043901(1)–043901(5) (2016)
9. A.V. Mitrofanov, A.A. Voronin, D.A. Sidorov-Biryukov, A. Pugžlys, **E.A. Stepanov**, G. Andriukaitis, S. Ališauskas, T. Flöry, A.B. Fedotov, A. Baltuška, A.M. Zheltikov, «Mid-infrared laser filaments in the atmosphere», *Scientific reports*, **5**:8368 (2015)

10. A.V. Mitrofanov, A.A. Voronin, S.I. Mitryukovskiy, D.A. Sidorov-Biryukov, A. Pugžlys, G. Andriukaitis, T. Flöry, **E.A. Stepanov**, A.B. Fedotov, A. Baltuška, A.M. Zheltikov, «Mid-infrared-to-mid-ultraviolet supercontinuum enhanced by third-to-fifteenth odd harmonics», *Optics Letters*, **40**(9):2068–2071, (2015)
11. A.A. Lanin, A.A. Voronin, **E.A. Stepanov**, A.B. Fedotov, A.M. Zheltikov, «Multioctave, 3–18 μm sub-two-cycle supercontinua from self-compressing, self-focusing soliton transients in a solid», *Optics Letters*, **40**(6):974–977 (2015)
12. А.В. Митрофанов, Д.А. Сидоров-Бирюков, А.А. Воронин, А. Пугжлис, Г. Андрюкайтис, **Е.А. Степанов**, С.И. Алишаускас, Т. Флёри, А.Б. Федотов, В.Я. Панченко, А. Балтушка, А.М. Жёлтиков, «Субтераваттные фемтосекундные импульсы среднего инфракрасного диапазона: новые эффекты пространственно-временной динамики мощных электромагнитных полей», *Успехи физических наук*, **185**(1):97–103 (2015)
13. A.A. Lanin, A.A. Voronin, **E.A. Stepanov**, A.B. Fedotov, A.M. Zheltikov, «Frequency-tunable sub-two-cycle 60-mw-peak-power free-space waveforms in the mid-infrared», *Optics Letters*, **39**(22):6430–6433 (2014)

Личный вклад автора

Содержание диссертационной работы и основные защищаемые положения отражают личный вклад автора в опубликованные работы. Подготовка к публикации полученных результатов осуществлялась совместно с соавторами, причем вклад диссертанта был определяющим. Часть теоретического анализа и численного моделирования, использованного для сравнения с оригинальными экспериментальными результатами, была выполнена совместно с сотрудниками лаборатории фотоники и нелинейной спектроскопии кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова.

Структура диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав и заключения со списком литературы. После каждой главы сформулированы краткие итоги.

Первая глава даёт общие представления об актуальности и методах решения задач формирования предельно коротких импульсов и мультиоктавного суперконтинуума в

среднем инфракрасном диапазоне. Здесь также обсуждаются особенности и преимущества их применения для различных задач нелинейной спектроскопии. Описаны наиболее распространённые методы и подходы к формированию предельно коротких импульсов в видимом и ближнем инфракрасном диапазонах, а также основные ограничения, препятствующие прямому распространению данных методов на более длинноволновую область спектра.

Во второй главе рассматриваются лазерные комплексы, использовавшиеся в экспериментальных исследованиях, а также методика обработки экспериментальных данных. Описана многофункциональная Ti:Sapphire лазерная система, позволяющая формировать фемтосекундные перестраиваемые импульсы среднего инфракрасного диапазона микроджоулевого уровня энергии. Представлены результаты модернизации лазерного комплекса, проведённой в процессе выполнения диссертационной работы для улучшения параметров системы. Эксперименты, требующие более высоких уровней энергии, были выполнены на килогерцовой иттербиевой лазерной системе, позволяющей сформировать фемтосекундные импульсы на центральной длине волны около 3.2 мкм с энергией до 100 мкДж. Во второй главе также представлены методы характеристики предельно коротких импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазонов на основе стробирования исследуемого излучения в процессе четырёхволнового смешения в воздухе и при помощи анализа пространственной спектральной интерференции, которые были применены для определения временного профиля предельно коротких импульсов в экспериментальных исследованиях диссертационной работы.

Третья, четвёртая и пятая главы относятся к оригинальной результативной части выполненной работы и описывают результаты экспериментов, направленных на создание и развитие методов формирования предельно коротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона, а также применения таких импульсов в задачах нелинейно-оптической спектроскопии зонной структуры полупроводниковых материалов на основе генерации высших оптических гармоник. Третья глава посвящена реализации и демонстрации полностью твердотельного источника перестраиваемых импульсов длительностью порядка одного периода оптического поля на центральной длине волны 5 – 7 мкм с энергией на уровне единиц микроджоулей. В четвёртой главе описываются эксперименты по компрессии более мощных импульсов среднего инфракрасного

диапазона с энергией до ста микроджоулей в полном антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе, заполненном инертным газом. Проведение широкого спектра экспериментальных исследований позволило выявить условия, при которых возможно формирование из исходных относительно длинных импульсов на центральной длине волны вблизи 3.5 мкм мультиоктавного суперконтинуума, простирающегося от ближней ультрафиолетовой области спектра вплоть до среднего инфракрасного диапазона. Показано, что формирование такого суперконтинуума сопряжено с самокомпрессией импульса в процессе распространения в волноводе до предельно коротких длительностей, что было подтверждено в аналогичных экспериментах с импульсами накачки на центральной длине волны 2.1 мкм. Пятая глава посвящена развитию методов полностью оптического анализа зонной структуры полупроводниковых материалов на основе явления генерации гармоник высокого порядка при использовании сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона. Предложены модели описания явления генерации высоких оптических гармоник при помощи фотоиндуцированных внутризонных токов носителей заряда, позволяющие восстановить профиль зонной структуры вдоль выделенных направлений в экспериментах с поликристаллическими или монокристаллическими образцами полупроводникового материала.

Глава 1. Методы формирования предельно коротких импульсов в среднем инфракрасном спектральном диапазоне

Формирование волновых форм длительностью около одного периода поля в среднем ИК диапазоне накладывает соответствующие требования на спектральную ширину излучения, что вместе с низкой частотой излучаемого света ограничивает возможности прямой генерации таких импульсов – за счет усиления в активной среде с инверсией населённости. Энергия кванта излучения в среднем инфракрасном диапазоне близка к энергии тепловых фононов, что приводит к быстрой релаксации запасённой энергии в активной среде и препятствует процессу лазерной генерации [47], диктуя применения сложных технических решений, например охлаждения до криогенных температур. В то же время, основанные на параметрических нелинейно-оптических процессах понижения частоты альтернативные методы генерации сверхкоротких импульсов не требуют накопления инверсной населённости в активной среде и работают в условиях широкополосного фазового синхронизма нелинейных кристаллов, позволяющих получить импульсы длительностью вплоть до нескольких периодов поля во всём среднем инфракрасном диапазоне. Совместно с разработанными в последнее время эффективными методами нелинейно-оптической компрессии и самокомпрессии импульсов для среднего инфракрасного диапазона именно параметрические источники позволили продемонстрировать формирование предельно коротких импульсов длительностью порядка и менее одного периода поля.

В параграфе 1.1 представлен обзор ключевых и наиболее эффективных параметрических методов генерации сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона. Параграф 1.2 посвящён обзору и более подробному описанию работ, в которых за счёт комбинации различных эффективных методов генерации и компрессии широкополосного излучения удалось достичь предельно малой длительности импульса порядка и менее одного периода поля. Здесь также отмечается положение и роль представленные в главах 3 и 4 настоящей диссертации наших оригинальных результатов в общей картине развития этих методик. В параграфе 1.3 показано, что развитие методов генерации предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона с контролируемым временным профилем открывает путь к сверхбыстрому контролю над фотоиндуцированными токами в различных физических, химических и биологических

системах, и таким образом к новым путям развития современной сверхбыстрой оптоэлектроники, в том числе на петагерцовых частотах. Здесь также представлена роль нелинейно-оптического явления генерации гармоник высокого порядка, как чувствительного метода детектирования сверхбыстрой электронной динамики в поле сверхкоротких импульсов.

1.1 Техника генерации сверхкоротких импульсов в среднем инфракрасном диапазоне

Основные нелинейно-оптические процессы, применяемые сегодня для формирования сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона, включают в себя оптическое параметрическое усиление, параметрическое усиление чирпированных импульсов, а также генерацию разностной частоты, в том числе и внутриимпульсную. Для осуществления данных процессов используются нелинейные кристаллы, относящиеся к группам оксидных кристаллов, таких как KTiOAsO_4 (KTA), KTiOPO_4 (KTP), LiNbO_3 (LNO) и халькогенидов, включающих кристаллы ZnGeP_2 (ZGP), CdSiP_2 (CSP), AgGaS_2 (AGS), AgGaSe_2 (AGSe), GaSe , BaGa_4S_7 (BGS), LiGaS_2 (LGS) и LiGaSe_2 (LGSe). Суммарная информация об основных параметрах нелинейных кристаллов среднего инфракрасного диапазона представлена в таблице 1 (данные из работы [47]). В целом лучевая стойкость, пороги оптического пробоя и механическая твёрдость оксидных кристаллов показывают более высокие значения, однако их прозрачность не превышает 5 мкм в длинноволновой части среднего инфракрасного диапазона. Эффективная нелинейность халькогенидных кристаллов выше, и диапазон их прозрачности простирается за 10 мкм, что позволяет формировать в них более длинноволновые импульсы. Однако ширина запрещённой зоны у таких кристаллов лежит вблизи 2 эВ, что увеличивает влияние многофотонного поглощения и существенно снижает порог оптического пробоя при использовании излучения накачки на длинах волн порядка 1 мкм с высокой пиковой мощностью.

Относительно новые для задач генерации инфракрасного излучения кристаллы LGS и LGSe обладают более высоким значением ширины запрещённой зоны, позволяющим использовать более высокие интенсивности излучения накачки на длине волны порядка 1 мкм, но они прозрачны только до 10 мкм. Кристалл BGSe – один из кандидатов на роль кристалла с большими шириной запрещённой зоны и окном прозрачности, но технологии

его роста ещё нуждаются в существенном развитии. В дополнение к описанным выше кристаллам стоит добавить широко используемые нелинейно поляризованные кристаллы LiNbO_3 (PPLN) и кристаллы GaAs и GaP с периодической доменной структурой (OP-GaAs и OP-GaP), отличающиеся чрезвычайно широким диапазоном выполнения условия фазового квазисинхронизма, и высокими показателями оптической нелинейности, но ограниченные в применении только малой апертурой и соответственно энергией импульсов.

Кристалл	Прозрачность (мкм)	Нелинейный коэффициент (пм/В)	Ширина запрещённой зоны (эВ)
AGS	0.5-13	13.4	2.76
AGSe	0.75-15	26.8	1.83
BGSe	0.47-18	24.3	2.64
CSP	0.5-9	84.5	2.45
ZGP	2-12	72	2.2
GaSe	0.65-18	57	2.1
LGS	0.32-11.6	5.9	3.76
OP-GaAs	0.9-17	94	2.1
OP-GaP	0.57-12	70	2.26

Таблица 1. Сравнительные характеристики основных нелинейных кристаллов среднего инфракрасного диапазона (по данным [47])

В основе большинства современных методов формирования сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона лежит оптическое параметрическое усиление – хорошо известный нелинейно-оптический процесс, также широко применяемый для генерации перестраиваемого излучения в видимом и ближнем инфракрасном диапазоне. Его высокая энергетическая эффективность обусловлена трёхволновой природой взаимодействия на квадратичной оптической нелинейности материала. В последние годы данная техника активно распространяется на более длинноволновый спектральный диапазон, благодаря появлению новых мощных лазерных систем накачки на длинах волн более 1 мкм, а также развитию технологий производства новых эффективных нелинейных кристаллов. Генерация сверхкоротких импульсов в среднем инфракрасном диапазоне возможна, как в однократном процессе фемтосекундного оптического параметрического преобразования, в результате которого холостая волна непосредственно представляет собой широкополосное излучение в

среднем инфракрасном диапазоне, так и в многокаскадных параметрических процессах с применением дополнительной ступени нелинейно-оптического понижения частоты - генерации разностной частоты между сигнальной и холостой волнами, генерации разностной частоты между оптически синхронизированными сигнальными или холостыми волнами из параллельных параметрических усилителей или же внутриимпульсной генерации разностной частоты. Добавление техники чирпирования импульсов к процессу оптического параметрического усиления позволяет смешивать растянутые во времени сигнальную или холостую волну с более длинными, пикосекундными импульсами накачки, обеспечивая достижение значительно больших энергий импульсов без повреждения материала нелинейного кристалла. Для увеличения ширины фазового синхронизма, необходимой для достижения меньших длительностей усиленных импульсов на выходе оптического параметрического усилителя в видимом и ближнем инфракрасном диапазоне успешно применяются различные схемы, такие как использование неколлинеарной геометрии, пространственное чирпирование, фокусировка взаимодействующих импульсов или множественная накачка [48–50].

Формирование сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона в процессе фемтосекундного параметрического усиления позволяет достичь более высоких коэффициентов преобразования энергии по сравнению с традиционными многокаскадными схемами понижения частоты, включающими дополнительный этап генерации разностной частоты. Так в работе [51] в 2020 году была продемонстрирована лазерная система на основе 100 кГц иттербиевого усилителя с одним каскадом оптического параметрического усиления (Рис. 1а) в перспективных нелинейно-оптических кристаллах LiGaS_2 (LGS) и BaGa_4S_7 (BGS), в котором удалось преобразовать исходный импульс накачки на центральной длине волны 1028 нм длительностью 180 фс в сверхкороткие импульсы длительностью 121 фс на длине волны 8.1 мкм с эффективностью 2.1% для кристалла LGS и длительностью 126 фс, соответствующей примерно 4 периодам поля на центральной длине волны 10 мкм с эффективностью 1.6 %. Полученные коэффициенты преобразования примерно в шесть раз превышают эффективность традиционных лазерных систем с дополнительным каскадом генерации разностной частот на тех же длинах волн. Характеризация временного профиля полученных импульсов была выполнена при помощи техники временного стробирования с разрешением по частоте (XFROG) при смешении исследуемого излучения с репликой

параметрического усиления с использованием импульсных лазеров накачки на больших центральных длинах волн по сравнению с распространёнными 800 и 1030 нм. Так использование хром-форстеритового лазера накачки в работе [53] позволило осуществить в процессе оптического параметрического преобразования понижение частоты излучения от 1240 нм в диапазон 1.6-2.0 мкм (сигнальная волна) и 3.5-5.5 мкм (холостая волна) с суммарной эффективностью порядка 10%. Импульсы длительностью около 150 фс с энергиями 110 мкДж и 43 мкДж, соответственно, были сформированы в условиях пречирпирования накачки в трёхкаскадном параметрическом усилителе на кристалле AGS. Эксперименты с ещё более длинноволновой накачкой, около 2 мкм, позволили продемонстрировать в работе [54] в 2020 году генерацию когерентного мультиоктавного суперконтинуума, простирающегося от 3 до 10 мкм с энергией до 55 мкДж в результате параметрического усиления белого света в кристалле ZnGeP_2 (ZGP) с энергетической эффективностью порядка 10% (Рис. 2а). Исходные импульсы накачки из килогерцового Cr:ZnSe регенеративного усилителя длительностью 250 фс с энергией до 1.2 мДж смешивались в 5 мм кристалле ZGP с белым светом, генерируемым слабой репликой импульса накачки в 6 мм кристалле алюмоиттриевого граната в коллинеарной геометрии. Спектр суперконтинуума на выходе кристалла состоял из непрерывных спектров сигнальной и холостой волны с небольшими провалами в области поглощения атмосферного воздуха, которые можно уменьшить откачкой или заполнением системы инертными газами. В работе методом оптического стробирования с разрешением по частоте на основе явления генерации второй гармоники (SHG FROG) были измерены временные характеристики только высокочастотной части суперконтинуума, соответствующей сигнальной волне (диапазон отмечен вертикальными пунктирными линиями на Рис. 2б-с). Показано, что излучение среднего инфракрасного диапазона лишь немного превышает по длительности импульс накачки, а полная спектральная ширина суперконтинуума поддерживает возможность формирования субпериодного импульса при точной коррекции спектральной фазы. Коэффициент преобразования в средний инфракрасный диапазон по энергии оказывался ещё выше, и достигал значений вплоть до 23%, если в качестве затравки усилителя использовалась сигнальная волна синхронного оптического параметрического генератора на основе аналогичного нелинейного кристалла ZGP толщиной 5 мм, накачиваемого репликой того же импульса из регенеративного усилителя на центральной длине волны 2.4 мкм. Полученные энергии до

сотни микроджоулей позволяют говорить о возможности компрессии данного суперконтинуума в дополнительном каскаде нелинейно-оптического преобразования для получения предельно коротких длительностей, в том числе в заполненных газом полых фотонно-кристаллических волноводах и капиллярах.

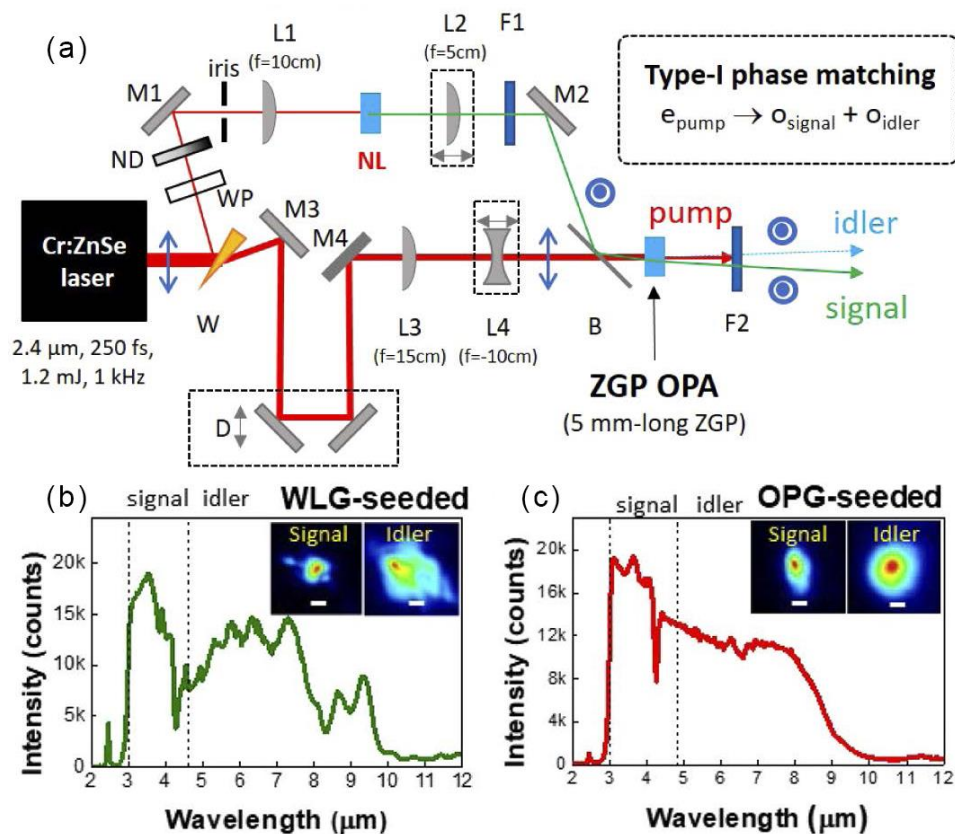


Рис. 2. Схема килогерцового оптического параметрического усилителя на кристалле ZGP с накачкой сверхкороткими импульсами на длине волны 2.4 мкм (а); Спектр формируемого на выходе усилителя суперконтинуума при затравке белым светом (b) и сигнальной волной оптического параметрического генератора (с) [54].

Для получения сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона с ещё большей энергией, как уже говорилось ранее, применяют технику оптического параметрического усиления чирпированных импульсов. Интенсивное развитие данной техники в последние несколько лет позволило создать разнообразные лазерные комплексы для генерации сверхкоротких импульсов с энергиями уровня от десятков микроджоулей до десятка миллиджоулей в диапазоне длин волн от 3 до 4 мкм [55–64], и заметное количество более длинноволновых источников [65–67] с длительностью импульсов в несколько периодов поля на центральной длине волны. Частота следования импульсов в таких системах варьируется от десяти герц до сотни килогерц.

Отдельно можно выделить несколько ключевых реализаций, обладающих наиболее выдающимися параметрами. Представленная в работе [60] в 2017 году мощная многокаскадная лазерная система позволила авторам сформировать сверхкороткие импульсы на центральной длине волны 3.25 мкм с энергией более 100 мкДж на частоте повторения 160 кГц, что соответствует средней мощности около 20 Вт. Излучение затравки в среднем инфракрасном диапазоне генерируется в периодически поляризованном кристалле PPLN в процессе генерации разностной частоты при накачке двухцветным волоконным эрбиевым лазером (Рис.3). Затем это излучение растягивается во времени стретчером и проходит трёхкаскадный предусилитель и два промежуточных усилителя на кристаллах PPLN и KNbO₃ (по 2 кристалла, всего 4 каскада) накачиваемых импульсами 160 кГц Nd:YVO₄ усилителя на длине волны 1064 нм, и сжимается в твердотельном компрессоре, представляющем собой просветлённый 10 см сапфировый стержень.

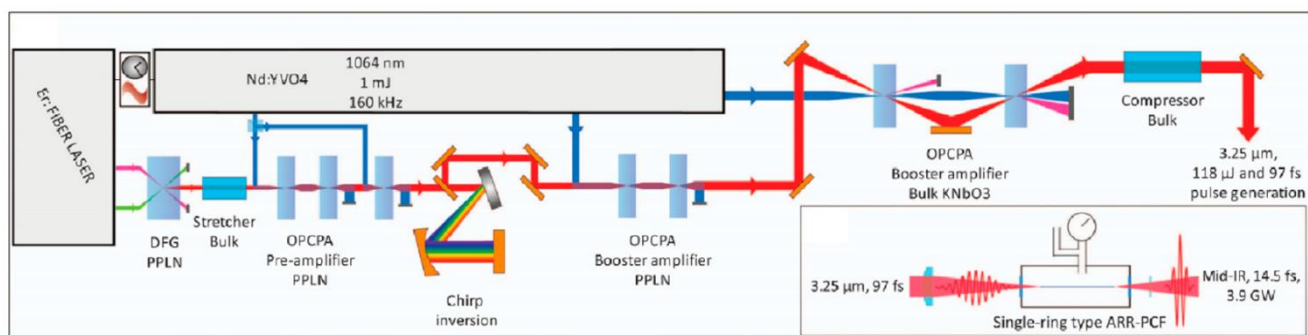


Рис. 3. Схема многокаскадной 160 кГц лазерной системы, формирующей на первом этапе (до самокомпрессии в волноводе (показан на вставке)) импульсы длительностью 97 фс на центральной длине волны 3.25 мкм с энергией до 120 мкДж [60].

Результирующая длительность этих импульсов, равная 97 фс (соответствует 9 периодам поля на центральной длине волны), была затем дополнительно уменьшена до предельных значений в 14.5 фс или 1.35 периода поля за счет солитонной самокомпрессии в заполненном инертным газом полом фотонно-кристаллическом антирезонансном волноводе. Эта часть схемы будет более подробно рассмотрена во втором параграфе данной главы.

Также нельзя обойти вниманием один из наиболее известных источников мощных сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона, представленный в 2011 году в работе [63] группой профессора А. Балтушки в Венском Технологическом

университете (Рис. 4). Эта гибридная система включает в себя как трёхкаскадный фемтосекундный оптический параметрический усилитель, так и следующий за ним двухкаскадный параметрический усилитель chirпированных импульсов. Примечательной особенностью последнего является то, что на входе в усилитель осуществляется chirпирование импульса сигнальной волны (1.46 мкм) в гризменном стретчере, а сжимается на выходе холостая волна (3.9 мкм), приобретающая в процессе усиления частотную модуляцию с противоположным знаком, что позволяет одновременно упростить конструкцию как стретчера, так и компрессора.

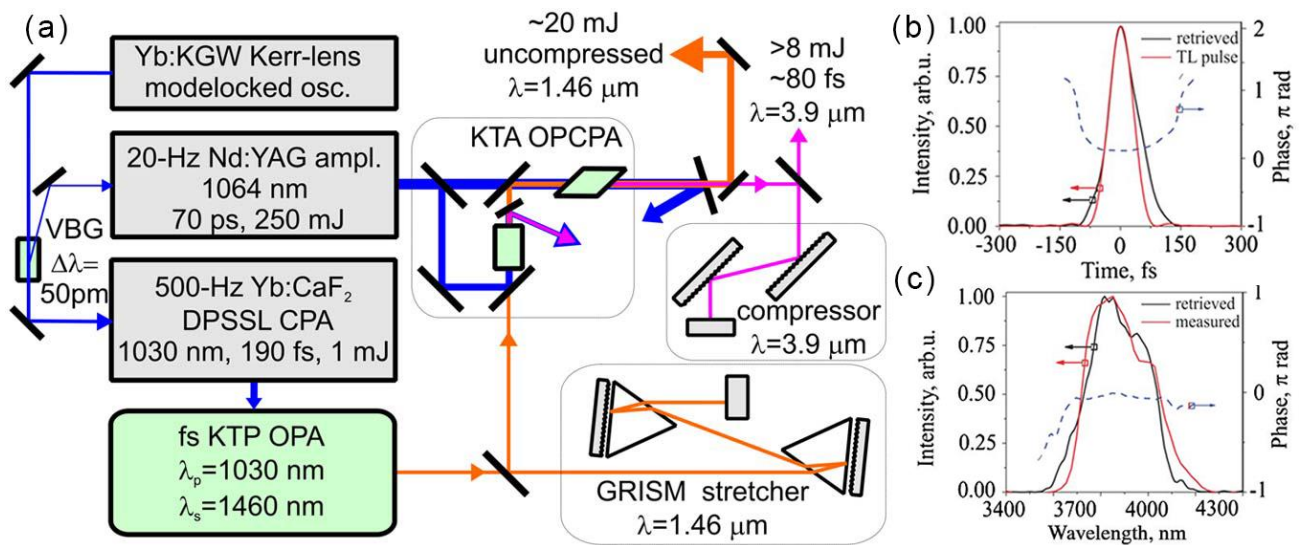


Рис. 4. Схема гибридной 20 Гц лазерной системы формирующей мощные импульсы среднего ИК диапазона на длине волны 3.9 мкм в результате многокаскадного параметрического усиления (а); временной профиль (b) и спектр (с) импульса, определённые методом SHG FROG в 1 мм кристалле AGS [63].

В результате пяти каскадов параметрического усиления, после сжатия в решёточном компрессоре, на выходе лазерной системы формируются импульсы на центральной длине волны 3.9 мкм длительностью около 80 фс (~6 периодов поля) с энергией более 8 мДж на частоте повторения 20 Гц. На Рис. 4b и с представлены результаты характеризации выходного излучения методом SHG FROG в кристалле AGS толщиной 1 мм. Развитие данной технологии привело в последствии к созданию совместно с нашей научной группой улучшенной версии этой лазерной системы, которая в настоящее время работает в Российском квантовом центре (ООО «МЦКТ», Сколтех, Московская область) [68,69]. Килогерцовая часть этого лазерного комплекса (3+1 каскадный фемтосекундный оптический параметрический усилитель) использовалась при выполнении

экспериментов, представленных в главе 4 настоящей диссертационной работы, а подробное описание лазерной системы дано во втором параграфе главы 2.

Ещё один важный параметрический процесс, широко применяемый для генерации сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона – внутриимпульсная генерация разностной частоты. Привлекательность данного метода заключается в том, что для его реализации нужен всего один мощный широкополосный сверхкороткий импульс накачки, и взаимодействие в среде происходит между его высокочастотными («синими») и низкочастотными («красными») спектральными компонентами в условиях фазового синхронизма в нелинейно-оптическом кристалле. В последние годы, начиная с работы 2015 года [70], метод генерации широкополосного излучения в среднем инфракрасном диапазоне при помощи внутриимпульсной генерации разностной частоты был успешно реализован во многих лазерных системах с прямой накачкой из волоконного или дискового фемтосекундного генератора импульсами в диапазоне длин волн 1-2 мкм с частотой повторения до сотни мегагерц [52,71–75]. С использованием таких нелинейно-оптических кристаллов как LGS, GaSe, ZnSe, AGSe, ZGP, GaP с периодической доменной структурой, были получены импульсы длительностью до нескольких периодов поля субмикроджоулевого уровня энергии, применимые в задачах времяразрешённой молекулярной спектроскопии и регистрации гиперспектральных изображений. Авторы работы [76] в 2019 году, используя в качестве источника импульсов накачки длинноволновый оптический параметрический усилитель чирпированных импульсов на центральной длине волны 3 мкм продемонстрировали рекордное по энергетической эффективности внутриимпульсное преобразование, получив значение отношения энергии ИК импульса к энергии импульс накачки 5.3%. Однако следует учесть, что энергетическую эффективность самого параметрического усилителя с оптической накачкой авторы не указывают. Схема эксперимента представлена на Рис. 5, импульсы с энергией 120 мкДж длительностью 65 фс на выходе усилителя на основе кристалла PPLN, накачиваемого коммерческим 10 кГц иттербиевым лазером, дополнительно сжимались в режиме аномальной дисперсии в кристалле алюмоиттриевого граната, обладающего высокой лучевой стойкостью и аномальной дисперсией групповых скоростей на длине волны 3 мкм, после чего фокусировались до интенсивности порядка 300 ГВт/см² в 2 мм кристалл GaSe, в котором в результате внутриимпульсного преобразования второго типа

формируется 68 фс импульс, длительность которого примерно соответствует 2 периодам поля на центральной длине волны 9.7 мкм.

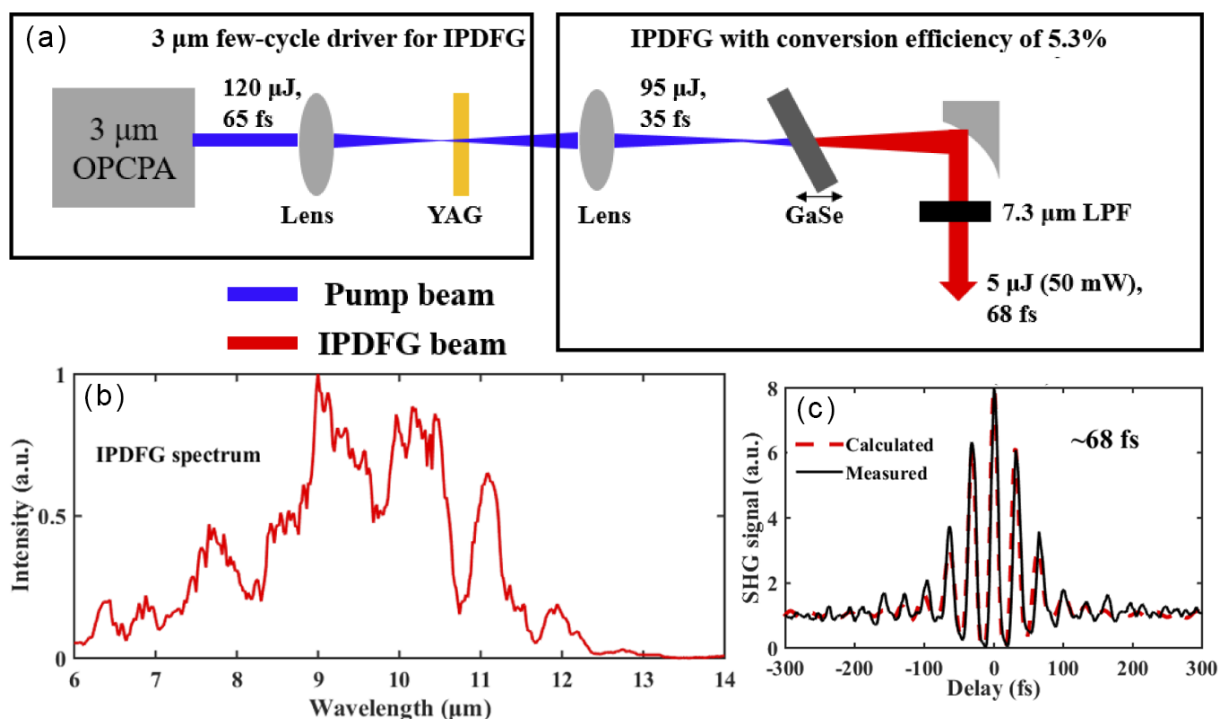


Рис. 5. Схема 10 кГц лазерной системы состоящей из оптического параметрического усилителя chirпированных импульсов, твердотельного компрессора на основе кристалла АИГ и внутриимпульсного генератора разностной частоты на основе кристалла GaSe (a); спектр (b) и автокорреляционная функция (c) импульса среднего инфракрасного диапазона на выходе лазерной системы [76].

Как видно из представленного в данном параграфе обзора современных работ, параметрические процессы в кристаллах с квадратичной нелинейностью широко используются для генерации сверхкоротких импульсов во всём среднем инфракрасном диапазоне длительностью в несколько периодов с различными средней и пиковой мощностями. Зачастую в одной лазерной системе используют комбинацию нескольких нелинейно-оптических явлений для достижения большей энергии и меньшей длительности импульса, а совместно с дополнительными техниками компрессии и самокомпрессии импульсов в твёрдых телах и волноводах удаётся получить предельно короткие импульсы длительностью порядка или менее одного периода поля.

1.2 Нелинейно-оптические методы формирования однопериодных импульсов в среднем инфракрасном диапазоне

Представленный выше обзор показывает, что формирование импульсов длительностью порядка одного периода поля в видимом, ближнем и среднем инфракрасном диапазонах до сих пор не является рутинной процедурой, требуя применения наиболее современных техник генерации, спектрального уширения и временной компрессии, с точно согласованными параметрами исходного излучения и свойств используемых нелинейно-оптических материалов. За десять лет активного развития методов генерации предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона найдены различные, часто уникальные наборы условий, позволяющих получить предельные длительности импульсов с различной энергией и на различной центральной длине волны. Можно сказать, что на настоящий момент не существует универсальных методов генерации однопериодных импульсов в широком спектральном диапазоне, поэтому задача поиска новых нелинейно-оптических материалов, волноводов и уникальных режимов компрессии и самокомпрессии актуальна и сегодня. Для иллюстрации данного утверждения в этом параграфе представлен обзор некоторых работ, где за счёт точного согласования настройки параметров лазерной системы и нелинейно-оптических процессов получены предельно короткие длительности импульсов среднего инфракрасного диапазона, а также показано место наших оригинальных экспериментальных результатов, представленных к защите, в контексте мирового уровня исследований. В обзоре также будет сделан акцент на методы характеристики импульсов, позволившие экспериментально зарегистрировать предельно малые длительности.

Точный подбор центральных длин волн взаимодействующих импульсов под условия широкополосного фазового синхронизма процесса генерации разностной частоты в кристалле GaSe позволил авторам в работе 2010 года [77] сформировать однопериодный импульс на центральной длине волны 13.5 мкм, компоненты спектра которого простираются в диапазоне от 5 до 300 мкм (Рис. 6). Подобное широкополосное преобразование стало возможно благодаря использованию двух синхронных оптических параметрических усилителей с общей затравкой, обеспечивающих непрерывную и точную независимую подстройку центральной длины волны двух сигнальных импульсов. В этой работе проведено экспериментальное и численное сравнение режимов генерации разностной частоты в кристалле GaSe с накачкой на центральной длине волны 800 нм

(Рис. 6b,g,h) и 1180 нм (Рис. 6a,e,f), где дисперсия групповых скоростей в кристалле GaSe на порядок ниже. Во втором случае условия фазового и группового синхронизма поддерживают нелинейно-оптическое преобразование в существенно большем спектральном диапазоне, позволяя сгенерировать импульс длительностью около 46 фс с энергией 0.4 мкДж. Временная характеристика выходного импульса осуществлялась методом электрооптического семплирования при смешении исследуемого излучения с 10 фс импульсом накачки на длине волны 800 нм в 140 мкм кристалле GaSe (Рис. 6d).

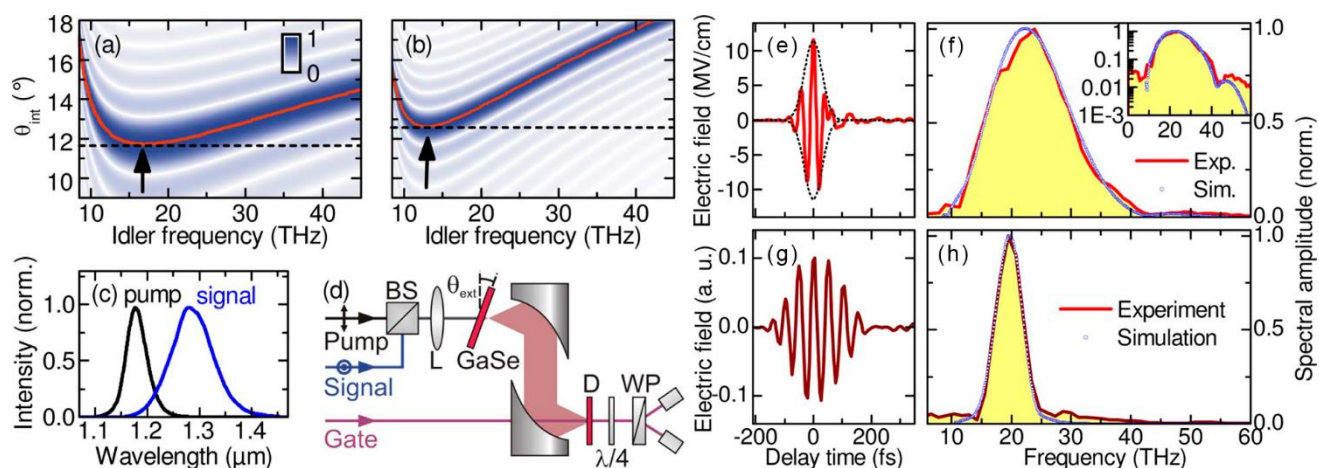


Рис. 6. Карты фазового синхронизма (a, b), спектры взаимодействующих импульсов (c), схема генерации и характеристики предельно короткого импульса (d), электрическое поле (e, g) и спектр (f, h) импульса. Расчёт и эксперимент выполнены для импульса накачки на длине волны 1180 нм (a, e, f) и 800 нм (b, g, h) [77].

В 2012 году в работе [78] был продемонстрирован источник субпериодных импульсов на центральной длине волны 3.9 мкм с энергией порядка 0.25 мкДж, основанный на четырёхволновом смешении в процессе двуцветной филаментации импульса килогерцовой титан-сапфировой лазерной системы с его второй гармоникой в аргоне. Возможность формирования излучения среднего инфракрасного диапазона в двуцветном филаменте была показана ещё раньше [79–83], однако, в данной работе впервые удалось экспериментально подтвердить возникающего в этом процессе предельно малую длительность импульса. Применённый в работе метод характеристики, заключающийся в оптическом стробировании с разрешением по частоте при четырёхволновом смешении инфракрасного импульса с опорным импульсом на длине волны 800 нм в газе (FWM XFROG), обладает чрезвычайно широким фазовым синхронизмом и может быть применён для полной временной характеристики мультиоктавного суперконтинуума. Благодаря использованию данного метода удалось экспериментально зарегистрировать

длительность сформированного импульса, составившую всего 7.4 фс, что соответствует 0.6 периодам поля на центральной длине волны. Следует отметить, что одним из существенных недостатков метода генерации в процессе двуцветной филаментации является коническая поперечная структура генерируемого инфракрасного излучения, которая тем не менее достаточно хорошо фокусируется в пятно менее 1 мм.

Метод характеристики предельно коротких импульсов, основанный на ЧВВ в газе более подробно описан в параграфе 2.3, так как был применён и в наших оригинальных экспериментах по формированию и характеристике микрожоулевых предельно коротких импульсов на длине волны в диапазоне 4 - 8 мкм. Результаты экспериментов, подробно описанные в главе 3 диссертационной работы, были получены в 2014-2016 годах [84–86], и на момент публикации предложенный полностью твердотельный источник позволял формировать рекордно короткие микрожоулевые импульсы на длинах волн в диапазоне 5 – 7 мкм. Полученные предельные длительности стали результатом поиска новых режимов самокомпрессии сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона в твердотельных материалах в условиях аномальной дисперсии групповых скоростей, начатых в экспериментальной работе 2013-го года [46], где впервые была показана возможность солитонной самокомпрессии 75-фс импульса на центральной длине волны 3.1 мкм до длительности около 30 фс, что составило менее 3-х периодов поля. Параллельно с солитонной самокомпрессией в твёрдых телах развивались подходы к формированию так называемых световых пуль [87–89], характеризующихся высокой пространственно-временной локализацией светового поля, при которой масштабы области локализации составляют несколько длин волн и один-два периода оптических осцилляций, образование которых происходит в результате согласованных процессов самофокусировки в пространстве и самокомпрессии во времени волнового пакета, развивающихся при аномальной дисперсии групповой скорости в объеме среды с кубической нелинейностью в условиях генерации лазерной плазмы.

Ещё один оригинальный полностью твердотельный источник предельно коротких микрожоулевых импульсов на центральной длине волны около 3 мкм представлен в 2017 году в работе [6]. В ней авторы применили технику адиабатической генерации разностной частоты в апериодически поляризованном кристалле MgO:CLN , выращенном таким образом, чтобы за счёт точной настройки фазового и группового синхронизма обеспечить

точную передачу спектральной мощности и фазы от импульса ближнего ИК диапазона, выступающего в качестве накачки к импульсу на разностной частоте. Сложная многокаскадная лазерная система, включающая в себя параметрический усилитель чирпированных импульсов, стретчер, акустооптический дисперсионный фильтр для подготовки спектральной фазы, адиабатический генератор разностной частоты и твердотельный компрессор (Рис. 7), позволила не только сформировать предельно короткий импульс длительностью 11 фс, соответствующей 1.2 периода поля на центральной длине волны 2.8 мкм, с энергией 1.5 мкДж и спектром, простирающимся от 1.8 до 4.4 мкм, но также и осуществить точную трансляцию сложной спектральной фазы от импульса ближнего инфракрасного диапазона к излучению суперконтинуума на разностной частоте. В частности, была продемонстрирована возможность формирования последовательности из двух предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона с программируемой задержкой между ними, лежащей в диапазоне от нескольких фемтосекунд до нескольких пикосекунд. Данная техника адиабатической генерации разностной частоты может стать хорошей альтернативой для спектральных фильтров среднего инфракрасного диапазона, необходимых для точного управления временными характеристиками излучения, в том числе в задачах двумерной инфракрасной спектроскопии [90].

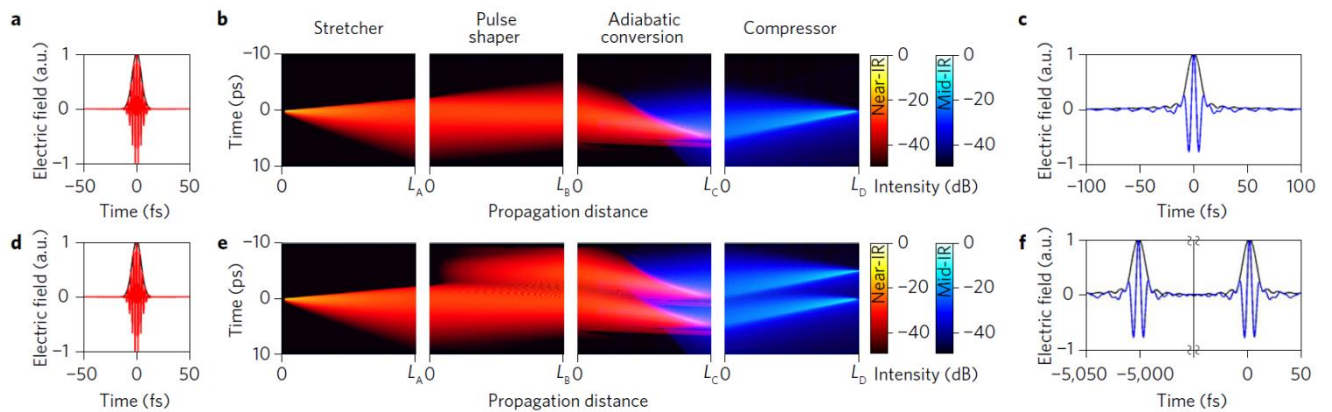


Рис. 7. Схема адиабатического генератора разностной частоты, позволяющего формировать излучение в среднем инфракрасном диапазоне с заданной спектральной фазой для прецизионного управления временными характеристиками импульса [6].

Полностью твердотельные источники предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона позволяют достичь микроджоулевого уровня энергии, однако дальнейшее масштабирование энергии в твердотельных нелинейно-оптических

материалах ограничено низкими порогами оптического пробоя и высокими коэффициентами нелинейности, приводящими к появлению нежелательных трудно контролируемых нелинейных эффектов, таких как фазовая самомодуляция, множественная самофокусировка, многофотонная фотоионизация. Для сжатия импульсов с энергиями на 1-2 порядка выше применяются компрессоры на основе полых капилляров и волноводов, заполненных газом. В описанной в предыдущем параграфе работе [60] импульс длительностью 97 фс на центральной длине 3.25 мкм с энергией около 120 мкДж был с высокой энергетической эффективностью сжат до длительности всего 14.5 фс, что эквивалентно 1.35 периодов оптического поля (Рис. 8).

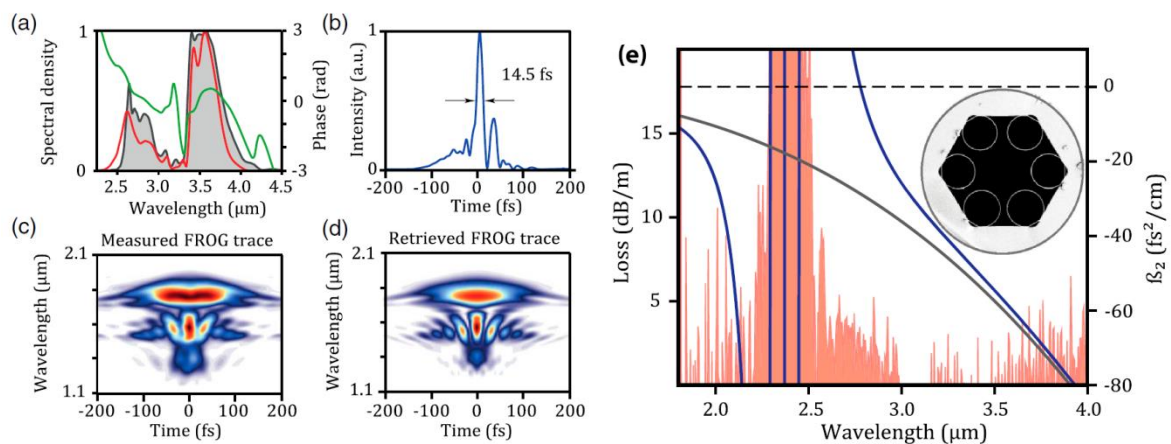


Рис. 8. Спектр (a), огибающая (b), экспериментально измеренная (c) и восстановленная (d) спектрохронограммы импульса, полученного в результате самокомпрессии в антирезонансном волокне (e) в работе [60].

Традиционные схемы компрессии, основанные на эффекте фазовой самомодуляции в заполненных газом полых капиллярах с последующей компенсацией дисперсии, не применимы для сжатия исходного лазерного импульса с такими параметрами. Потери, связанные с вытеканием моды при распространении излучения в капилляре пропорциональны λ^2/a^3 , где λ – длина волны и a – радиус капилляра, в то время как характерная длина фазовой самомодуляции зависит от длины волны как $L_{SPM} = \lambda/(2\pi n_2 I_0)$, где n_2 – коэффициент керровской нелинейности, а I_0 – пиковая интенсивность лазерного излучения в волноводе. Помимо этого, применение полых волноводов в среднем инфракрасном диапазоне дополнительно затруднено из-за высокого коэффициента поглощения материала волновода. Всё это приводит к высоким потерям мощности при распространении импульса среднего ИК диапазона в капиллярах и фотонно-кристаллических волокнах. Для преодоления ограничений, связанных с

высокими потерями в работе [60] был использован новый тип фотонно-кристаллических волокон – полое антирезонансное волокно с отрицательной кривизной, состоящее из одного кольца антирезонансных капилляров с толщиной стенки порядка 1.2 мкм, окружающего центральное полое ядро, диаметром 88 мкм (вставке на Рис. 8е).

Волокна с отрицательной кривизной возникли в результате исследований явления антирезонанса и волокон с решёткой кагоме. Структура из одного кольца тонкостенных капилляров, совмещает в себе два преимущества: простоты изготовления и наличия отрицательной кривизны на границе центральной полости [45,91]. В антирезонансных волокнах с отрицательной кривизной вектор нормали на границе центральной полости направлен против радиус-вектора. В таких волокнах эффективно подавляется связь между фундаментальной модой центральной полости и модами оболочки. Моды оболочки в основном локализованы внутри капилляров, в стекле или в промежутках между капиллярами и внешней оболочкой. Явление антирезонанса необходимо для подавления связи между модами в таких волокнах, однако его недостаточно. Низкие потери при распространении, достигающие 10 дБ/км, получаются в результате совместного действия эффекта антирезонанса в стекле и явления несоответствия волновых векторов фундаментальной моды и моды оболочки. Дисперсионные свойства волокон, а также спектральные области низких потерь определяются структурой волокна - количеством и размером капилляров, размером центральной полости, толщиной стенок капилляров. В последнее время предложены различные методы улучшения характеристик волокон с отрицательной кривизной, такие как добавление зазоров между капиллярами или использование нескольких вложенных капилляров, увеличивающих число отражающих поверхностей.

Волокно, использовавшееся в работе [60], имело структуру, представленную на фотографии (на вставке Рис. 8е). Измеренный спектр пропускания данного волокна представлен на рисунке Рис. 8е. Видно, что на длине волны 2.4 мкм располагается первая полоса потерь, возникающая в результате резонансного взаимодействия фундаментальной центральной моды и мод капилляров. Это в свою очередь приводит к изменению дисперсионного профиля волокна, формируя достаточно широкую область с аномальной дисперсией групповых скоростей, в которой возможна самокомпрессия лазерного импульса. Максимальная ширина когерентного (сжимаемого) спектра

суперконтинуума, возникающего в процессе нелинейно-оптических преобразований при распространении в волокне, определяется положением первого структурного резонанса и начальной длиной волны лазерного импульса. Таким образом, ширина спектра, простирающегося от 2.5 мкм до 4 мкм в работе [60], составляет около 0.7 октавы, и является недостаточной для сжатия импульсов до предельно коротких длительностей, менее одного периода оптического поля.

Точное сочетание параметров полого фотонного-кристаллического волновода, таких как диаметр и толщина стенок капилляров, их количество и расположение, диаметр центральной полости, длина используемого отрезка волновода, а также прочих условий нелинейно-оптического преобразования (начальная длительность и энергия импульса, его центральная длина волны, давление и молекулярный состав заполняющего волновод газа) определяют предельную длительность импульса, которую можно получить в эксперименте. Подобная работа была проделана нами с аналогичным антирезонансным волноводом, особенности структуры которого обеспечили смещение первой полосы резонансных потерь в область коротких длин волн вплоть до значения 1150 нм, что позволило получить на выходе такого волновода формируемый в результате самокомпрессии сверхкоротких импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона с энергией порядка 100 мкДж мультиоктавный суперконтинуум, спектр которого поддерживает формирование предельно короткого импульса длительностью менее одного периода поля. Результаты данных экспериментов были опубликованы в 2019 году [92] и подробно описаны в четвёртой главе настоящей диссертационной работы.

1.3 Сверхкороткие импульсы в задачах нестационарной нелинейно-оптической спектроскопии и анализа сверхбыстрой динамики носителей заряда в твердых телах

Обращаясь к истории развития теории проводимости твердых тел, можно отметить, что описание поведения частицы в периодическом потенциале стало одним из величайших успехов квантовой механики и привело к революции в физике твёрдого тела, послужив толчком к развитию современной электроники, формирующей основу нашей повседневной жизни. Первые работы над зонной теорией [93–95], локализованными электронными состояниями [96] и электронной динамикой в присутствии внешнего поля [97–100] легли в основу физики полупроводников в сильных полях и её многочисленных

промышленных применений. Движение электронов в твёрдом теле под действием внешнего поля – хорошо известное явление [101–103], и генерация гармоник высокого порядка была предсказана и наблюдалась вплоть до видимого диапазона частот [104–110]. Первоначально аналогичные исследования проводились на атомарных и молекулярных газовых системах, а в последнее десятилетие осуществляется трансфер развитых техник и подходов на твердотельные объекты исследования [111]. Адаптация методов аттосекундной метрологии для наблюдения и контроля быстрой электронной динамики в известных твердых телах и новых квантовых материалах является очень перспективным инструментом исследований для изучения коррелированной электронной динамики (например, экситонных эффектов, или эффектов экранирования) [112] на атомарных пространственных масштабах и субфемтосекундных временных масштабах, тем самым оказывая сильное влияние на перспективные оптоэлектронные технологии, такие как петагерцовая электронная обработка сигналов [111,113] или сильнополюсная оптоэлектроника [114,115].

Нелинейно-оптический процесс генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) в газах является одним из краеугольных камней аттосекундной оптики и хорошо интерпретируется с помощью полуклассической трехступенчатой модели [116]. Первые эксперименты по непertурбативной (не поддающиеся описанию в рамках теории возмущений) генерации гармоник высоких порядков в твердых телах вплоть до 25-го порядка без необратимых повреждений начали появляться около 10 лет назад [117]. Эта работа дала толчок обширному спектру исследований, направленных на раскрытие природы межзонной и внутризонной сверхбыстрой динамики электронов, и ее связи с процессами ГГВП в кристаллах, что помогает распространить методы аттосекундной оптики на твердые тела [118]. Влияние непertурбативных нелинейных процессов, присущих нелинейной оптики сильных световых полей, была успешно идентифицирована в конкретных экспериментальных реализациях, хотя более-менее полная картина происходящих процессов еще только начинает складываться, соответственно используются различные подходы при изучении этого интересного явления. Понимание электронной динамики в присутствии сильного поля может быть найдено при решении одноэлектронной задачи в полуклассической модели [13,104,107,119], решении нестационарного уравнения Шрёдингера [110,120,121], или при решении задачи многих тел в приближении Хартри-Фока совместно с уравнением

Блоха для полупроводника [10,11,101–103,106]. Несмотря на то, что полуклассические модели являются приближёнными, они позволяют хорошо описать физику процессов в некоторых экспериментах [9,13,119,122], особенно для гармоник, лежащих по энергии фотона ниже ширины запрещённой зоны, где показано преобладание внутризонного механизма генерации гармоник высокого порядка в твёрдых телах над межзонным (Рис. 9) [121,123].

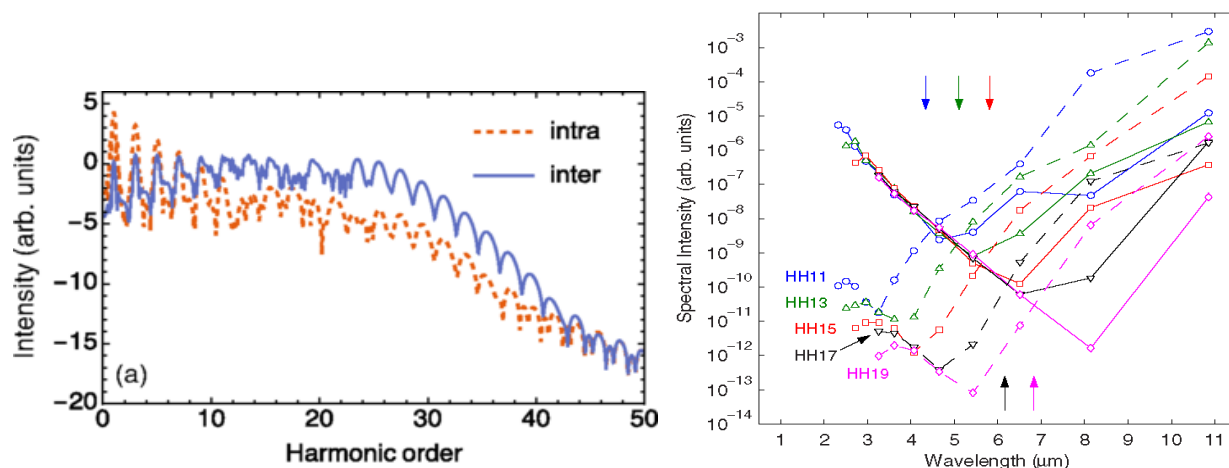


Рис. 9. (а) Сравнение вкладов внутризонного (пунктирная кривая) и межзонного (сплошная кривая) механизмов генерации гармоник высокого порядка в твёрдых телах. Гармоники низкого порядка в основном генерируются в результате внутризонных фототоков, а межзонный механизм отвечает за формирование плато [121]. (б) Зависимость интенсивности гармоник высокого порядка от длины волны импульса накачки, пунктирные линии – внутризонный механизм, сплошные линии межзонный, стрелками указана длина волны, для которой энергия соответствующей гармоники становится ниже ширины запрещённой зоны [123].

Для описания генерации высоких гармоник, с энергией фотона больше ширины запрещённой зоны, учёт одного лишь вынужденного движения электронов внутри зоны не всегда приводит к адекватному описанию, так как в этом случае необходимо принимать во внимание и влияние межзонных переходов. Эта проблема может быть решена при помощи нестационарного уравнения Шредингера или уравнения Блоха для полупроводников. Когда речь идёт о мощных лазерных полях, носители заряда часто рассматриваются как независимые частицы (или квазичастицы), а их взаимодействием с окружением пренебрегают. Гипотеза о «чистой» когерентной динамике носителей заряда на временах порядка нескольких фемтосекунд была сформулирована после экспериментов по исследованию явлений релаксации в полупроводниках, показавших, что время дефазировки T_2 варьируется в диапазоне от нескольких десятков до нескольких

сотен фемтосекунд [124–126]. В настоящее время широко доступны лазерные импульсы гораздо меньшей длительности, поэтому можно ожидать, что фазовая релаксация не окажет существенного влияния на когерентную динамику в течение промежутка времени, значительно короче значения T_2 . Релаксационные процессы существенно изменяют оптические свойства твёрдых тел и накладывают дополнительные требования на временные характеристики лазерных импульсов, необходимых для наблюдения определённых сверхбыстрых явлений. Основное требование заключается в том, чтобы время взаимодействия света с веществом было значительно меньше времени релаксации населённостей зон T_1 , а для явлений, чувствительных к фазе, оно также должно быть меньше времени дефазировки T_2 . Эти условия могут быть выполнены при использовании более коротких и мощных лазерных импульсов.

Однако, сравнение численных расчётов с последними экспериментальными данными по генерации гармоник высокого порядка в твёрдых телах [9,10,13,127] указывает на бóльшую значимость процесса дефазировки в сильном световом поле. Примечательно, что это же явление было экспериментально показано в опытах с двумерными материалами [128,129]. Эти результаты позволяют предположить, что межзонная поляризация оказывается переоцененной в приближении независимых частиц, а явления потери когерентности всё ещё важны и на масштабе времени в несколько фемтосекунд. Проблема завышенной межмодовой когерентности была решена феноменологически в модели матрицы плотности, где дефазировка учитывается в марковском приближении свободным параметром T_2 [10,13,106,120,130,131]. Для согласования теории с экспериментальными данными требовалось ввести значение времени T_2 порядка 1-3 фс. Под действием мощных лазерных импульсов носители заряда пробегают большую часть зоны Бриллюэна и формируют сильно неравновесное распределение населённостей, которое может простирается вплоть до нескольких зон проводимости и валентных зон. В таких условиях вероятность различных процессов рассеяния может быть существенно больше, чем в присутствии слабых полей.

Решение нестационарного уравнения Шрёдингера позволяет получить большое количество информации [120], однако, включение в него дополнительных описывающих дефазировку межэлектронных взаимодействий оказывается не такой простой задачей, как в случае решения уравнения Блоха для полупроводников. С другой стороны, для решения

этой задачи вместо нестационарного уравнения Шрёдингера могут быть применены более сложные методы, а именно нестационарная теория функционала плотности [132], подразумевающая решение нестационарного уравнения Коха-Шама [133]. Тем не менее, даже при использовании этого очень сложного подхода, выделение из результатов интуитивно понятных физических законов оказывается нетривиальной задачей.

В идеальной кристаллической решётке твёрдого тела электронный волновой пакет под действием постоянного электрического поля F_0 , как утверждает теорема Блоха [94], будет совершать поступательное движение в обратном пространстве, соответствующее колебательному движению в реальном пространстве. Частота осцилляций при этом равна $\omega_B = eF_0a/\hbar$, где e – элементарный заряд, a – постоянная решётки и $\hbar$ – приведённая постоянная Планка. И хотя осцилляции Блоха ранее наблюдались экспериментально в оптических решётках [134,135], применение этой идеи к традиционным решёткам оказывается затруднено из-за малого значения параметра решётки, низкого порога оптического пробоя и сверхбыстрого рассеяния, обнаруженного в твёрдых телах [136]. Используя мощные сверхкороткие импульсы терагерцового диапазона частот, группе Шуберта [10] удалось однозначно продемонстрировать генерацию широкополосного излучения гармоник высокого порядка в объёмном образце селенида галлия (GaSe) и провести временные измерения [11], которые показали, что динамические осцилляции Блоха и квантовая интерференция электронов лежат в основе их физической природы. В среднем инфракрасном диапазоне было продемонстрировано, что излучение гармоник высокого порядка, лежащее выше запрещённой зоны (вплоть до 25-го порядка), может быть получено [9,119,122] в результате воздействия на кристаллические образцы оксида цинка (ZnO) лазерными импульсами среднего ИК диапазона. Непертурбативное излучение гармоник высокого порядка в этом случае было интерпретировано как следствие внутризонного возбуждения, и впоследствии встроено в обобщённую столкновительную модель [12].

Одной из целей наших исследований и настоящей диссертационной работы является исследование сверхбыстрой динамики носителей заряда в твердых телах, перспективных для создания новых элементов оптоэлектроники, в поле электромагнитного импульса высокой напряженности, а также развитие новых подходов к таким исследованиям на основе генерации гармоник высоких порядков в твердых телах. Достижение данной цели

требует изучения внутризонного движения носителей зарядов и особенностей генерации излучения на новых частотах и переизлучения на падающей длине волны. Пятая глава диссертационной работы посвящена анализу непертурбативных нелинейно-оптических процессов, происходящих на петагерцовой несущей частоте, в частности, генерации гармоник высоких порядков из полупроводниковых материалов.

Таким образом, в настоящей главе показано, что несмотря на быстрое развитие методов генерации сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона различного уровня энергии, формирование предельно коротких волновых форм длительность порядка одного периода поля на различной центральной длине волны в среднем инфракрасном диапазоне остаётся актуальной и сложной задачей, требующей использования различных методов нелинейно-оптической компрессии и самокомпрессии в газовых и твердотельных средах в режиме свободного и волноводного распространения. Получение таких предельно коротких импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона необходимо для широкого класса задач, в том числе полностью оптической спектроскопии зонной структуры полупроводников и диэлектриков на основе явления генерации гармоник высокого порядка, а также для анализа и управления сверхбыстрой динамикой носителей заряда в твёрдых телах.

Глава 2. Экспериментальная техника и методика измерений

В данной главе описаны источники лазерного излучения и измерительные схемы, при помощи которых были получены экспериментальные результаты, представленные в главах 3 - 5 диссертационной работы. Параграф 2.1 посвящён описанию перестраиваемого источника фемтосекундных лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона микроджоулевого уровня энергии на основе титан-сапфирового лазерной системы. В параграфе 2.2 представлена иттербиевая килогерцовая лазерная система, формирующая сверхкороткие импульсы на центральной длине волны 3.1 - 3.7 мкм с энергией около 100 мкДж. Также в этой главе в параграфе 2.3 рассмотрены экспериментальные подходы для полной характеристики сверхкоротких импульсов среднего и ближнего инфракрасного диапазонов, использовавшиеся в настоящей работе для восстановления параметров предельно коротких импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона и мультиоктавного суперконтинуума. Эти методы основаны на стробировании исследуемого излучения с разрешением по частоте с применением различных нелинейных процессов (SHG FROG, FWM XFROG), а также на одном из вариантов техники прямого восстановления поля методом спектральной интерферометрии (SPIDER), в котором информация о фазе поля кодируется с помощью пространственной, а не частотной карты спектральной интерференции (X-SEA-F-SPIDER).

2.1 Генерация перестраиваемых сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона микроджоулевого уровня энергии на основе многофункциональной фемтосекундной Ti:Sapphire лазерной системы

Этот параграф посвящён подробному описанию многофункциональной килогерцовой титан-сапфировой лазерной системы, на которой были выполнены эксперименты по реализации полностью твердотельного перестраиваемого источника предельно коротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона, а также частично эксперименты по нелинейно-оптической спектроскопии зонной структуры полупроводниковых материалов. Основное преимущество этого лазерного комплекса — возможность получения сверхкоротких импульсов микроджоулевого уровня энергии в широчайшем

диапазоне длин волн, лежащем в ближнем и среднем инфракрасном диапазоне. Лазерная система состоит из задающего генератора, многопроходного/регенеративного усилителя чирпированных импульсов, многоканального оптического параметрического усилителя и генератора разностной частоты. В данном параграфе также описаны выполненные работы по оптимизации данной лазерной системы, позволившие значительно улучшить финальные параметры формируемого излучения в ближнем и среднем инфракрасном диапазоне.

Исходная схема лазерной системы представлена на Рис.10. Сформированные в Ti:Sapphire генераторе импульсы на центральной длине волны около 800 нм, энергией до 5 нДж и частотой повторения около 78 МГц растягиваются в стретчере, состоящем из дифракционной решётки и диэлектрических зеркал, до длительности порядка 100 пикосекунд. С помощью электрооптической ячейки Поккельса из них выделяется одиночный импульс, который затем заводится в восьмипроходный усилитель и сжимается в компрессоре, состоящем из пары дифракционных решёток. В результате на выходе многопроходного усилителя формируются импульсы длительностью порядка 60 фс на длине волны около 800 нм, с энергией до 0.8 мДж и частотой повторения 1 кГц.

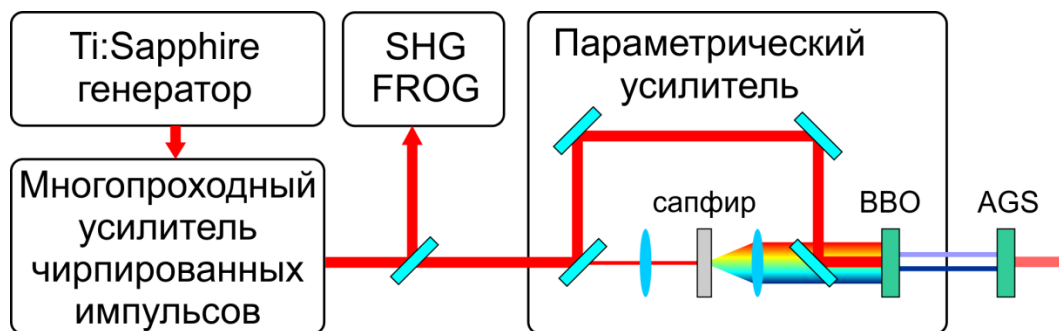


Рис.10. Схема лазерной установки, позволяющей генерировать сверхкороткие перестраиваемые по частоте импульсы в среднем инфракрасном диапазоне: BBO – кристалл бора бора бария, AGS – кристалл AgGaS₂.

Часть излучения после усиления выводилась из системы полупрозрачным зеркалом для контроля импульса, а также для дальнейшего использования её в процессе характеристики предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона в процессе четырёхволнового смешения. Основная же часть излучения из многопроходного усилителя (около 90% мощности) подвергалась дальнейшему преобразованию в оптическом параметрическом усилителе. Здесь из пучка выделялся

слабый блик (менее 1%), который фокусировался в плоскопараллельную пластинку из сапфира для формирования широкополосного излучения, используемого в качестве затравки в процессе параметрического усиления в нелинейном кристалле. Оставшееся излучение на длине волны 800 нм выступало в роли накачки. В результате параметрического процесса $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ затравочный сигнал усиливается на частоте ω_s , и генерируется «холостой» сигнал на частоте ω_i . Оптический параметрический усилитель был построен по двухпроходной схеме, нелинейно-оптическое преобразование осуществлялось в кристалле бета-бората бария (ВВО) толщиной 3 мм. Кристалл был установлен на юстируемый по углу столик, что позволяло изменять условия фазового синхронизма в параметрическом процессе и формировать перестраиваемые по длине волны импульсы. После второго каскада усиления импульсы сигнальной и холостой волн отфильтровывались от излучения накачки и выводились из оптического параметрического усилителя. В результате на выходе из усилителя имелись сигнальная и холостая волны, перестраиваемые в диапазоне 1150-1580 нм и 1620-2300 нм, соответственно.

На следующем этапе понижения частоты сигнальная и холостая волны смешивались в нелинейно-оптическом кристалле тиогаллата серебра (AgGaS_2) толщиной 2 мм для генерации в нём излучения на разностной частоте $\omega_{\text{MIR}} = \omega_s - \omega_i$. Для увеличения эффективности преобразования диаметры пучков уменьшались с помощью телескопа до размеров порядка 0.5 мм. Вращением кристалла ВВО в параметрическом усилителе осуществлялось изменение частот сигнальной и холостой волн, что в свою очередь приводило к изменению длины волны излучения на разностной частоте. После этого для достижения максимальной эффективности преобразования кристалл AGS устанавливался под определённым углом, обеспечивающим выполнение условий фазового согласования для выбранных длин волн. В результате на выходе генератора разностной частоты формируется импульсное излучение, перестраиваемое в диапазоне 3 – 15 мкм, при этом длительность импульсов составляет от 100 до 250 фс, а их энергия достигает 4.5 мкДж. Это излучение фильтруется от излучения накачки с помощью диэлектрического полосового фильтра с областью пропускания длин волн более 3 мкм и является исходным в экспериментах по компрессии излучения накачки в кристалле GaAs (Глава 3) и нелинейно-оптической спектроскопии зонной структуры поликристаллического образца селенида цинка (Глава 5).

Получению описанных в третьей главе диссертационной работы экспериментальных результатов во многом способствовала существенная модификация одной из подсистем лазерной системы, позволившая получить исходные импульсы среднего инфракрасного диапазона с меньшей длительностью и большей пиковой мощностью. Существенной модернизации был подвергнут оптический параметрический усилитель, преобразующий мощные импульсы накачки титан-сапфирового многопроходного усилителя в сигнальную и холостую волну, лежащие в диапазоне длин волн от 1300 до 2100 нм. Классическая схема с двумя проходами усиливаемого затравочного широкополосного излучения через один кристалл была заменена схемой с двумя отдельными кристаллами, что позволило получить дополнительные степени свободы при юстировке оптической схемы. Для формирования импульсов среднего инфракрасного диапазона с наибольшей пиковой мощностью в процессе генерации разностной частоты был произведён теоретический анализ, основанный на компьютерном численном моделировании нелинейно-оптического преобразования, позволивший определить оптимальные значения параметров оптического параметрического усилителя (Рис.11). Среди варьируемых параметров были энергия импульса накачки второго каскада параметрического усиления, задержка между импульсами накачки и сигнальной волны, а также задержка между импульсами сигнальной и холостой волн на входе в кристалл AGS, в котором осуществляется генерация разностной частоты. Вследствие дисперсии групповых скоростей в нелинейном кристалле, взаимодействующие импульсы распространяются с различной скоростью, что приводит к удлинению огибающей результирующего импульса и уменьшению его пиковой мощности.

Расчёты показали, что добиться генерации импульса с наиболее стабильными параметрами и при этом с максимальной пиковой мощностью можно, обеспечив задержку между сигнальной и холостой волнами в диапазоне 10 – 45 фс (Рис.11б). Однако, как следует из расчёта второго каскада параметрического усилителя, подкреплённого экспериментальными измерениями (Рис.11а), на выходе из кристалла ВВО при оптимальной его настройке, с учётом имеющейся максимальной энергии импульса накачки (500 мкДж), задержка между сигнальной и холостой волнами составляет порядка 90-100 фс (холостая волна опережает сигнальную). Это происходит, так как выбран процесс преобразования $e \rightarrow oe$ (825 нм $\rightarrow$ 1475 нм + 1872 нм).

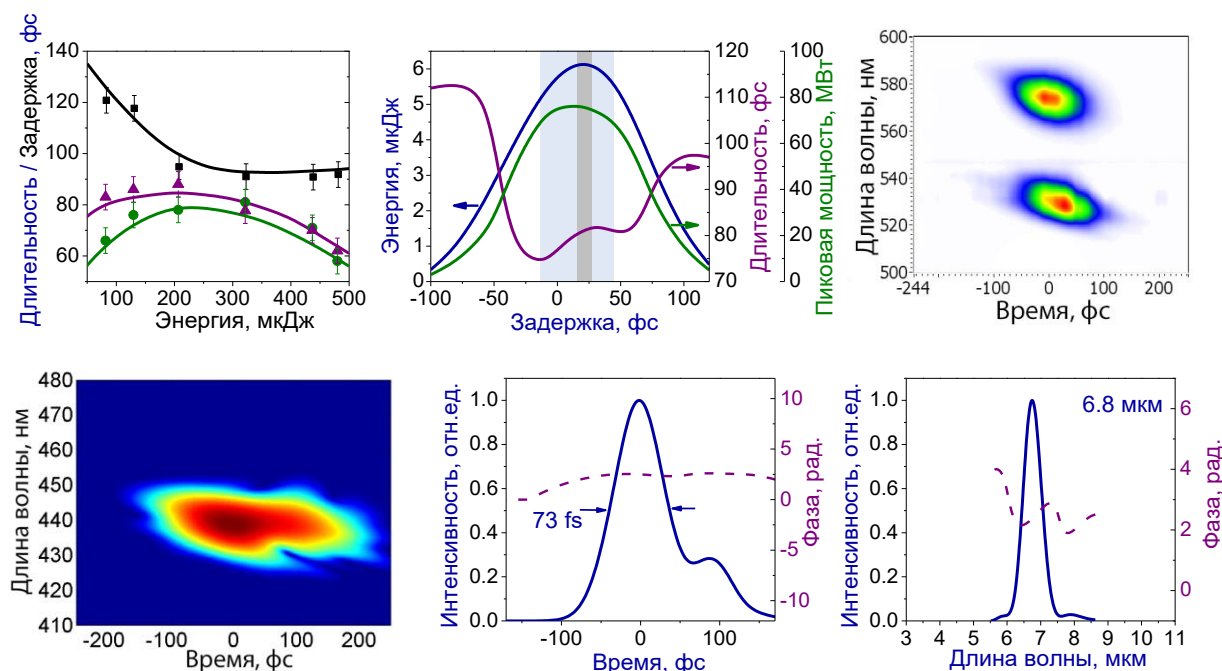


Рис.11. Оптимизация параметров лазерной системы для генерации наиболее мощного импульса среднего ИК диапазона. (а) Экспериментальные (точки) и теоретические (линии) зависимости длительности сигнального (фиолетовая), холостого (зеленая) импульсов из ОРА и задержки между ними (черная) от энергии накачки. (б) Теоретические зависимости энергии (синяя линия), длительности (фиолетовая) и пиковой мощности (зеленая) генерирующегося в АГС импульса на 6.8 мкм от задержки холостого импульса от сигнального. Светло-голубая полоса выделяет область задержек, соответствующих пиковой мощности ИК импульса в диапазоне более 90% от максимальной. (с) FWM XFROG спектрограмма сигнальной и холостой волн, записанные одновременно, перед кристаллом АГС – задержка между импульсами составляет 18 фс. (d, e, f) FWM XFROG спектрограмма (d), временная огибающая и фаза (e), спектр и спектральная фаза (f) ИК импульса из АГС на 6.8 мкм с энергией около 5.5 мкДж.

Таким образом, между нелинейными кристаллами ВВО и АГС необходимо внесение дополнительного временного сдвига, позволяющего перенести задержку в область оптимальных значений. Данный сдвиг можно осуществить двумя способами. В одном случае можно произвести пространственную фильтрацию импульсов сигнальной и холостой волн, внести требуемую задержку посредством удлинения оптического пути одного из них, затем снова свести импульсы вместе при помощи дихроичного зеркала. Однако такой метод сопряжён с серьёзными экспериментальными трудностями, как при первоначальной сборке системы, так и при последующей юстировке. Поэтому более выгодным в данных условиях является альтернативный способ изменения задержки, а именно внесение в пучок между нелинейными кристаллами некоторого оптического

элемента с известными дисперсионными свойствами, которые позволят осуществить требуемую задержку. В качестве такого материала может выступить стекло BK7, обладающее аномальной дисперсией групповых скоростей для длин волн более 1.3 мкм. Для решения этой задачи в оптический путь были внесены две линзы (собирающая и рассеивающая), которые с одной стороны позволили уменьшить поперечные размеры пучков на кристалле AGS, а с другой стороны, с учётом дихроичного зеркала, отрезающего остаток излучения накачки, позволили внести необходимую задержку между импульсами. Суммарная длина всех стеклянных элементов составила 11 мм, что привело к внесению разности хода и задержки сигнальной волны относительно холосто в 120 фс. Таким образом, в кристалле AGS сигнальный импульс приходит раньше холостого на 20-26 фс, что соответствует области генерации ИК излучения с наибольшей энергией (серая полоска на Рис.11b). На Рис.11с представлены результаты одновременного измерения сигнального и холостого импульсов посредством ЧВВ XFROG. Определённая по спектрограммам задержка составила 18 фс (сигнальная волна опережает холостую), что соответствует теоретическому расчёту и попадает в область значений, обеспечивающую максимальную пиковую мощность результирующего импульса на длине волны 6.8 мкм. Результаты характеристики этого импульса с энергией 5.5 мкДж (ЧВВ XFROG спектрограмма и восстановленные по ней огибающие и фаза) представлены на Рис.11d-f.

В процессе работы Ti:Sapphire лазерная система неоднократно модернизировалась для улучшения выходных параметров - увеличения мощности импульсов сигнальной и холостой волн параметрического усилителя и разностной частоты, улучшения поперечной моды пучков, повышение стабильности параметров излучения на разных временных масштабах. На момент проведения описанных в параграфе 4.2 и последних по времени экспериментов лазерная система состояла из нового фемтосекундного титан-сапфирового генератора с прямой диодной накачкой, регенеративного усилителя чирпированных импульсов и двухпроходного фемтосекундного оптического параметрического усилителя (Рис. 12). Выходной импульс регенеративного усилителя с энергией до 2.4 мДж на центральной длиной волны 790 - 810 нм разделяется на три реплики для генерации суперконтинуума в кристалле сапфира и усиления его в двух последовательных каскадах ОПУ на кристаллах ВВО толщиной 2 мм. Отношения мощностей реплик импульса накачки, параметры и геометрия пучков на обоих

кристаллах тщательно подбирались, что в результате позволило достичь в нашей оригинальной схеме оптического параметрического усилителя эффективности преобразования и качества выходных пучков сопоставимого с лучшими коммерческими системами того же класса. Это позволило получить перестраиваемое излучение на длинах волн 1100 - 1550 нм (сигнальная волна) и 1550-2200 нм (холостая волна) с энергиями до 350 мкДж и 200 мкДж и длительностями около 60 фс и 55 фс, соответственно.

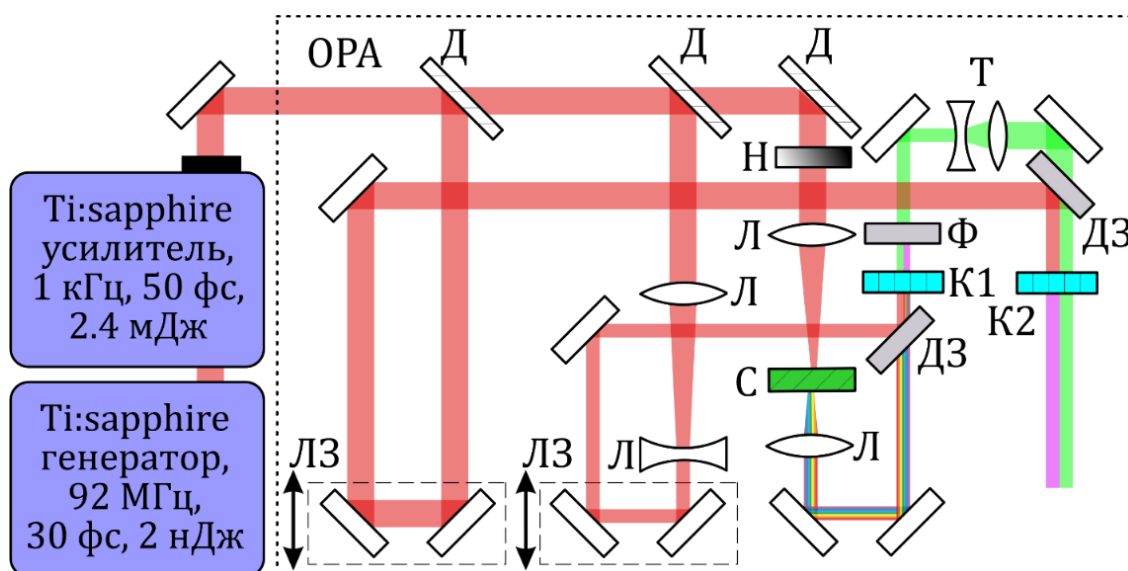


Рис. 12. Схема килгерцовой титан-сапфировой лазерной системы, состоящей из генератора с диодной накачкой, регенеративного усилителя chirпированных импульсов и двухпроходного фемтосекундного оптического параметрического усилителя. ЛЗ – линии задержки, Л – линзы, Д – делители пучка, Н – нейтральный фильтр, С – кристалл сапфира, ДЗ – дихроичное зеркало, Ф – пространственный фильтр, К1, К2 – кристаллы ВВО толщиной 2 мм, Т – телескоп.

Для генерации разностной частоты в модернизированной лазерной системе использовался кристалл селенида галлия толщиной 300 мкм, с просветлением на ближний и средний инфракрасный диапазон на передней и задней поверхностях, соответственно. Просветление позволило нивелировать основные трудности использования данного нелинейно-оптического кристалла, связанные с большим коэффициентом отражения из-за его высокого показателя преломления и невозможности вырезать образец вдоль произвольного направления относительно оптической оси кристалла. В результате изменения центральных длин волн холостого и сигнального импульсов, после их смещения в кристалле селенида галлия удастся получить перестраиваемые фемтосекундные импульсы в среднем инфракрасном диапазоне 3-10 мкм длительностью 70-100 фс с максимальной энергией более 25 мкДж на длине волны 5 мкм.

Созданная килогерцовая многофункциональная лазерная система позволила выполнить эксперименты по генерации предельно коротких импульсов ближнего инфракрасного диапазона в экспериментах с полым фотонно-кристаллическим волноводом, описанные в параграфе 4.2, с накачкой холостым импульсом ОПУ на центральной длине волны около 2 мкм, а также создать оптическую схему для широкополосной двумерной спектрохронографии, реализованной в среднем ИК-диапазоне, для исследования сверхбыстрой динамики молекулярной когерентности, а также сверхбыстрых процессов кинетики населенностей и обмена энергии между различными степенями свободы в широком классе сложных молекулярных систем [137]. Первые эксперименты с карбонильным комплексом кобальта позволили измерить двумерный корреляционный спектр колебательных линий, соответствующих различным СО колебательным модам, в диапазоне более 250 см^{-1} (Рис. 13).

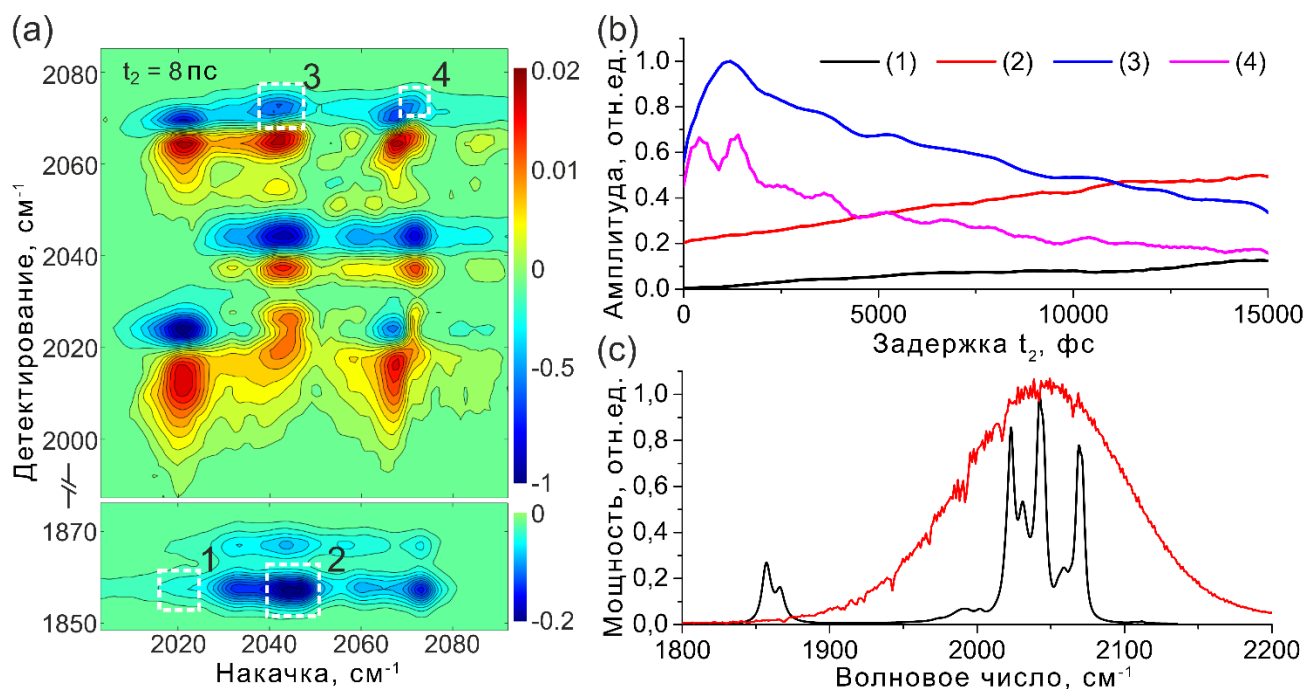


Рис. 13.(a) Двумерный инфракрасный спектр октакарбонила дикобальта измеренный для значения задержки между импульсами накачки и зондирования $t_2=8\text{ пс}$. (b) Зависимость амплитуды пиков (1)-(4) (обведены пунктирными квадратами на панели (a)) от задержки t_2 в диапазоне 0 – 15000 фс. (c) Фурье-спектр поглощения октакарбонилдикобальта (чёрная линия) и спектр ИК излучения накачки/зондирования (красная линия).

Исследуемый при комнатной температуре в растворе алканов октакарбонил дикобальта находится в трёх устойчивых состояниях, соответствующих разным изомерам [138], что приводит к возникновению недиагональных пиков в двумерных спектрах,

связанных как с перераспределением энергии внутри одного изомера, так и с изменением состояния молекулы и переходом её из одного изомера в другой уже после возбуждения колебания фемтосекундным лазерным импульсом. Корреляционный анализ временных зависимостей интенсивностей всех наблюдаемых диагональных и недиагональных пиков позволяет выявить направление и скорость протекания реакций, уточнить энергетические параметры состояний, а также идентифицировать влияние окружения молекулы на её колебательную динамику [137,138]. Эти результаты подтвердили высокую эффективность, универсальность и стабильность развитой системы.

2.2 Фемтосекундная иттербиевая килогерцовая лазерная система для генерации лазерных импульсов в области 3.1-3.7 мкм с энергией до сотен микроджоулей

Экспериментальные результаты, представленные в параграфах 4.1 и 5.2 диссертационной работы, посвящённые генерации мультиоктавного суперконтинуума в полом антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе, заполненном газом под высоким давлением, а также поляризационному анализу высших оптических гармоник в монокристаллическом полупроводниковом материале, были получены на иттербиевой лазерной системе. Она состоит из задающего генератора, регенеративного усилителя чирпированных импульсов и четырёхкаскадного оптического параметрического усилителя. За счёт более длинноволновой накачки данная лазерная система позволяет получить в холостой волне без дополнительной ступени понижения частоты фемтосекундные импульсы среднего инфракрасного диапазона на центральной длине волны 3.1 – 3.7 мкм с энергией до 100 мкДж, что на порядок превосходит энергию импульса на разностной частоте в титан-сапфировой системе.

В основе работы фемтосекундной задающей системы лежит концепция усиления чирпированных импульсов. В состав системы входят фемтосекундный генератор, устройство для увеличения длительности импульсов (четырёхпроходный стретчер), регенеративный усилитель и компрессор (Рис. 14). Импульсы фемтосекундного генератора на кристалле Yb:KGW с накачкой непрерывным излучением лазерного диода растягиваются во времени в стретчере, а затем поступают в регенеративный усилитель на основе кристалла Yb:CaF₂. Для повышения теплопроводности активной среды и

увеличения сечения поглощения и усиления кристалл охлаждается до температуры 110° К в криоохладителе замкнутого цикла. Для предотвращения конденсации влаги кристалл помещается в вакуумную камеру. Накачка лазерного кристалла осуществляется мощным InGaAs лазерным диодом, излучающем в непрерывном режиме. Встроенные в регенеративный усилитель ячейки Поккельса, служащие для впрыска и затем извлечения лазерных импульсов из регенеративного усилителя, управляются высокоскоростными генераторами задержек с типичными временами нарастания/убывания импульсов менее 4 пс. Время задержки между включением/выключением ячеек Поккельса управляется с точностью лучше 200 пс. Цифровой генератор задержек встроен в электронную систему управления.

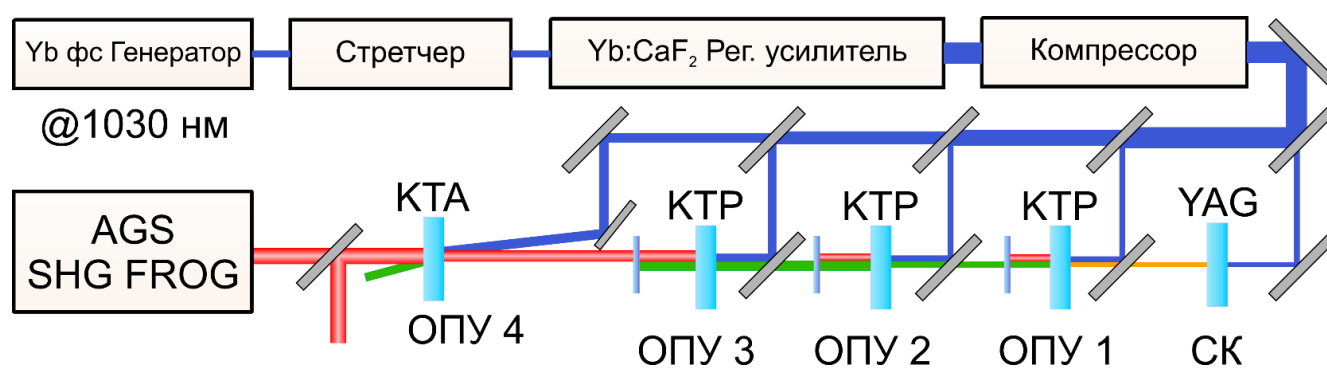


Рис. 14. Схема килогерцовой иттербиевой лазерной системы, состоящей из фемтосекундного генератора, регенеративного усилителя чирпированных импульсов и четырёхкаскадного оптического параметрического усилителя на кристаллах KTP и KTA.

После усиления и сжатия в компрессоре до длительности порядка 200 фс энергия лазерных импульсов составляет 7 мДж. Для накачки оптического параметрического усилителя используется порядка 1 мДж, в то время как остальные 6 могут использоваться в других оптических экспериментах независимо. Частота повторения импульсов на выходе регенеративного усилителя составляет 1 кГц, центральная длина волны равна 1030 нм, стабильность энергии менее 1.5 % RMS, качество пучка M^2 не хуже 1.2. Импульс с энергией порядка 1 мДж, входящий в ОПУ делится на 4 реплики, одна из которых служит источником генерации суперконтинуума для затравки, а остальные для накачки четырёх каскадов усиления фемтосекундного оптического параметрического усилителя. Суперконтинуум генерируется в недопированном кристалле алюмоиттриевого граната, обеспечивающем высокую спектральную яркость в области 1460 нм. Накачка каскадов усилителя на основе кристаллов KTP осуществляется 200-фс импульсами задающей

системы на длине волны 1030 нм. Первые три каскада ОПУ на нелинейно-оптических кристаллах КТР усиливают сигнальный импульс на длине волны 1500 нм. На выходе из третьего кристалла отфильтровывается импульс холостой волны с энергией порядка 6 мкДж и усиливается в четвёртом каскаде ОПУ на основе нелинейно-оптического кристалла КТА до энергии порядка 70-100 мкДж (Рис. 15b). Длительность импульса контролируется методом оптического стробирования с разрешением по частоте на основе явления генерации второй гармоники (SHG FROG) и составляет около 200 фс.

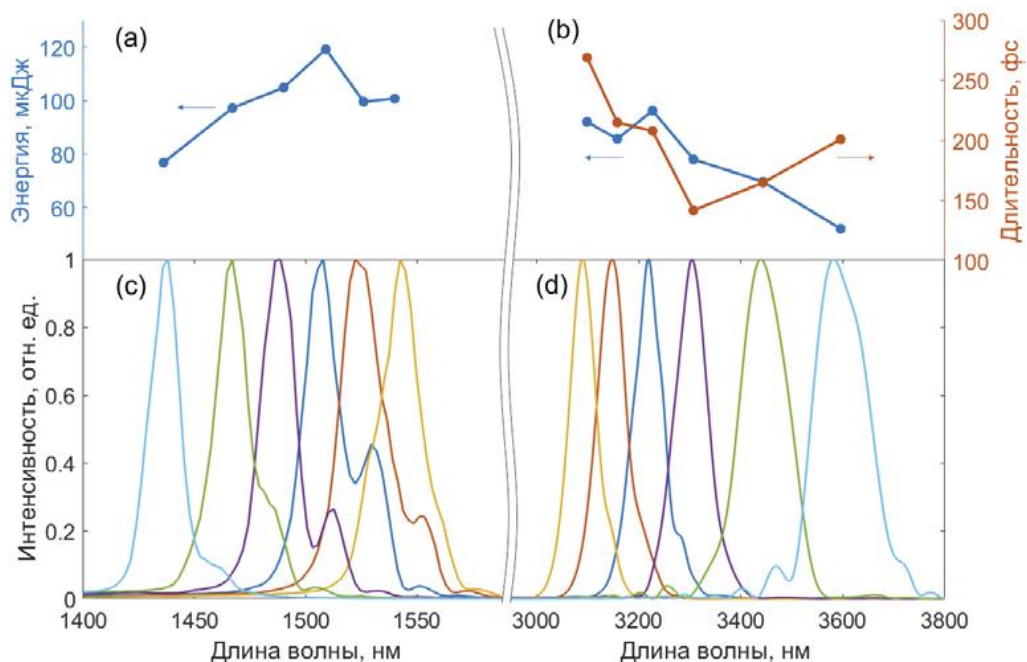


Рис. 15. Характеризация перестраиваемого источника субпикосекундных ИК импульсов на базе сигнальной (а, с) и холостой (b, d) волны четырехкаскадного оптического параметрического усилителя на кристаллах КТР и КТА по энергии (а, b), спектру (с, d) и длительности (b).

Подстройкой углов синхронизма всех четырёх нелинейно-оптических кристаллов и соответствующих задержек накачки на каждом каскаде усиления можно добиться плавной перестройки центральной длины волны генерируемых фемтосекундных импульсов в диапазоне 3.1 – 3.7 мкм. На Рис. 15 представлены экспериментальные перестроечные кривые для импульсов сигнальной (а) и холостой (с) волн на выходе четвёртого каскада оптического параметрического усилителя с зависимостью длительности холостого импульса от длины волны. Следует отметить также, что описанная лазерная система является задающей ступенью более крупного экспериментального комплекса, основная задача которого – генерация миллиджоулевых фемтосекундных импульсов на центральной длине волны 3.9 мкм с частотой повторения

20 Гц [68,69]. Для достижения этой цели импульс сигнальной волны на выходе третьего каскада усиления оптического параметрического усилителя растягивается в гризменном стретчере и смешивается с пикосекундной накачкой в трёхкаскадном оптическом параметрическом усилителе чирпируемых импульсов на кристаллах КТА с частотой повторения 20 Гц. В вошедших в материалы диссертационной работы исследованиях использовалась только килогерцовая часть лазерного комплекса. Также дополнительно был построен оригинальный четвёртый каскад усиления холостой волны на отдельном кристалле КТА, использующий в качестве накачки часть свободного излучения на выходе регенеративного усилителя на центральной длине волны 1030 нм.

Ещё одной дополнительной доработкой лазерной системы стало устройство активной стабилизации положения пучка в пространстве на основе автоматического юстируемого зеркала с обратной связью по изображению пучка на матрице кремниевой камеры. Полная длина оптического пути лазерных импульсов в описанной многокаскадной лазерной системе, состоящей из задающего генератора, регенеративного усилителя, компрессора и стретчера превышает десятки метров, и при небольших изменениях направления распространения излучения, связанных с флуктуациями температуры воздуха, а также со сдвигом и тепловой деформацией различных оптических элементов на начальном отрезке пути, возникают значительные смещения пучка на последних этапах преобразования, что в свою очередь сказывается на стабильности параметров выходящего излучения, таких как длительность, энергия, размер и направление распространения лазерного пучка. Выполняемые на данной лазерной системе эксперименты включают в себя оптические преобразования импульсов с высокой степенью нелинейности. Например, режимы солитонной самокомпрессии фемтосекундных импульсов очень чувствительны к начальным параметрам сжимаемого импульса, и наилучшая компрессия достигается только в небольшом диапазоне параметров излучения для определенной конфигурации компрессора; явление генерации оптических гармоник высшего порядка в полупроводниковых материалах показывает высокую степенную зависимость от пиковой мощности излучения накачки. Также характеристика предельно короткого импульса в среднем ИК диапазоне методом измерения XFROG карты при взаимодействии с опорным импульсом в воздухе, требует некоторого времени для сканирования по их относительной задержке, а для точной настройки компрессора необходимо осуществить характеристику большого числа

импульсов с различными входными параметрами для различных положений нелинейной среды и нескольких наборов пластинок для компенсации остаточной фазы. Таким образом, получение представленных в главах 4 и 5 экспериментальных результатов возможно лишь в условиях высокой стабильности параметров лазерного излучения на протяжении длительного времени.

Требуемая стабильность на больших временных масштабах была достигнута в наших экспериментах за счет добавления в лазерную установку системы активной стабилизации положения лазерного пучка на входе в оптический параметрический усилитель. В основе принципа работы системы стабилизации лежат непрерывное определение положения пучка в двух контрольных точках при помощи камер и автоматическая коррекция положения пятна на камерах при помощи управляемого поворотного зеркала. В состав реализованной системы входят юстируемые оправы для зеркал с пьезо-шаговыми поворотными двигателями «New Focus 8821» производства компании Newport. Данные оправы позволяют автоматически поворачивать зеркало независимо по двум осям с шагом 0.7 микрорадиан в диапазоне до 10 градусов. Каждая оправа оборудована двумя двигателями (x и y оси), и две такие оправы позволяют однозначно зафиксировать положение и направление лазерного пучка в пространстве: прямая однозначно проводится через две точки. Для сопряжения данных оправ с персональным компьютером используется контроллер «8742-4» фирмы Newport, позволяющий одновременно устанавливать связь с четырьмя пьезо-шаговыми двигателями. Обратная связь на аппаратном уровне обеспечивается двумя обычными кремниевыми web-камерами Logitech C270 со снятым объективом. Для реализации наиболее эффективного алгоритма коррекции положения первая камера расположена максимально близко к второму автоматизированному зеркалу - на неё попадает блик, отражающийся под небольшим углом от первой полуволновой пластинки аттенюатора, позволяющего изменять энергию реплики импульса накачки, используемого для генерации затравочного суперконтинуума. Вторая камера для большей чувствительности системы отнесена максимально далеко: на неё падает пучок накачки после отделения от него последней реплики импульса.

Программное обеспечение для управления системой стабилизации было разработано в нашей лаборатории и написано в среде программирования LabView. В программе

реализован наиболее общий подход к управлению зеркалами, не зависящий от того, под какими углами ориентированы камеры относительно автоматизированных оправок зеркал. Для коррекции положения необходимо предварительно осуществить автоматическую калибровку аппаратной части, в процессе которой программа выполняет последовательное смещение каждой из четырёх юстировочных ручек на фиксированное количество шагов и определит соответствующий отклик положения центров масс по обоим осям обеих камер. Движение будет выполнено каждой ручкой оправы в обе стороны, так как используемые пьезошаговые двигатели показывают существенно отличающиеся величины шага при движении в разные стороны. Таким образом определяются две матрицы связи из 16 коэффициентов размерности 4×4 , соответствующие двум направлениям движения. Далее вычисляется обратная матрица, что равносильно решению системы из четырёх линейных уравнений с четырьмя неизвестными, и результат умножается на текущий вектор отстройки положений центров масс для определения необходимого смещения каждой из четырёх юстировочных ручек. Такой метод позволяет достаточно точно скорректировать смещение пучка по обеим камерам за одну операцию. Однако необходимо учесть, что размер шага при движении пьезо-шагового двигателя не является постоянной величиной, поэтому в программном обеспечении применяется итерационный подход: вычисление вектора смещений и движение происходит до тех пор, пока смещение пучка по камерам относительно целевого положения не станет меньше некоторого определённого порога. Данное программное обеспечение рассчитано на коррекцию медленных дрейфов пучка в оптическом параметрическом усилителе при условии быстрого отклика на юстировку, при котором использование ПИД-алгоритма нецелесообразно, и достаточно линейной коррекции положения.

На Рис.16 представлены результаты работы системы стабилизации положения лазерного пучка в пространстве под управлением собственного программного обеспечения. Показаны зависимости координат центра масс пучка на одной камере от времени в режиме свободного функционирования (с отключённой стабилизацией) и при включённой автоматической коррекции положения, а также соответствующие им зависимости мощности импульса холостой волны на выходе из оптического параметрического усилителя.

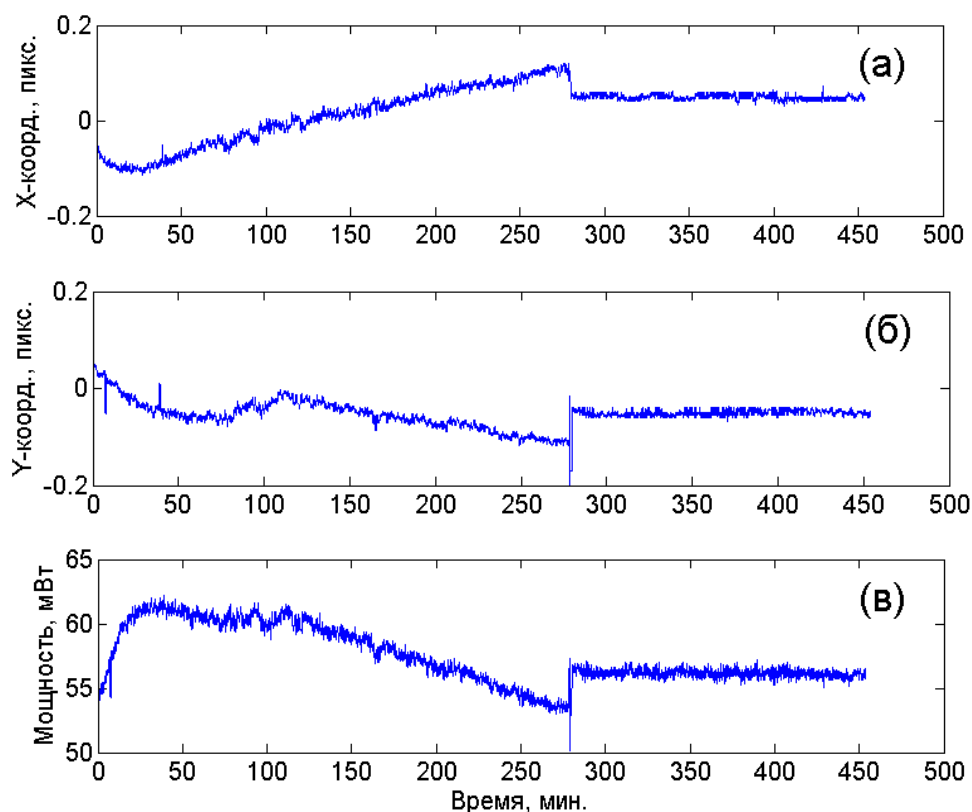


Рис.16. Зависимости координат центра масс пятна на камере (а,б) от времени при выключенной и включённой автоматической коррекции положения, а также соответствующие зависимости мощности импульса холостой волны (в) на выходе из оптического параметрического усилителя.

Выполненная модернизация лазерной системы позволила значительно повысить стабильность параметров выходного излучения, обеспечив возможность качественной и достоверной характеристики излучения мультиоктавного суперконтинуума, сформированного в результате нелинейно-оптического преобразования, высокочувствительного к флуктуациям начальной энергии, а также сделала возможным проведение длительных измерений слабых спектров высоких оптических гармоник с большими временами накопления сигнала.

Таким образом, имеющиеся в распоряжении научной группы и использовавшиеся в экспериментах лазерные системы, описанные в параграфах 2.1 и 2.2, позволяют формировать сверхкороткие фемтосекундные лазерные импульсы в широком спектральном диапазоне с различными длительностями и энергиям. Проведённая в процессе работы модернизация и оптимизация различных узлов лазерных систем позволила повысить их стабильность и улучшить выходные параметры излучения: энергия, длительность и диапазон перестройки центральной длины волны.

2.3 Методы XFROG и SPIDER характеристики предельно коротких импульсов в ближнем и среднем спектральном диапазоне длительностью порядка одного периода поля

Для полной характеристики импульса на длине волны около 800 нм использовался метод оптического стробирования с разрешением по частоте (Frequency Resolved Optical Gating – FROG) на основе генерации суммарной частоты, реализованный в неколлинеарной схеме [139]. На выходе из многопроходного усилителя импульс делился на две равные части, одна из которых проходила линию задержки, управляемую компьютером, после чего обе части фокусировались и сводились на нелинейном кристалле. Для этих целей использовался тонкий (50 мкм) кристалл ВВО, обеспечивающий выполнение условия фазового синхронизма на центральной длине волны 800 нм в достаточно большом диапазоне углов падения для сфокусированного излучения с шириной спектра около 20 нм. Вторые гармоники, генерирующиеся от каждой реплики импульса в отдельности, и излучение на суммарной частоте выходили из кристалла под разными углами, что позволяло выделить полезный сигнал диафрагмой для дальнейшего детектирования его спектра компактным спектрометром «OceanOptics». Получающаяся при сканировании задержки между импульсами спектрохронограмма восстанавливалась с помощью итерационного алгоритма (Рис. 17).

Методы характеристики спектральной фазы сверхкоротких лазерных импульсов, широко применяемые в области ближнего инфракрасного спектра, трудно распространить на область среднего инфракрасного диапазона в связи с отсутствием дешёвых и эффективных детекторов и нелинейно-оптических материалов, необходимых для равномерной ω -конверсии излучения в широком спектральном диапазоне (переноса инфракрасного излучения в удобный для исследования спектральный диапазон). Принципиально для характеристики импульсов в среднем инфракрасном диапазоне также можно использовать методику FROG на основе генерации суммарной частоты в нелинейном кристалле [140]. В этом случае для анализа излучения в диапазоне длин волн 2 - 7 мкм обычно используется кристалл тиогаллата серебра (AgGaS_2 , AGS), а для области 7 - 15 мкм кристалл селенида галлия (GaSe). Однако, при использовании данного метода в низкочастотном диапазоне, длины волн второй оптической гармоники также оказываются в среднем ИК диапазоне, что сильно затрудняет детектирование слабых нелинейно-оптических сигналов [141], а для выполнения условий фазового синхронизма

для спектра шириной в октаву требуются кристаллы толщиной порядка нескольких десятков микрон [60], что помимо трудности реализации приводит к низкой эффективности преобразования.

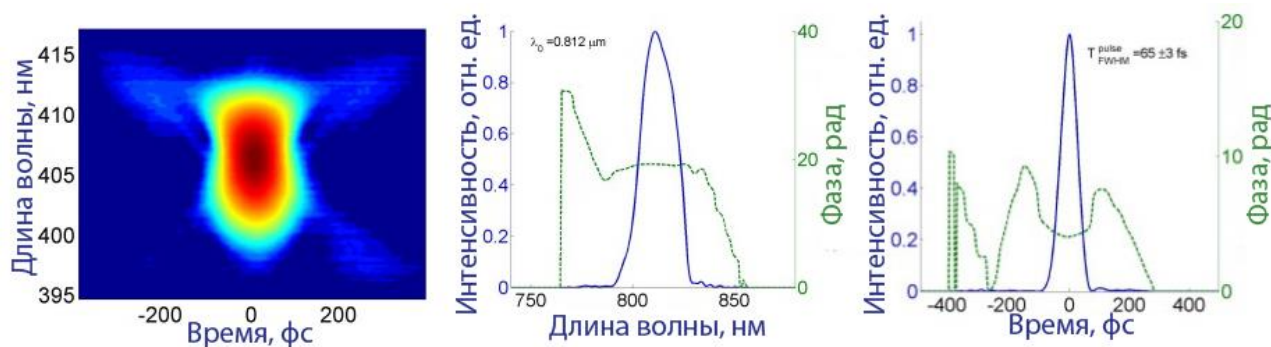


Рис. 17. Типичная SHG FROG-спектрограмма и восстановленные по ней огибающая и спектр импульса на выходе многопроходного усилителя. Измеренная длительность импульса – (65 ± 3) фс.

Проблема переноса инфракрасного излучения в удобный для исследования спектральный диапазон (ир-конверсии) может быть решена посредством использования других нелинейных процессов, отличных от генерации второй гармоники, а также смешением исследуемого излучения с некоторым опорным импульсом на другой (как правило, на меньшей) длине волны. В нашей работе мы использовали технику XFROG, в основе которой заложено четырёхволновое смешение исследуемого сигнала в воздухе с опорным излучением [78,142]. Для этого генерируемые в кристалле AGS импульсы смешивались с импульсами, выходящими из многопроходного усилителя длительностью 45 фс на длине волны 810 нм в атмосферном воздухе. В газе, как в любой среде обладающей кубической нелинейностью, в результате четырёхволнового взаимодействия происходит генерация излучения на новых частотах: $\omega_{\text{FWM}} = 2\omega_p \pm \omega_d$, где знаки плюс и минус соответствуют генерации суммарной и разностной частоты. Такой процесс повышения частоты излучения позволяет отобразить спектр в среднем инфракрасном диапазоне в спектральное окно шириной всего несколько десятков нанометров в видимом диапазоне, в котором доступны дешёвые и эффективные кремниевые приёмники излучения. Весь диапазон перестройки нашей лазерной системы от $\lambda_1 = 3$ мкм до $\lambda_2 = 15$ мкм с помощью четырёхволнового процесса в воздухе с использованием импульсов накачки на длине волны 810 нм удаётся отобразить в видимый диапазон частот с шириной окна всего $\Delta\lambda_{\text{FWM}} = \lambda_{\text{FWM1}} - \lambda_{\text{FWM2}} = 52$ нм. Эта особенность методики положительно

выделяет ее по сравнению с техникой характеристики импульсов, основанной на удвоении частоты в кристаллах, при которой спектр анализируемого импульса $\Delta\omega$ отображается на частотный интервал в два раза шире первоначального – $2\Delta\omega$.

Кроме того, выбранная нами методика характеристики обладает другими преимуществами. А именно, четырёхволновое взаимодействие в слабодисперсионной газовой среде обеспечивает отсутствие временного растягивания импульсов в процессе их взаимодействия в отличие от стандартной техники XFROG, в которой обычно используются квадратичные нелинейно-оптические процессы в кристаллах [143]. Слабая дисперсия газов также помогает поддерживать сверхширокую частотную область фазового согласования ЧВВ процессов, позволяя анализировать сверхкороткие импульсы в невероятно широком спектральном диапазоне. Длина взаимодействия в наших экспериментах соответствовала перетяжке излучения на 800 нм около 0.3 см, что намного меньше когерентной длины процесса в воздухе 3 - 5 см в диапазоне 3 - 11 мкм (Рис. 18б). Длина поглощения больше, чем длина когерентности, поэтому не вносит заметный вклад при формировании нелинейного сигнала. Предложенная и реализованная методика XFROG особенно хорошо применима к сверхкоротким импульсам в среднем ИК диапазоне, т.к. позволяет избежать сильного поглощения кристаллов в этом диапазоне.

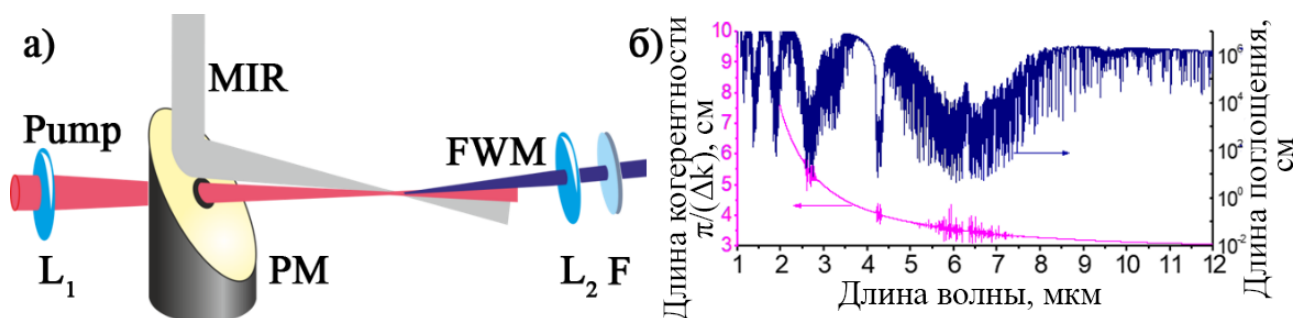


Рис. 18. (а) Схема метода характеристики импульса среднего инфракрасного диапазона (MIR) XFROG на основе четырёхволнового взаимодействия (FWM) с излучением накачки (Pump) в газе. L_1 , L_2 – линзы, PM – параболическое зеркало с отверстием, F – фильтр высоких частот. (б) Длина фазового синхронизма ЧВВ (розовая кривая) и длина поглощения (синяя кривая) излучения среднего ИК диапазона в воздухе.

В схеме эксперимента импульсы среднего ИК диапазона совмещались с излучением из многопроходного усилителя (длина волны 810 нм и энергия 30 мкДж) с помощью позолоченного параболического зеркала с отверстием (Рис. 18а). Сигнал ЧВВ генерировался в геометрии скрещенных пучков, затем коллимировался линзой из

оптического стекла BK7 с фокусным расстоянием $f = 7.5$ см, отделялся от пучков ИК излучения набором подходящих фильтров и детектировался спектрометром видимого диапазона «Ocean Optics». Третья оптическая гармоника на длине волны 270 нм от излучения 810 нм эффективно подавлялась за счет поглощения в стекле коллимирующей линзы, само излучение накачки отсекалось оптическим фильтром высоких частот.

В наших экспериментах наблюдались оба описанных выше процесса четырехволнового взаимодействия – генерация суммарной и разностной частоты. Полученные от каждого из них спектрограммы были симметричны относительно длины волны 404 нм и несли в себе эквивалентную информацию, так как оба процесса используют одни и те же входные оптические поля. Поэтому в наших измерениях предпочтение было отдано более эффективному процессу генерации разностной частоты $\omega_{\text{FWM}} = 2\omega_p - \omega_d$. Далее во всех измерениях, анализирующих временную структуру импульсов методом FWM XFROG, мы ограничились именно этим четырёхволновым процессом. Непосредственное измерение спектра излучения в среднем ИК диапазоне мы осуществляли при помощи автоматизированного монохроматора со сменными дифракционными решётками на 75, 150 или 300 штрихов на миллиметр. Излучение на выходе из монохроматора детектировалось пироэлектрическим детектором, соединённым с синхронным усилителем (Lock-in amplifier) или устройством сбора данных NI 6356 для синхронного с лазерной системой выделения импульса с высоким соотношением сигнал/шум. При необходимости измерения спектров наиболее слабых импульсов среднего инфракрасного диапазона применялся МСТ-детектор, охлаждаемый жидким азотом. Полученные спектры использовались для контроля результатов восстановления огибающей и фазы, полученных в XFROG измерениях.

Основным преимуществом описанного метода характеристики при помощи смещения в газе исследуемого излучения с опорным импульсом является ширина спектрального диапазона, в котором выполняются условия фазового синхронизма, простирающегося в ближнем и среднем инфракрасном диапазоне, а также отсутствие нелинейного кристалла, чью роль выполняет непосредственно газовая среда. Однако более высокий порядок нелинейности процесса четырёхволнового смещения приводит к более высоким требованиям, накладываемым на минимальную пиковую мощность измеряемого и опорного импульса. Временное разрешение данного метода также существенно зависит

от длительности опорного импульса, которая не должна значительно превышать длительность исследуемого излучения для минимизации ошибки восстановления.

В условиях отсутствия доступных в эксперименте по формированию предельно коротких импульсов в полых фотонно-кристаллических волноводах (Глава 4) достаточно коротких опорных импульсов для эффективного применения метода характеристики, основанного на четырёхволновом смешении в газе, нами также был реализован более современный метод характеристики на основе техники прямого восстановления поля методом спектральной интерферометрии (SPIDER) [144]. В реализованной в экспериментах схеме прямого измерения поля (Рис. 19) информация о фазе поля кодируется с помощью пространственной, а не частотной карты спектральной интерференции (X-SEA-F-SPIDER). Такой подход позволяет существенно уменьшить ошибки и избежать многих артефактов при восстановлении структуры поля сверхкоротких импульсов [145,146].

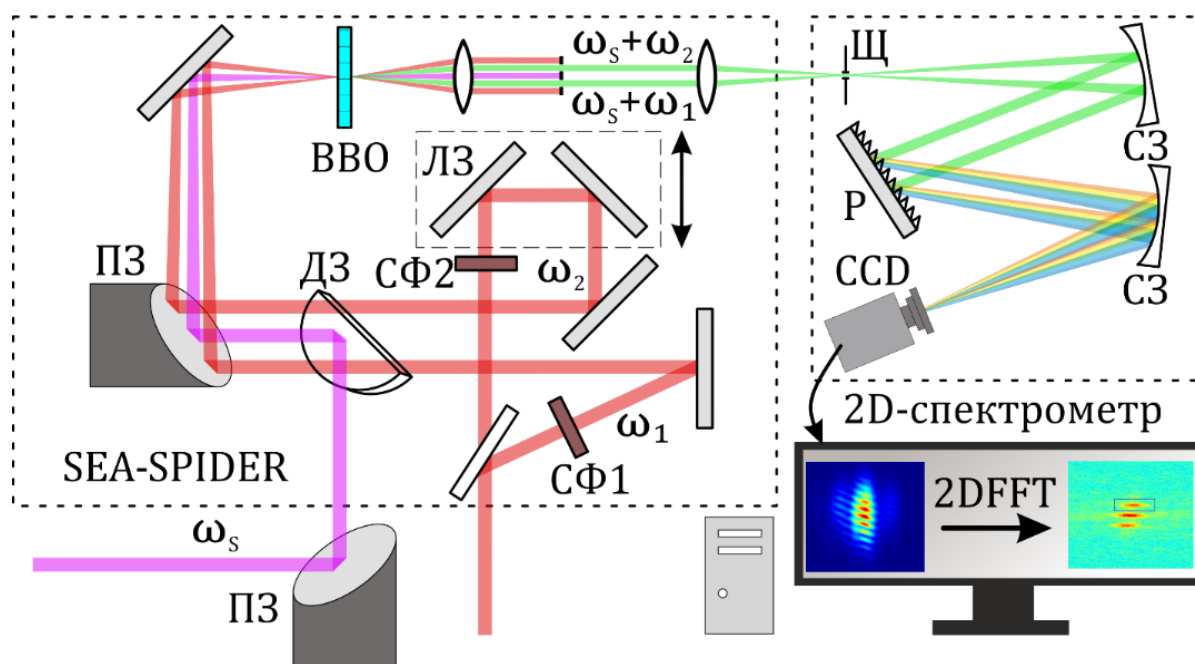


Рис. 19. Характеризация светового поля с помощью пространственной карты спектральной интерференции: ПЗ – параболические зеркала, ДЗ – зеркало D-формы, СФ1, СФ2 – узкополосные спектральные фильтры, пропускающие частоты ω_1 и ω_2 , ЛЗ – линия задержки, ВВО – нелинейный кристалл, Щ – щель спектрометра, СЗ – сферические зеркала, Р – дифракционная решетка, CCD – CCD-камера с кремниевой матрицей.

На вход схемы, реализующей характеристику поля сверхкороткого импульса, подается исследуемое излучение из световода ω_{IR} , а также пробный импульс, получаемый

напрямую из регенеративного усилителя (Рис. 19). Пробное излучение разделяется на два плеча, в каждом из которых расположены узкополосные фильтры (NF1,2, #64-258, Edmund Optics) с центральной длиной волны 808 нм и шириной полосы пропускания 3 нм, выделяющие излучение на длинах волн $2\pi c/\omega_{1,2} = 800$ нм и 805 нм за счет поворота фильтров. Это позволяло управлять необходимым спектральным сдвигом $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ между пробными импульсами, распространяющимися в разных плечах. Исследуемое ИК излучение перестраивается с торца волновода на кристалл ВВО толщиной 20 мкм (ВВО на рис. 3) при помощи отражательной $4f$ системы (ПЗ на Рис. 19) с увеличением в 1.5 раза. Для того чтобы избежать возможность оптического пробоя кристалла и нежелательных нелинейных эффектов в нем, ИК импульсы ослаблялись при отражении от передней поверхности CaF_2 клина, обеспечивающего коэффициент отражения около 7.5%.

В результате нелинейного взаимодействия в кристалле ВВО, формируется пара импульсов на суммарных частотах $\omega_{\text{IR}} + \omega_1$ и $\omega_{\text{IR}} + \omega_2$. Неколлинеарная геометрия преобразования (~5 градусов между измеряемым и пробными пучками) необходима для наблюдения пространственной интерференции, а также позволяет использовать пространственную фильтрацию (Рис. 19) для выделения излучения на суммарных частотах $\omega_{\text{IR}} + \omega_1$ и $\omega_{\text{IR}} + \omega_2$. Изображение интерференционной картины перестраивается с нелинейного кристалла на щель оригинального спектрометра при помощи отражательной $4f$ системы, состоящей из параболических зеркал с фокусным расстоянием 5 см (PM3) и 10 см (PM4). Спектрометр состоит из серебрянных сферических зеркал с фокусным расстоянием 10 см (СЗ на Рис. 19) и дифракционной решетки с плотностью штрихов 300 шт/мм. Увеличение пучков в спектрометре необходимо для разрешения полос пространственной интерференционной картины при помощи CMOS-камеры (Thorlabs, CS895MU, 2160x4096 пикселей).

Восстановление поля производится на основе анализа интерференционной картины двух разложенных по спектру приходящих на камеру пучков, получаемых в результате ур-конверсии $\omega_1 + \omega_{\text{IR}}$ и $\omega_2 + \omega_{\text{IR}}$. На интерферограммах можно различить более десяти полос, что достаточно для применения алгоритма восстановления спектральной фазы. Необходимо выделить постоянную и осциллирующую компоненты интерференционной картины, для разделения которых достаточно применить одномерное преобразование Фурье вдоль пространственной координаты, однако двумерное преобразование Фурье

позволяет уменьшить количество шумов. На карте Фурье образа присутствуют три пика, центральный из которых соответствует постоянной (DC) компоненте, то есть спектральной интенсивности $I_{DC} = |E_1^2|^2 + |E_2^2|^2$, а два боковых пика отвечают за осциллирующие (AC) компоненты $I_{AC} = |E_1||E_2| \cos(\pm(\varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega) - \Delta K))$, где $E_{1,2}$ поля пучков ир-конверсии на частотах $\omega_1 + \omega_{IR}$ и $\omega_2 + \omega_{IR}$, $\varphi(\omega)$, искомая спектральная фаза ИК излучения, $\Omega = \omega_1 - \omega_2$, разница частот двух полей накачки, ΔK , геометрическая разница оптических плеч двух пучков, которая может быть вычислена независимо при калибровочном измерении $\Omega = 0$: $I_{AC}^0 = |E_1||E_2| \cos(\pm\Delta K)$.

Для восстановления спектральной интенсивности ИК излучения $I(\omega)$ и разности фазы $\Delta\varphi(\omega) = \varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega)$ необходимо поочередно выделять при помощи цифрового прямоугольного фильтра пики DC и AC, после чего произвести обратное двумерное преобразование Фурье. Восстановление спектральной фазы происходит при вычислении $\varphi(\omega) = \int \Delta\varphi(\omega) d\omega / \Omega$ вдоль каждой пространственной компоненты. В итоге удастся получить информацию о пространственном распределении мощности и спектральной фазы ИК излучения вдоль одной из координат пучка суперконтинуума, генерируемого на выходе полого световода.

На Рис. 20а представлены спектр и спектральная фаза импульса холостой волны на выходе оптического параметрического усилителя, определённые двумя описанными выше методиками - методом оптического стробирования с разрешением по частоте на основе генерации второй гармоники (SHG-FROG) с использованием 50 мкм кристалла ВВО и X-SEA-F-SPIDER на 20-ти микронном кристалле ВВО. Профиль спектральной фазы, изображённый синим цветом, восстановлен с помощью метода спектральной интерферометрии, в то время как красным отображены результаты измерений методом SHG-FROG. На Рис. 20б производится сравнение соответствующих временных огибающих импульса: синяя получена путем преобразования Фурье спектра интенсивности, представленного на Рис. 20а, красная – получена в результате характеристики холостой волны ОПУ методом SHG-FROG. Произведенное сравнение показывает, что результаты характеристики сверхкоротких импульсов на основе этих двух методик совпадают с высокой точностью.

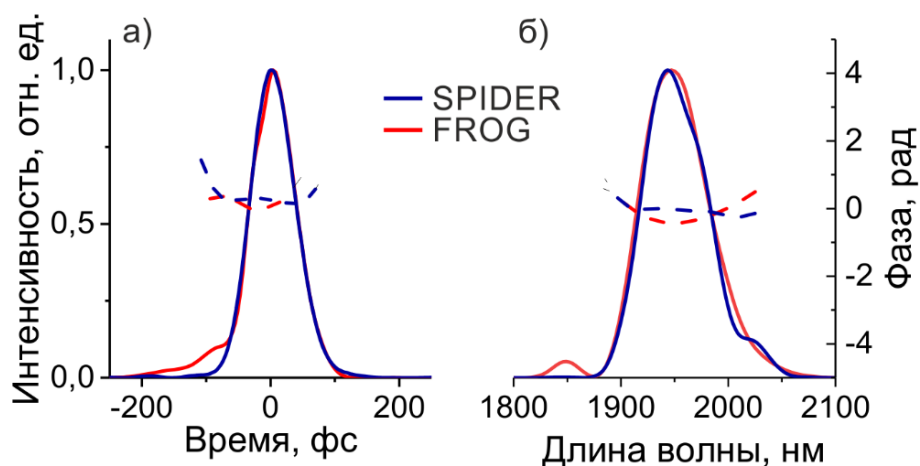


Рис. 20. (а) Временная огибающая (сплошная кривая) интенсивности и фаза (пунктирная кривая) импульса холостой волны на выходе оптического параметрического усилителя, восстановленная с помощью метода спектральной интерферометрии (синие кривые) и оптического стробирования с разрешением по частоте на основе генерации второй гармоники (красные кривые) и (б) соответствующие им спектральная интенсивность (сплошная кривая) и спектральная фаза (пунктирная кривая) импульса.

Экспериментальная реализация описанного метода характеристики предельно коротких импульсов при помощи пространственной картины спектральной интерференции была выполнена в нашей работе с использованием кристалла ВВО толщиной 20 мкм на миллиметровой кварцевой подложке. Материал нелинейного кристалла прозрачен для излучения в ближнем инфракрасном диапазоне вплоть до длины волны порядка 2.3 мкм, и применение его для ир-конверсии излучения с большей длиной волны, в том числе и в интересующем нас среднем инфракрасном спектральном диапазоне, ограничено наличием поглощения как самого кристалла, так и подложки, на которой он выращивается. Однако данное ограничение может быть преодолено выбором подходящего нелинейного кристалла для конкретного исследуемого спектрального диапазона. В работе [146] рассмотрен вопрос о возможности распространения использованного нами метода на более длинноволновый диапазон вплоть до 10 мкм (Рис. 21) при использовании вспомогательного излучения на центральной длине волны 1030 нм, соответствующей иттербиевым лазерным системам.

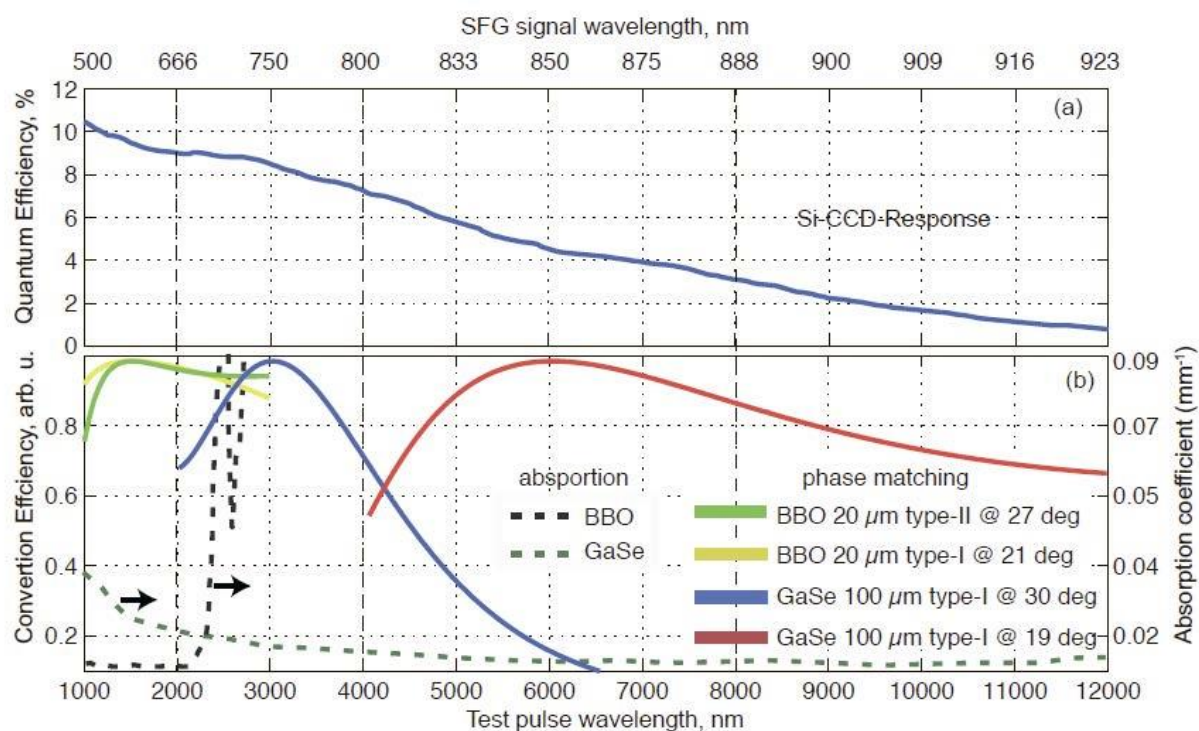


Рис. 21. Расчёт условий фазового синхронизма для процесса генерации суммарной частоты исследуемого излучения среднего инфракрасного диапазона с квазимонохроматическим опорным импульсом на длине волны около 1030 нм в кристаллах BBO и GaSe в различных спектральных областях; (a) отклик кремниевой ПЗС матрицы для результирующего сигнала в видимом диапазоне; (b) кривая фазового синхронизма для 20 мкм кристалла BBO и 100 мкм кристалла GaSe под различными углами. Пунктирной линией показано поглощение кристаллов [146].

Из представленных на Рис. 21 зависимостей следует, что метод характеристики, основанный на генерации суммарной частоты, может быть успешно использован для исследования мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких импульсов в среднем инфракрасном диапазоне при смещении его с опорными импульсами на длине волны около 1030 нм, соответствующей излучению иттербиевых лазерных систем, в кристалле GaSe толщиной около 100 мкм. Селенид галлия широко применяется в задачах формирования и характеристики инфракрасного и терагерцового излучения, в том числе и в нашей титан-сапфировой лазерной системе в качестве нелинейного кристалла для генерации разностной частоты на выходе оптического параметрического усилителя. Использование кристалла GaSe в процессах генерации суммарной частоты с опорным импульсом на длине волны 800 нм из более распространённых в настоящее время титан-сапфировых лазерных систем осложнено тем, что в результате ир-конверсии спектр излучения выходит за границы прозрачности кристалла. В то же время, излучение на

центральной длине волны около 1000 нм в титан-сапфировых системах относительно просто может быть получено в результате удвоения частоты холостой волны оптического параметрического усилителя, часто являющегося составной частью перестраиваемого источника сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона. Отдельный интерес представляет собой возможность совмещения методов спектрально-фазовой интерферометрии с нелинейно-оптическим преобразованием в процессе четырёхволнового смешения в газовых средах, обладающим чрезвычайно широким фазовым синхронизмом и не требующим использования тонких нелинейных кристаллов [78,142].

Описанные в этом параграфе методы характеристики сверхкоротких импульсов были применены в наших экспериментах: SHG FROG на тонких (50-100 мкм) кристаллах ВВО и AGS – был основным инструментом для измерения временной огибающей относительно длинных (50-200 фс) импульсов накачки в ближнем инфракрасном диапазоне на центральной длине волны 800 и 1030 нм; FWM XFROG в атмосфере с накачкой импульсами на длине волны 800 нм и 1030 нм применялся в экспериментах в среднем инфракрасном диапазоне и позволил полностью охарактеризовать фемтосекундные и предельно короткие импульсы длительностью порядка одного периода поля на центральной длине волны в диапазоне от 1.2 до 8 мкм; X-SEA-F-SPIDER на 20 мкм кристалле ВВО с накачкой импульсами на длине волны 800 нм был применён в задаче полной временной характеристики мультиоктавного излучения суперконтинуума, формирующегося в результате солитонной самокомпрессии сверхкороткого импульса на центральной длине около 2 мкм в полном антирезонансном волноводе.

Глава 3. Источник перестраиваемых микроджоулевых предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона на основе компрессии и самокомпрессии импульсов накачки в полупроводниках

В первой главе диссертационной работы была показана важность методов солитонной компрессии сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона в твёрдых телах, что связано с возможностью использования таких режимов нелинейно-оптического преобразования для формирования предельно коротких импульсов относительно небольших энергий (до единиц микроджоулей). Эта методика была особенно востребована на ранних этапах развития техники генерации фемтосекундных импульсов среднего инфракрасного диапазона, когда были доступны и распространены лазерные системы, в которых в результате многокаскадного нелинейно-оптического понижения частоты, в частности в процессе генерации разностной частоты, формировались импульсы подобного уровня энергии [46]. Впоследствии данный подход был успешно распространён и на значительно более мощные источники фемтосекундных импульсов среднего инфракрасного диапазона, позволив осуществить эффективную самокомпрессию импульсов с энергией в десятки миллиджоулей [147].

В настоящей главе представлены результаты, впервые демонстрирующие метод генерации микроджоулевых импульсов длительностью порядка одного периода поля в среднем инфракрасном спектральном диапазоне на длине волны 4 – 8 мкм в полностью «твёрдотельном» формате. Описанный подход заключается в использовании последовательности точно согласованных этапов нелинейно-оптического преобразования фемтосекундных импульсов – оптического параметрического усиления, генерации разностной частоты, спектрального уширения в полупроводниковых кристаллах (в частности, в арсениде галлия) и компенсации остаточной фазовой модуляции импульсов. Рассмотрены различные режимы спектрально-временной эволюции исходных фемтосекундных импульсов накачки, приводящие к формированию предельно коротких импульсов длительностью порядка одного периода поля, включающие в себя совместное действие таких нелинейно-оптических эффектов как фазовая самомодуляция, самофокусировка, сверхбыстрая ионизация, широкополосное четырёхволновое взаимодействие, самоукручение фронта огибающей.

3.1 Генерация перестраиваемых сверхкоротких импульсов и формирование суперконтинуума в режимах нормальной и аномальной дисперсии полупроводникового кристалла арсенида галлия

В наших экспериментах при использовании описанной в параграфе 2.1 килогерцовой Ti:Sapphire лазерной системы центральная длина волны излучения, получаемого в результате процесса генерации разностной частоты, имела возможность перестраиваться в диапазоне от 2.7 до 14 мкм за счет изменения длин волн сигнальной и холостой волн. Однако, наибольшее внимание было уделено более узкому спектральному диапазону (4 - 8 мкм), где оказывалось возможным получить наиболее эффективную компрессию импульсов накачки. Импульсы среднего инфракрасного диапазона при помощи параболического зеркала с фокусным расстоянием 10 см фокусировались в пластинку арсенида галлия (Рис.22а), где происходило нелинейно-оптическое преобразование, приводящее к спектральному уширению и изменению огибающей импульса. Результат такого преобразования оказывается в высокой степени чувствительным к взаимному соотношению спектра ИК-импульса накачки и дисперсионного профиля нелинейного материала.

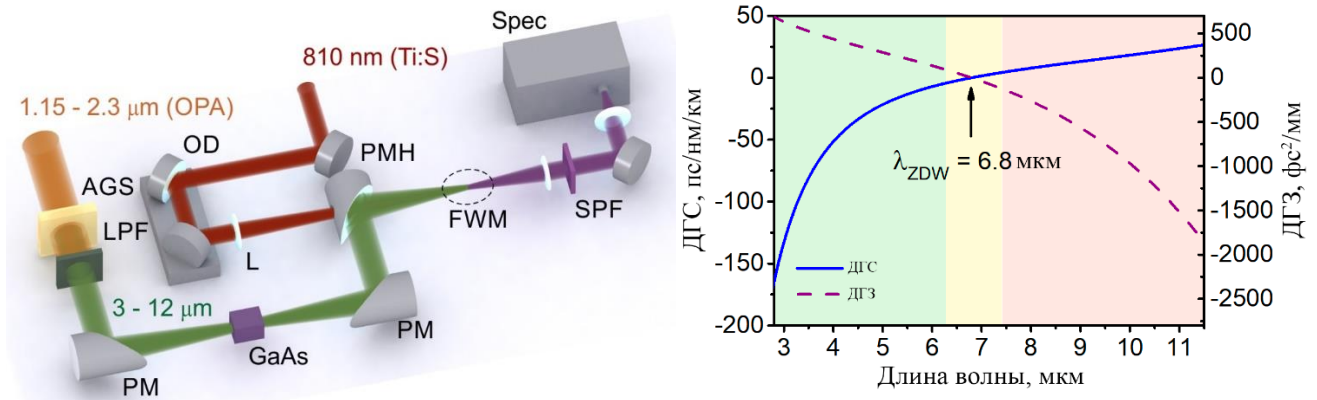


Рис.22. (а) Схема экспериментов по компрессии сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона в нелинейном полупроводниковом материале. LPF – длинноволновый фильтр, PM – параболические зеркала, PMH – параболическое зеркало с отверстием, OD – оптическая линия задержки, FWM – процесс ЧВВ XFROG для характеристики импульса, SPF – коротковолновый фильтр, Spec – спектрометр Ocean Optics. (б) Дисперсия групповых скоростей (сплошная линия) и задержек (пунктирная линия) арсенида галлия в среднем инфракрасном диапазоне.

Положение кристалла относительно перетяжки сфокусированного пучка определялось экспериментально для каждой энергии импульса и подбиралось оптимальным для достижения интенсивности излучения, обеспечивающей наилучшую

степень компрессии при условии пренебрежимо малых потерь, вызванных многофотонным поглощением. Толщина образца полупроводникового материала также являлась варьируемым параметром - использовались пластинки с толщиной 2, 3 и 5 мм. После нелинейно-оптического преобразования импульсов накачки, включающего в себя фазовую самомодуляцию, самофокусировку, самоукручение огибающей, ионизационно-индуцированные оптические нелинейности, а также плазменные потери и дисперсионное расплывание, излучение на выходе из кристалла коллимировалось вторым параболическим зеркалом и заводилось в систему измерения спектрально-временных характеристик импульса методом XFROG на основе процесса четырёхволнового смешения в воздухе с излучением накачки, подробно описанную в параграфе 2.3. При использовании этой системы характеристики осуществлялся эффективный перенос спектра исследуемого импульса в видимый диапазон, что позволило в режиме реального времени контролировать результат нелинейно-оптического преобразования и осуществлять подстройку параметров оптической схемы.

Для импульсов накачки на центральной длине волны менее 6.8 мкм, попадающих в область нормальной дисперсии групповых скоростей арсенида галлия (Рис.22б), компрессия осуществлялась при помощи компенсации набег фазы в компрессоре, состоящем из оптических элементов с аномальной дисперсией. Имея в распоряжении набор оптических пластинок из фторидов кальция, бария и магния различной толщины, мы могли подобрать их оптимальную комбинацию таким образом, чтобы суммарный дисперсионный профиль наилучшим образом компенсировал нелинейный набег фаз, добиваясь тем самым наибольшей эффективности компрессии. В результате экспериментов существенное уменьшение длительности импульсов было получено в диапазоне длин волн от 4 до 6.8 мкм, причём в спектральном диапазоне 5.9 – 6.3 мкм получено сжатие до длительностей менее 2 периодов поля на центральной длине волны. На Рис.23 представлены полученные экспериментально спектрохронограммы и восстановленные по ним огибающие и спектры для некоторых импульсов из данного спектрального диапазона до 6.8 мкм:

- (a,f,k) – начальная длительность $t_0 = 190$ фс, конечная длительность $t_c = 91$ фс, компрессия в 3.5 мм BaF₂;
- (b,g,l) – $t_0 = 140$ фс, $t_c = 35$ фс, компрессия в 3.5 мм BaF₂;

- (с,h,m) – $t_0 = 120$ фс, $t_c = 29$ фс, компрессия в 5 мм BaF₂;
- (d,i,n) – $t_0 = 80$ фс, $t_c = 54$ фс, компрессия в 6.5 мм BaF₂ + 2 мм CaF₂;
- (e,j,o) – $t_0 = 170$ фс, $t_c = 56$ фс, компрессия в 8 мм BaF₂ + 2 мм CaF₂ + 2 мм MgF₂.

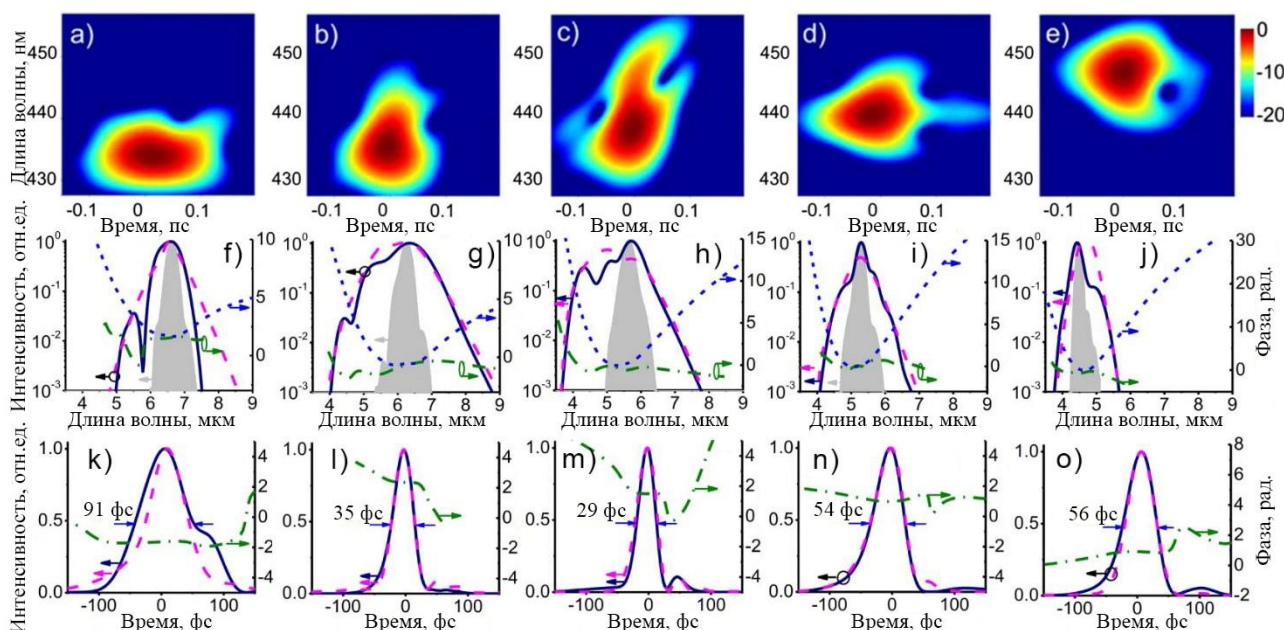


Рис.23. Экспериментальные ЧВВ XFROG спектрограммы (а-е) и восстановленные по ним спектры (f-j) и огибающие (k-o) нескольких импульсов из области нормальной дисперсии групповых скоростей арсенида галлия 4 – 6.8 мкм после компрессии. Заливкой на (f-j) изображены спектры исходных импульсов до преобразования. Толщина и материал пластинок компрессора для каждого импульса указаны в тексте.

Наилучшие результаты компрессии соответствовали импульсам, длительностью около 1.5 периодов поля на центральной длине волны 5.9 мкм при преобразовании в кристалле арсенида галлия толщиной 7 мм с последующей компенсацией фазы в 5 мм фторида бария (3.5 мм линза BaF₂ + 1.5 мм BaF₂). Энергия полученного импульса составила 1.7 мкДж, что соответствует пиковой мощности около 60 МВт. Как показали эксперименты, существенное влияние на спектрально временную эволюцию импульсов в процессе нелинейно-оптического преобразования в арсениде галлия оказало явление самофокусировки. Для контроля самофокусировки использовалась пирозлектрическая камера Ругосам III (Spigicon), в результате были измерены пространственные профили пучка излучения суперконтинуума в дальней зоне после преобразования в полупроводниковой пластинке толщиной 7 мм при различных начальных интенсивностях излучения в диапазоне 1 – 40 ГВт/см² (Рис. 24а-е). Измерения проводились с импульсом накачки на центральной длине волны 5.9 мкм с начальной длительностью 120 фс,

интенсивность варьировалась при помощи изменения положения кристалла относительно перетяжки пучка. Характерная длина фокусировки нелинейной линзы, с учётом эффекта Керра высшего порядка, оценивалась как $l_{sf} \approx 7.3$ мм, немного больше длины полупроводникового кристалла. Применявшаяся для теоретического описания процесса нелинейно-оптического преобразования численная модель позволила получить профили пучка в дальней зоне, представленные на Рис. 24f-j (эта модель подробно описана в следующем параграфе).

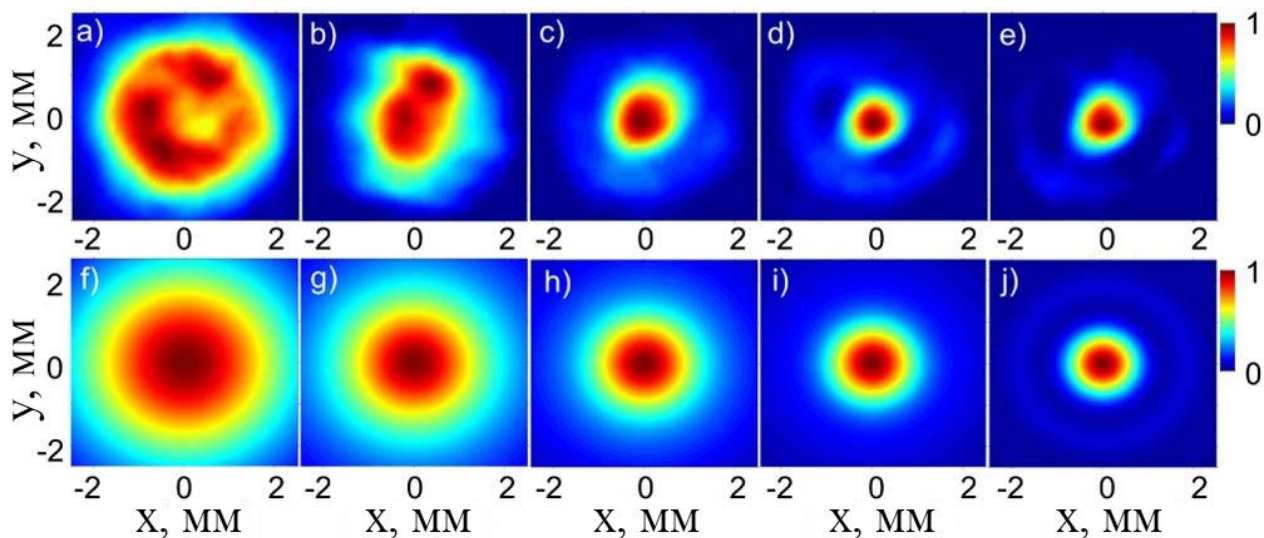


Рис. 24. Экспериментальные (a-e) и теоретические (f-j) изображения пространственного профиля пучка суперконтинуума в дальней зоне после преобразования в арсениде галлия толщиной 7 мм импульса на длине волны 5.9 мкм с начальной длительностью 120 фс и начальной интенсивностью: 1 ГВт/см² (a,f), 16 ГВт/см² (b,g), 24 ГВт/см² (c,h), 29 ГВт/см² (d,i) и 38 ГВт/см² (e,j).

В режиме аномальной дисперсии групповых скоростей арсенида галлия, то есть для импульсов на центральной длине волны более 6.8 мкм, генерация суперконтинуума сопровождается самокомпрессией импульса. За счёт уменьшения длительности импульса, а также из-за влияния самофокусировки пучка, на протяжении всего процесса распространения излучения в материале поддерживается высокая интенсивность, и для эффективного преобразования требуются меньшая длина материала. В этом режиме в экспериментах использовался кристалл арсенида галлия толщиной 5 мм. Временные огибающие сигнала суперконтинуума, восстановленные по спектрограммам XFROG, показывают, что в широком диапазоне длин волн от 7 до 8.5 мкм достижимы значения коэффициентов временной компрессии, превышающие значение 3 (Рис.25). Конкретно, выходное излучение разностной частоты среднего инфракрасного диапазона с

параметрами $\tau_0 \approx 150$ фс, $\lambda_0 \approx 7.9$ мкм, $W_0 \approx 2$ мкДж испытывает спектральное уширение и самокомпрессию в пластинке арсенида галлия толщиной 5 мм, преобразуясь в импульс с длительностью $\tau_0 \approx 45$ фс после кристалла (Рис.25f). Такой импульс имеет длительность лишь 1.2 периода колебания электромагнитного поля на центральной длине волны $\lambda_0 \approx 7.9$ мкм.

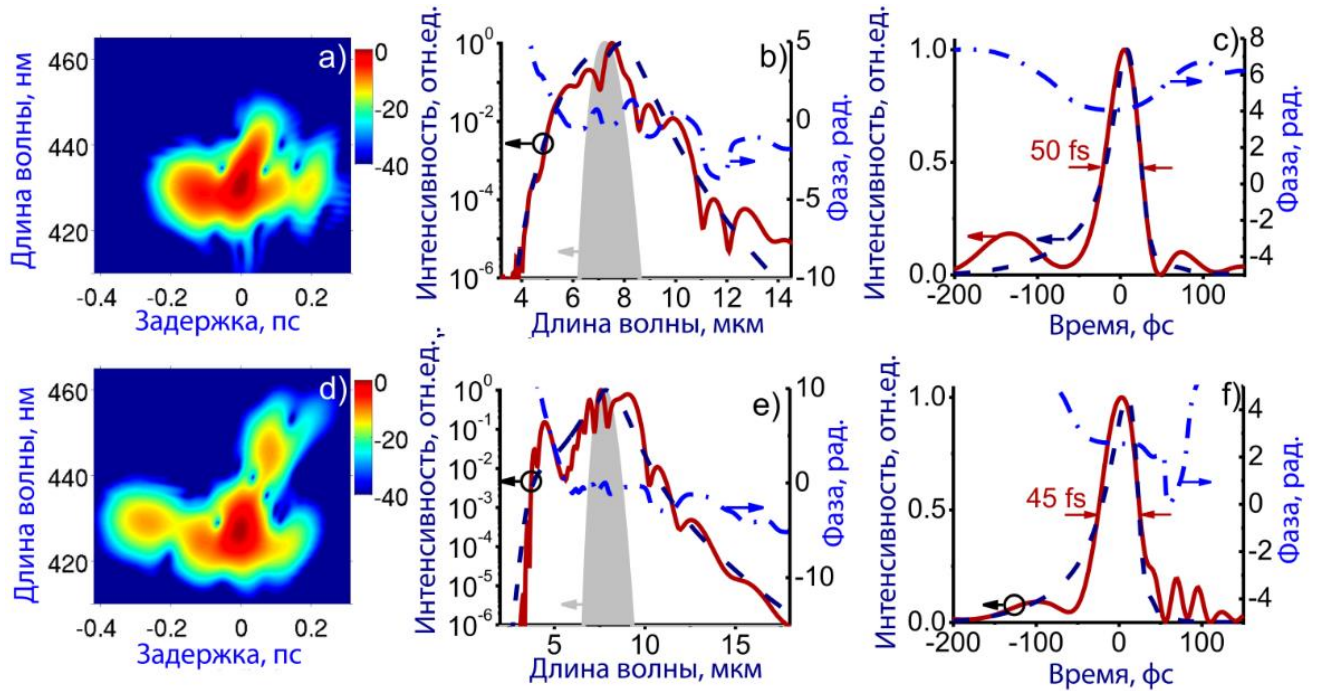


Рис.25. FWM XFROG карты (a,d) и восстановленные по ним огибающие (c,f) и спектры (b,e) импульсов с начальной длительностью 150 фс на центральной длине волны 7.1 мкм (a-c) и 7.9 мкм (d-f) с мощностью 2 мкДж в кристалле GaAs толщиной 5 мм.

В экспериментах с импульсами, лежащими в области аномальной дисперсии групповых скоростей арсенида галлия, в рассмотренном диапазоне пиковых мощностей выявлено, что самофокусировка также играет существенную роль в спектрально-временной эволюции импульса, подавляя дифракционно-индуцированное расхождение пучка. Характерная длина фокусировки нелинейной линзы, возникающей под действием эффекта Керра, с учётом нелинейности высшего порядка, оценивалась как $l_{sf} \approx 5.3$ мм, что очень близко соответствует толщине кристалла арсенида галлия. Таким образом, нелинейная линза, фокусное расстояние которой оказывается согласованным с длиной нелинейного взаимодействия, помогает сохранить высокий уровень интенсивности поля, помогая поддержать солитонную динамику вдоль всей длины распространения внутри пластинки GaAs, несмотря на наличие дифракции.

В результате проведенных экспериментов с импульсами накачки в широком диапазоне длин волн 4-8 мкм была продемонстрирована сложная спектрально-временная эволюция фемтосекундных импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона в сильно нелинейном полупроводниковом кристалле арсенида галлия. Найдены режимы, в которых возможна эффективная компрессия импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона в условиях нормальной (4 - 6.8 мкм) и аномальной (6.8 - 8 мкм) дисперсии групповых скоростей материала, что позволяет сформировать импульсы с длительностью менее двух периодов поля. В режиме нормальной дисперсии наименьшие достигнутые длительности составили около 1.5 периодов поля на центральной длине волны 5.9 мкм, а в режиме аномальной 1.2 периодам колебания светового поля на длине волны 7.9 мкм.

3.2 Формирование предельно короткого импульса в среднем инфракрасном диапазоне длительностью порядка одного периода поля в области нулевой дисперсии групповых скоростей арсенида галлия

С точки зрения спектрального уширения и эффективной компрессии импульса особый интерес представляет режим, когда центральная длина волны излучения накачки попадает в область нуля дисперсии групповых скоростей материала. И именно этой длине волны было уделено особое внимание в наших экспериментах, позволивших в результате точного согласования всех параметров импульса накачки и условий взаимодействия с полупроводниковым материалом достичь замечательных результатов и впервые продемонстрировать полностью твердотельный источник предельно коротких импульсов длительностью около одного периода поля на центральной длине волны около 7 мкм. Особенностью данного режима оказывается выполнение в широком спектральном диапазоне условий фазового синхронизма для множественного каскадного процесса четырёхволнового смешения, приводящего к параметрической перекачке энергии из центральной части спектра в стоксову и антистоксову области, что радикально повышает эффективность спектрального уширения. На Рис.26а изображена длина когерентности $l_c = \pi/|2\delta k|$, где $\delta k = 2k_0 - k_s - k_a$, для процессов четырёхволнового смешения вида $2\omega_0 = \omega_s + \omega_a$, за счёт которого осуществляется перенос энергии от импульса накачки на частоте ω_0 с волновым вектором k_0 , к стоксовым и антистоксовым компонентам с частотами ω_s и ω_a и волновыми векторами k_s и k_a , соответственно. Расчёты выполнены для дисперсионного профиля полупроводникового кристалла арсенида галлия. Наиболее важной особенностью представленной зависимости является наличие узкой спектральной

области вблизи нуля дисперсии групповых скоростей ($\lambda_z \approx 6.8$ мкм для GaAs), в которой достигается сверхширокий фазовый синхронизм для процесса $2\omega_0 = \omega_s + \omega_a$, приводящий к радикальному увеличению эффективности генерации суперконтинуума. Действительно, в наших экспериментах было обнаружено значительное повышение эффективности спектрального уширения от излучения накачки при перестроении его центральной длины волны в область нуля дисперсии групповых скоростей арсенида галлия в точном соответствии с зависимостью, представленной на Рис.26а.

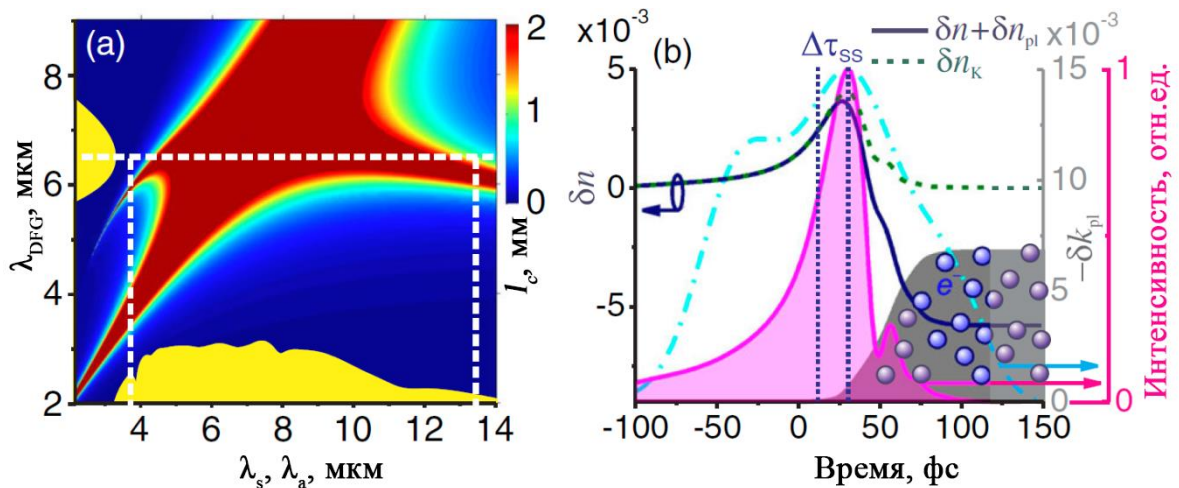


Рис.26. (а) Зависимость длины когерентности $l_c = \pi/|2\delta k|$ процессов четырёхволнового смешения вида $2\omega_0 = \omega_s + \omega_a$ в арсениде галлия от длин волн $\lambda_s = 2\pi c/\omega_s$ и $\lambda_a = 2\pi c/\omega_a$ стоксовой и антистоксовой компонент. Центральная длина волны исходного импульса показана горизонтальной пунктирной линией. (б) Временной профиль изменения коэффициента преломления, вызванного эффектом Керра $\delta n_k = n_2 I(t)$ (пунктирная линия) и полная нелинейная часть коэффициента преломления $\delta n_{nl} = \delta n_{pl} + \delta n_k$ (сплошная линия). Модуль мнимой части плазменной добавки к показателю преломления $|\delta n_{pl}|$ показан серой заливкой. Розовая сплошная линия с заливкой отображает временной профиль импульса на расстоянии $z = 5$ мм. Голубая штрих-пунктирная линия показывает временной профиль импульса среднего ИК-диапазона на расстоянии $z = 0$ мм. Смещение во времени пика импульса $\Delta\tau_{ss}$, вызванного самоукручением импульса, показано вертикальными пунктирными линиями.

С учётом того, что значительная часть спектра импульса среднего ИК-диапазона попадает в область аномальной дисперсии групповых скоростей, а влияние присутствия плазмы усиливается вследствие масштабирующего множителя λ^2 для показателя преломления плазмы, временная эволюция широкополосного импульса оказывается чрезвычайно сложной и во многом необычной, так как определяется сильно связанными нелинейными явлениями, вызванными сверхбыстрой ионизацией и керровскими оптическими нелинейностями в твёрдом теле (Рис.26б). В экспериментах, описанных в

предыдущем параграфе, плотность плазмы не достигала достаточно большого значения, чтобы оказывать заметное влияние на спектрально-временную эволюцию импульса. В то же время, имеющий место в условиях нулевой дисперсии групповых скоростей режим самокомпрессии импульсов не может быть описан простой солитонной моделью, так как на него влияют сильно связанные нелинейные явления, вызванные сверхбыстрой ионизацией и керровской нелинейностью в твёрдом теле. В процессе самокомпрессии аномальная дисперсия помогает сформировать условия для сверхширокополосного фазового синхронизма четырёхволнового процесса вблизи нуля дисперсии групповых скоростей, а также препятствует временному растяжению переднего фронта импульса, несущего в себе длинноволновые компоненты спектра суперконтинуума. Чтобы понять физические механизмы, стоящие за нелинейным преобразованием импульса в процессе распространения в образце арсенид галлия, мы также воспользовались анализом на основе численного решения трёхмерного зависящего от времени обобщённого нелинейного уравнения Шредингера [148,149]. Данное уравнение решалось совместно со скоростным уравнением для плотности электронов, включающим в себя фото- и ударную ионизацию. Данная физическая модель позволяет учесть все ключевые эффекты, играющие роль в процессе нелинейно-оптического преобразования сверхкоротких импульсов в условиях наших экспериментов, в том числе: материальную дисперсию всех порядков, поглощение, дифракцию, пространственное и временное самовоздействие в результате керровской нелинейности, включая эффект Керра высших порядков, самоукручение и нелинейные эффекты, связанные с ионизацией вещества. Расчеты выполнены для типичных параметров арсенида галлия: ширина запрещенной зоны 1.4 эВ, нелинейная керровская добавка к показателю преломления $n_2 \equiv n_{\text{GaAs}} \approx 3 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2/\text{Вт}$ и коэффициент эффекта Керра 4-го порядка $n_4 \approx 2 \cdot 10^{-26} \text{ см}^4/\text{Вт}^2$. Применительно к описываемой данной серии экспериментов по нелинейно-оптическому преобразованию импульсов в режиме близкому распространению вблизи нуля дисперсии групповых скоростей, модель позволила точно воспроизвести экспериментальные спектры и временные профили импульсов среднего ИК-диапазона на выходе из пластинки арсенида галлия, полученные в результате восстановления спектрохронограмм измеренных методом FWM XFOG (Рис.27a,d). Такое согласование со всеми экспериментальными данными (Рис.27b,c,e,f) подтверждает правильные предположения для выбранной модели и ее предсказательную силу.

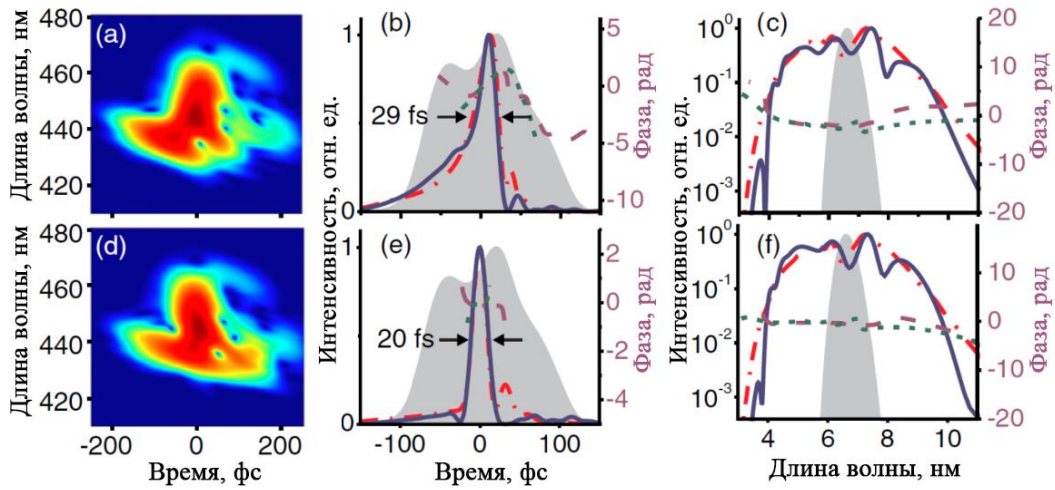


Рис.27. (a,d) FWM XFROG-спектрохронограммы импульсов среднего ИК-диапазона (a) на выходе из пластинки GaAs и (d) после дополнительной компенсации chirpa в пластинке фторида бария, толщиной 0.5 мм. (b,e) Временная огибающая и фаза, (c,f) спектр и спектральная фаза, восстановленные из FWM XFROG-спектрохронограмм и полученные в результате численного моделирования для ИК-импульса (b,c) на выходе из пластинки арсенида галлия и (e,f) после дополнительной компенсации chirpa в пластинке фторида бария толщиной 0.5 мм.

Ключевые моменты спектрально-временной эволюции импульса среднего ИК-диапазона в процессе распространения в пластинке арсенида галлия отображены на Рис.28. Как видно из спектрально-временных карт на этом рисунке в условиях фазового синхронизма четырёхволновое взаимодействие вблизи нуля дисперсии групповых скоростей приводит к значительному повышению эффективности спектрального уширения. В то же время, несколько необычных эффектов становятся заметны в динамике импульса. В обычных условиях задний фронт импульса, несущий в себе высокочастотные компоненты спектра (Рис.28a), должен удлиняться из-за нормальной дисперсии групповых скоростей арсенида галлия. Однако, наблюдаемая на Рис.28a-d динамика разительно отличается. Благодаря квадратичной зависимости плазменной добавки к показателю преломления от длины волны, ионизационные эффекты играют гораздо более значительную роль в динамике импульса среднего инфракрасного диапазона по сравнению с импульсами ближнего ИК-диапазона. Высокая скорость ионизации в твёрдом теле под действием импульса среднего ИК-диапазона приводит к быстрому нарастанию электронной плотности $\rho(t)$, благодаря чему формируется крутой перепад плазменной добавки к показателю преломления $\Delta n_{pl} = \delta n_{pl} + i\delta k_{pl}$. Действительная часть Δn_{pl} вносит свой вклад в суммарную нелинейную, зависящую от интенсивности добавку к показателю преломления $\delta n_{nl} = \delta n_K + \delta n_{pl}$ (сплошная и пунктирная линии на

Рис.26b), где $\delta n_K = n_2 I(t)$ – изменение показателя преломления, вызванное нелинейным эффектом Керра, n_2 – нелинейный показатель преломления. Связанные с ионизацией рассеяние и поглощение, описываемые мнимой частью Δn_{pl} (серая заливка на Рис.26b), быстро нарастают к заднему фронту импульса и приводят к усилению высокочастотного крыла спектра (на протяжении последнего миллиметра распространения – 4-5 мм на Рис.28a). Данный эффект может быть пояснён в терминах фазовой самомодуляции импульса, приводящей к развитию несимметричного временного профиля с крутым задним фронтом. Так как быстро нарастающий перепад электронной плотности стремится погасить задний фронт импульса, не оказывая влияния на его центральную часть (Рис.26b), обострение заднего фронта импульса приводит к усиленной генерации высокочастотных компонент (Рис.28a).

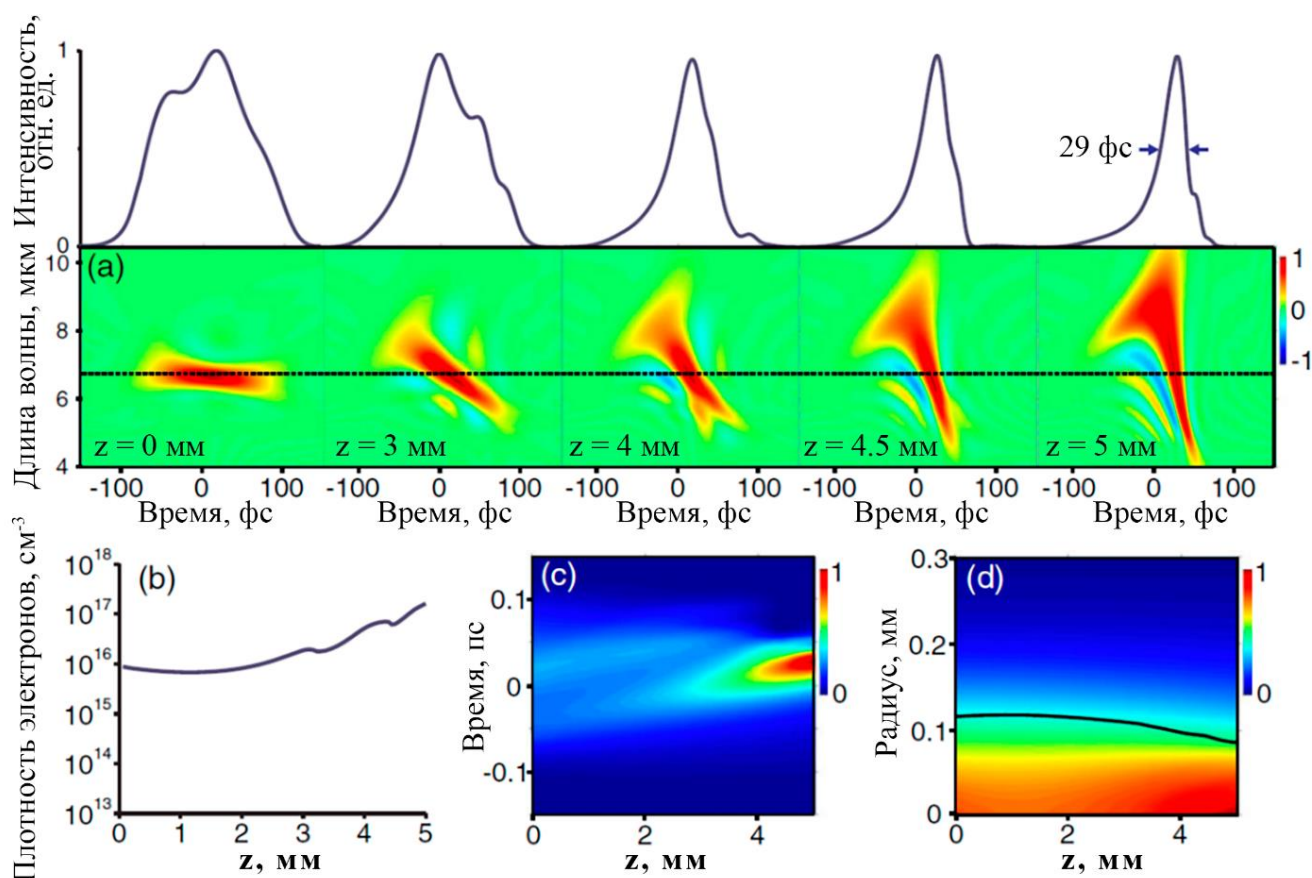


Рис.28. Спектральная, временная и пространственная эволюция сверхкороткого импульса среднего ИК-диапазона в режиме самокомпрессии. (a) Спектрограммы Вигнера и временные огибающие импульса на различной глубине распространения в пластинке арсенида галлия, (b) продольный профиль электронной плотности вдоль оси распространения импульса, (c) временная эволюция импульса, проинтегрированного по поперечным координатам, (d) динамика поперечного размера пучка импульса по мере распространения в нелинейной среде. Сплошной линией показана зависимость полной ширины пучка по полувысоте от глубины проникновения импульса.

Сверхширокий фазовый синхронизм вблизи нуля дисперсии групповых скоростей (Рис.26а) связывает вызванные ионизацией высокочастотные спектральные компоненты с длинноволновой частью спектра посредством четырёхволнового процесса $2\omega_0 = \omega_s + \omega_a$, в котором высокочастотные компоненты ω_a выступают в качестве затравки, способствуя генерации новых спектральных компонент ω_s , усиливая таким образом длинноволновое крыло спектра ($z \approx 4 - 5$ мм на Рис.28а) и увеличивая суммарную спектральную ширину суперконтинуума. Самофокусировка также играет заметную роль в описываемом сценарии самокомпрессии импульса, частично подавляя дифракционную расходимость пучка, и таким образом поддерживая высокую интенсивность поля на протяжении всей длины распространения импульса внутри пластинки арсенида галлия. Когда спектральная ширина импульса среднего ИК-диапазона достигает октавы, что соответствует спектрально ограниченному импульсу длительностью в один период, ударная волна огибающей формируется на заднем фронте импульса. Вследствие его низкой интенсивности, добавка к групповому показателю преломления на заднем фронте импульса меньше, чем в наиболее интенсивной центральной его части, что приводит к более медленному её распространению относительно фронтов импульсов. Полезно оценить самоукручение заднего фронта импульса, возникающее в результате этого процесса, используя элементарную теорию самоукручения, дающей автомодельное решение для самоукручающейся огибающей [150]. В данном приближении, время задержки пика импульса, вызванное явлением самоукручения, с учётом параметров, аналогичных нашему эксперименту, оценивается как $\Delta t_s \approx 20$ фс (вертикальные пунктирные линии на Рис.26b), и представляет собой полезную количественную оценку влияния явления самоукручения в нашем эксперименте.

Широкополосное излучение в среднем ИК-диапазоне, получаемое на выходе из пластинки GaAs имеет спектр протяжённостью более одной октавы по уровню 10% от максимума, и простирается от 4.0 до 9.4 мкм (Рис.27с). Временная огибающая такого импульса, полученная в результате восстановления XFROG-спектрохронограммы (Рис.27а), имеет короткий центральный пик шириной 29 фс по полувысоте и пред-импульс (Рис.27b), спадающий до уровня $1/e$ на протяжении 31 фс и содержащий порядка 35% от всей энергии ИК импульса. Это излучение имеет остаточную фазовую модуляцию, показанную пунктирной линией на Рис.27b,c, которую можно частично скомпенсировать при помощи материала с аномальной дисперсией групповых скоростей.

Действительно, при помощи пластинки из фторида бария толщиной 0.5 мм удалось компрессировать импульс до длительности в 20 фс по попувыоте и подавить энергию предимпульса до 10% от полной энергии импульса (Рис.27е). С учётом того, что спектр полученного импульса располагается на центральной длине волны 6.8 мкм (Рис.27f), длительность импульса в 20 фс соответствует около 0.9 периодов оптического поля. Энергия центрального 20-фс импульса оценивается в 1 мкДж, что соответствует пиковой мощности около 50 МВт. В таком оптимальном режиме распространения импульса суммарные потери энергии из-за плазмы в арсениде галлия не превысили 13%.

Таким образом подводя итоги описанных результатов, нами была продемонстрирована возможность эффективного сверхуширения и временной компрессии фемтосекундных импульсов накачки в среднем инфракрасном диапазоне в полупроводниковом кристалле арсенида галлия. При преобразовании импульсов накачки в режиме нормальной дисперсии (от 4 до 6.8 мкм) в кристалле арсенида галлия толщиной 7 мм с последующей компенсацией фазы в 5 мм пластине фторида бария минимально достигнутая длительность соответствовали около 1.5 периодов поля ($\tau_c \approx 29$ фс) на центральной длине волны 5.9 мкм, энергия полученного импульса составила 1.7 мкДж, что соответствует пиковой мощности около 60 МВт. В режиме аномальной дисперсии (от 6.8 мкм до 8 мкм), минимальная длительность полученного импульса соответствует 1.7 периодам колебания светового поля ($\tau_c \approx 45$ фс) на центральной длине волны 7.9 мкм. При использовании импульсов накачки вблизи нуля дисперсии групповых скоростей арсенида галлия на центральной длине волны 6.8 мкм зафиксированы новые особенности нелинейно-оптического преобразования, связанные с ионизацией среды в условиях генерации суперконтинуума, и приводящие эффективной самокомпрессии импульса до длительности 20 фс, соответствующей 0.9 периодам оптического поля. Энергия центрального пика такого импульса оценивается в 1 мкДж, что соответствует пиковой мощности данного излучения около 50 МВт. Численный анализ нелинейно-оптического преобразования исходного импульса в процессе распространения в полупроводниковом материале позволил выявить ключевые факторы, влияющие на возможность сжатия импульса до предельно коротких длительностей. Эти факторы включают совместное действие сверхбыстрой ионизации и Керровской оптической нелинейности твердотельного материала, а также влияние аномальной дисперсии, обеспечивающей фазовое согласование в широком спектральном диапазоне.

Глава 4. Нелинейно-оптические преобразования импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона в полых антирезонансных фотонно-кристаллических волноводах для формирования мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких импульсов

Настоящая глава посвящена описанию реализации источника мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких импульсов гигаваттного уровня мощности в среднем и ближнем инфракрасном диапазоне на основе заполненных инертными газами полых антирезонансных фотонно-кристаллических волокон. За счет подбора параметров структуры полого антирезонансного фотонно-кристаллического волновода, контроля давления газа и фемтосекундных импульсов накачки ближнего (около 2 мкм) и среднего (около 3.2 мкм) инфракрасного диапазона с энергией до 100 мкДж показана возможность достижения специфических режимов их нелинейно-оптического преобразования, приводящих к генерации мультиоктавного суперконтинуума, а также солитонной самокомпрессии импульсов и их сжатия до длительностей порядка одного периода поля на центральной длине волны.

4.1 Генерация мультиоктавного суперконтинуума в полом фотонно-кристаллическом волноводе при накачке сверхкороткими импульсами на центральной длине волны 3.2 мкм

Как уже отмечалось, наш подход к формированию предельно коротких импульсов гигаваттного уровня мощности в среднем и ближнем инфракрасном диапазоне основан на нелинейно-оптическом преобразовании импульсов в заполненных инертными газами полых антирезонансных фотонно-кристаллических волокон. В представленных в этом параграфе экспериментах использовалась фемтосекундная иттербиевая лазерная система, подробно описанная во второй главе работы (это экспериментальное оборудование находится в распоряжении нашей научной группы в Российском Квантовом Центре (ООО «МЦКТ»)). На выходе из четырёхкаскадного оптического параметрического усилителя формируется импульс с энергией до 100 мкДж на центральной длине волны 3.2 мкм с частотой повторения 1 кГц. Излучение расширяется в состоящей из линз L1 и L2 (Рис. 29а) телескопической системе для согласования размера перетяжки пучка, формируемой линзой L3, с диаметром сердцевины полого фотонно-кристаллического волокна, что

необходимо для достижения максимальной эффективности заведения в него излучения накачки. Волокно заполняется газом под давлением 1-16 атмосфер, для чего помещается в стеклянный капилляр, герметично закрепленный с двух сторон в газовые ячейки, куда закачивается благородный газ (Рис. 29а). Использование стеклянного капилляра позволяло наблюдать появление видимого свечения по длине волновода, а также делало установку очень гибкой в эксплуатации с точки зрения изменения длины волновода – стеклянный капилляр легко скалывался для достижения нужной длины, что позволяло проводить эксперименты в широком диапазоне значений длины волокна от единиц сантиметров до метра и при различных давлениях вплоть до 16 атмосфер. Верхняя граница давления в наших экспериментах определялась прочностью выходного окна газовой ячейки, выполненного из фторида кальция, достаточно хрупкого материала по сравнению с выполненным из сапфира входным окном, но обладающего меньшей дисперсией групповых скоростей. Для минимизации искажений спектральной фазы суперконтинуума, формирующегося в полном фотонно-кристаллическом волноводе, толщина окна была выбрана минимальной – 2 мм для диаметра апертуры 20 мм. Уменьшение толщины выходного окна возможно только при одновременном уменьшении его диаметра, что нежелательно с точки зрения проявления дополнительных нелинейных эффектов в материале окна при приближении его к торцу волокна и, соответственно, увеличению пиковой интенсивности излучения.

Для характеристики спектрального состава излучения суперконтинуума на выходе из волновода применялась система из трёх спектрометров, позволяющая регистрировать спектры в диапазоне нескольких октав от ультрафиолетового до среднего ИК диапазона. Для исследования спектров в ближнем УФ и видимом диапазоне коротковолновая часть суперконтинуума на выходе из волновода после коллимации внеосевым параболическим зеркалом отражалась от кремниевой пластинки толщиной 0.5 мм и фокусировалась на входную щель спектрометра USB4000 фирмы OceanOptics. Прошедшая через пластинку длинноволновая часть суперконтинуума отводилась откидывающимся зеркалом на спектрометр NIRQuest фирмы OceanOptics, регистрирующий спектр в ближнем ИК диапазоне вплоть до 2 мкм. Излучение на длине волны более 2 мкм исследовалось при помощи охлаждаемого HgCdTe детектора, установленного за автоматизированным монохроматором. Временная огибающая и спектральная фаза импульса накачки на длине волны 3.2 мкм определялись при помощи метода оптического стробирования с

разрешением по частоте (FROG) на основе генерации второй гармоники (SHG) в кристалле ArGaS_2 толщиной 0.5 мм, с детектированием спектра второй гармоники спектрометром NIRQuest. Для характеристики поперечного профиля пучка в среднем ИК диапазоне нами использовалась пироэлектрическая камера с LiTaO_3 сенсором (Spiricon Ругосам III), устанавливаемая после кремниевой пластинки, отсекающей излучение на длинах волн короче 1.1 мкм.

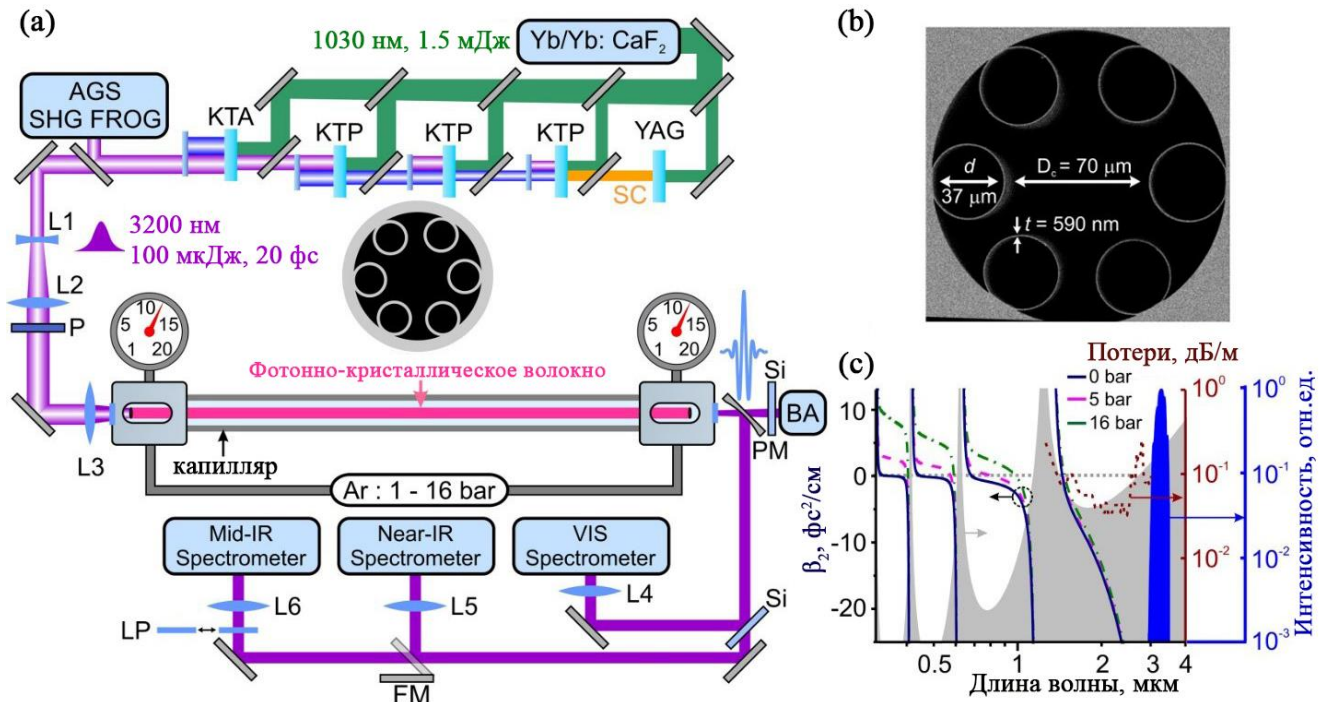


Рис. 29. (а) Схема экспериментальной установки: Yb/Yb:CaF_2 – задающий фемтосекундный иттербиевый генератор с регенеративным усилителем чирпированных импульсов на основе кристалла Yb:CaF_2 ; SC – излучение суперконтинуума; L1-6 – линзы; P – решёточный поляризатор; PCF – полое фотонно-кристаллическое (ФК) волокно; PM – внеосевое параболическое зеркало; FM – откидывающееся зеркало; LP – длинноволновый фильтр, пропускающий излучение на длине волны более 3.6 мкм; BA – анализатор профиля пучка. (б) Изображение поперечного сечения ФК волновода, полученное при помощи сканирующего электронного микроскопа. (в) Зависимость дисперсии групповых скоростей волновода, заполненного аргоном под давлением 0 (сплошная синяя кривая), 5 (пунктирная розовая кривая) и 16 (зелёная штрихпунктирная кривая) атмосфер. Также на графике показаны спектр потерь в волокне (коричневая пунктирная линия – эксперимент, серая заливка – расчёт) и спектр исходного импульса накачки (синяя заливка).

Для формирования предельно короткого импульса со спектром шириной более октавы, в процессе нелинейно-оптического преобразования, требуется волновод, обладающий специальными свойствами: высокой прозрачностью и аномальной дисперсией групповых скоростей в широком спектральном диапазоне вокруг

центральной длины волны импульса накачки. Выполнение данных свойств возможно при использовании полого волновода с поперечной структурой оболочки в виде кольца тонкостенных капилляров (Рис. 29b) [44,45]. Требуемая комбинация прозрачности и дисперсионных свойств волновода в нужном спектральном диапазоне определяется структурой используемого в наших экспериментах фотонно-кристаллического волновода: полая сердцевина диаметром $D_c \approx 70$ мкм окружена массивом из шести идентичных тонкостенных кварцевых капилляров диаметром $d \approx 35$ мкм и толщиной стенки $t \approx 0.59$ мкм. Выбор данного значения толщины стенки капилляра является критически важным для осуществления компрессии импульса до предельно коротких длительностей. Спектр волноводных потерь и профиль дисперсии групповых скоростей, измеренные экспериментально (коричневая сплошная линия) и рассчитанные при помощи модели, предложенной Цейсбергом и Шмидтом (серая заливка) [151], представлены на Рис. 29с. Дисперсия волокна, заполненного аргоном в соответствие с моделью задаётся выражением:

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}(n_{\text{eff}}) &= n - \frac{2.405^2}{2k_0^2 n a^2} - \frac{2.405^2}{k_0^3 n^2 a^3} \frac{\cot \varphi}{\sqrt{\varepsilon - 1}} \frac{\varepsilon + 1}{2}, \\ \operatorname{Im}(n_{\text{eff}}) &= \mu \frac{1 + \cot \varphi}{\varepsilon - 1} \frac{2.405^3}{k_0 n a^4} \frac{\varepsilon^2 + 1}{2}, \quad \varphi = k_0 t \sqrt{n_g^2 - n^2}, \quad \varepsilon = n_g^2 / n^2, \end{aligned} \quad (1)$$

где n – показатель преломления аргона, задаваемый формулой Селлмейера [152], $k_0 = \omega / c$ – волновое число в вакууме, $a = 35$ мкм – радиус сердцевины волокна, $t = 590$ нм – толщина его капилляров, $n_g = 1.45$ – показатель преломления капилляров и оболочки волокна (кварц), $\mu = 0.04$ – множитель, нормирующий волноводные потери по Шмидту на известное значение для используемого волокна 0.1 дБ/м на длине волны 2 мкм.

Используемый образец волокна демонстрирует высокую прозрачность и аномальную дисперсию групповых скоростей в пределах всего спектра импульса накачки, получаемого на выходе оптического параметрического усилителя (синяя заливка на Рис. 29с), что позволяет осуществить эффективную солитонную самокомпрессию 200-фс импульса на центральной длине волны 3.2 мкм. На большем масштабе спектра пропускание волновода является кусочно-непрерывным, состоящим из нескольких полос

пропускания с широкой областью аномальной дисперсии групповых скоростей в каждой из этих полос.

Измеренные в широком диапазоне длин волн спектры излучения на выходе полого антирезонансного фотонно-кристаллического волновода при различных начальных энергиях W_0 импульса накачки среднего ИК диапазона и фиксированном давлении аргона $p \approx 5$ атмосфер представлены на Рис.30а. При низких значениях энергии W_0 спектр импульса накачки демонстрирует практически симметричное уширение, что указывает на определяющую роль явления фазовой самомодуляции (ФСМ), возникающей в процессе распространения его вдоль волокна. Ширина спектра излучения на выходе из волновода увеличивается с ростом энергии W_0 . При увеличении энергии $W_0 > 27$ мкДж в спектре излучения становятся различимы третья и пятая оптические гармоники на длинах волн около 1055 и 633 нм, соответственно (Рис.30а). При дальнейшем увеличении энергии спектр оптических гармоник сливается с высокочастотным крылом спектра импульса накачки, формируя непрерывный мультиоктавный суперконтинуум при энергиях выше 37 мкДж. Типичный спектр суперконтинуума на выходе из волокна, измеренный при $W_0 \approx 45$ мкДж, простирается примерно от 300 нм до 4.2 мкм (Рис.30а). При таких уровнях входной энергии спектр излучения демонстрирует существенное смещение в синюю область, указывая на влияние эффектов самоукручения и ионизации.

Похожая зависимость наблюдается при измерении спектров на выходе фотонно-кристаллического волновода для различных значений давления газа p (Рис.30b). При увеличении давления аргона в полом волокне от 1 до 16 атмосфер выходной спектр проходит через похожие стадии преобразования – от симметричного уширения, вызванного преимущественно фазовой самомодуляцией, для небольших давлений ($p < 2.5$ атм. на Рис.30b) до существенно асимметричного суперконтинуума со смещением в область коротких волн при высоких давлениях ($p > 3.9$ атм. на Рис.30b). Хорошо различимый пик, наблюдаемый в спектре суперконтинуума вблизи длины волны 1.25 мкм при давлениях аргона около 4.4 атмосферы (Рис.30b), возникает вследствие четырёхволнового смешения, поддержанного резонансом между основными волноводными поперечными модами сердцевины полого фотонно-кристаллического волокна и модами стенок капилляров [153].

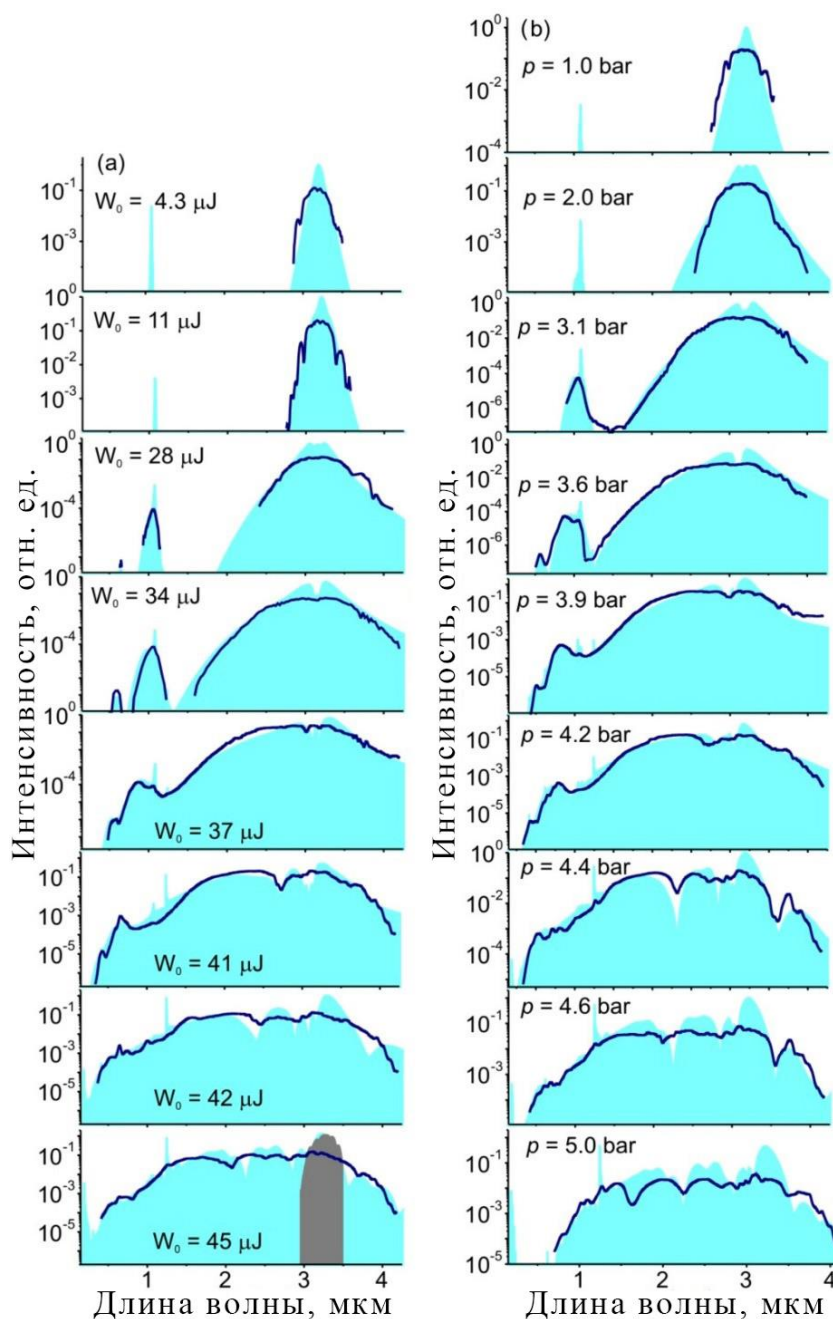


Рис.30. Спектр излучения на выходе полого фотонно-кристаллического волокна как функция (а) входной энергии импульса накачки среднего ИК диапазона при фиксированном давлении аргона $p \approx 4.9$ атмосферы и (b) давления аргона при фиксированной входной энергии $W_0 \approx 47$ мкДж. Сплошной линией изображены экспериментальные зависимости, голубой заливкой – результат численного моделирования. Исходный спектр импульса накачки изображён серой заливкой.

При высоком давлении аргона p и большой входной энергии импульса накачки W_0 , начальная стадия медленного, постепенного спектрального уширения (в пределах первых 15 - 20 см волновода на Рис. 31а и Рис.32d) сменяется чрезвычайно быстрым, буквально взрывным увеличением спектральной ширины более чем на одну октаву за несколько сантиметров (20 - 25 см на Рис. 31а). В эксперименте местоположение точки взрывного

уширения спектра визуально наблюдается как чёткая граница возникновения видимого сквозь оболочку волокна излучения. Благодаря тому, что волокно помещено в стеклянный капилляр, данная точка может быть обнаружена и использована для повышения достоверности численной модели. На Рис. 31а данная область отмечена вертикальной пунктирной линией, показывая хорошее соответствие экспериментальным результатам.

Для идентификации процессов, приводящих к таким спектрально-временным преобразованиям импульса накачки среднего ИК-диапазона при распространении в полом антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе, в нашей научной группе было выполнено компьютерное моделирование, основанное на численном решении обобщённого нелинейного уравнения Шредингера, модифицированного для учёта влияния на эволюцию поля сверхбыстрой ионизации и явления генерации оптических гармоник.:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \zeta} A(\omega, \zeta) = & i\tilde{D}(\omega)A(\omega, \zeta) - \alpha(\omega)A(\omega, \zeta) \\ & + i\frac{\omega}{c}\tilde{F}\left\{\left[n_2I(\eta, \zeta) + \frac{\chi^{(3)}}{4n_0^2c\varepsilon_0}A^2(\eta, \zeta)\right]A(\eta, \zeta)\right\} - \tilde{F}\left\{\frac{U_iW[\rho_0 - \rho(\eta, \zeta)]}{2I}A(\eta, \zeta)\right\} \\ & - \left[\frac{i\omega_0^2\omega}{2cn_0\rho_c(\omega^2 + \tau_c^{-2})} + \frac{\sigma(\omega)}{2}\right]\tilde{F}[\rho(\eta, \zeta)A(\eta, \zeta)], \end{aligned} \quad (2)$$

где $A(\eta, \zeta) = (2n_0)(c\mu_0)^{-1} \int_0^\infty E(\omega, \zeta)e^{-\omega\eta}d\omega$, $E(\eta, \zeta)$ – физическое электрическое поле, принимающее действительные значения, $A(\omega, \zeta)$ – его Фурье-преобразование, η – время в бегущей системе координат, ω – частота, ζ – координата вдоль направления распространения импульса, $I(\eta, \zeta) = |A(\eta, \zeta)|^2$ – интенсивность поля, $\tilde{D} = \beta(\omega) - \omega/v_g$ – дисперсионный оператор, $v_g = (\partial\beta/\partial\omega|_{\omega_0})^{-1}$, $\beta(\omega)$ – волновое число, ω_0 – центральная частота входного лазерного поля, $\chi^{(3)}$ – нелинейная оптическая восприимчивость третьего порядка, $\alpha(\omega)$ – линейные потери, связанные с вытеканием основной моды, $\tilde{F}$ – оператор преобразования Фурье, c – скорость света в вакууме, n_0 – коэффициент преломления на частоте ω_0 , ρ – электронная плотность, $W(I)$ – скорость фотоионизации, $U_i = U_0 + U_{osc}$, U_0 – потенциал ионизации, $\rho_c = \omega_0^2 m_e \varepsilon_0 / e^2$ – критическая плотность плазмы, m_e и e – масса и заряд электрона, соответственно, ρ_0 – начальная плотность нейтральных молекул, σ – обратное поперечное сечение тормозного излучения.

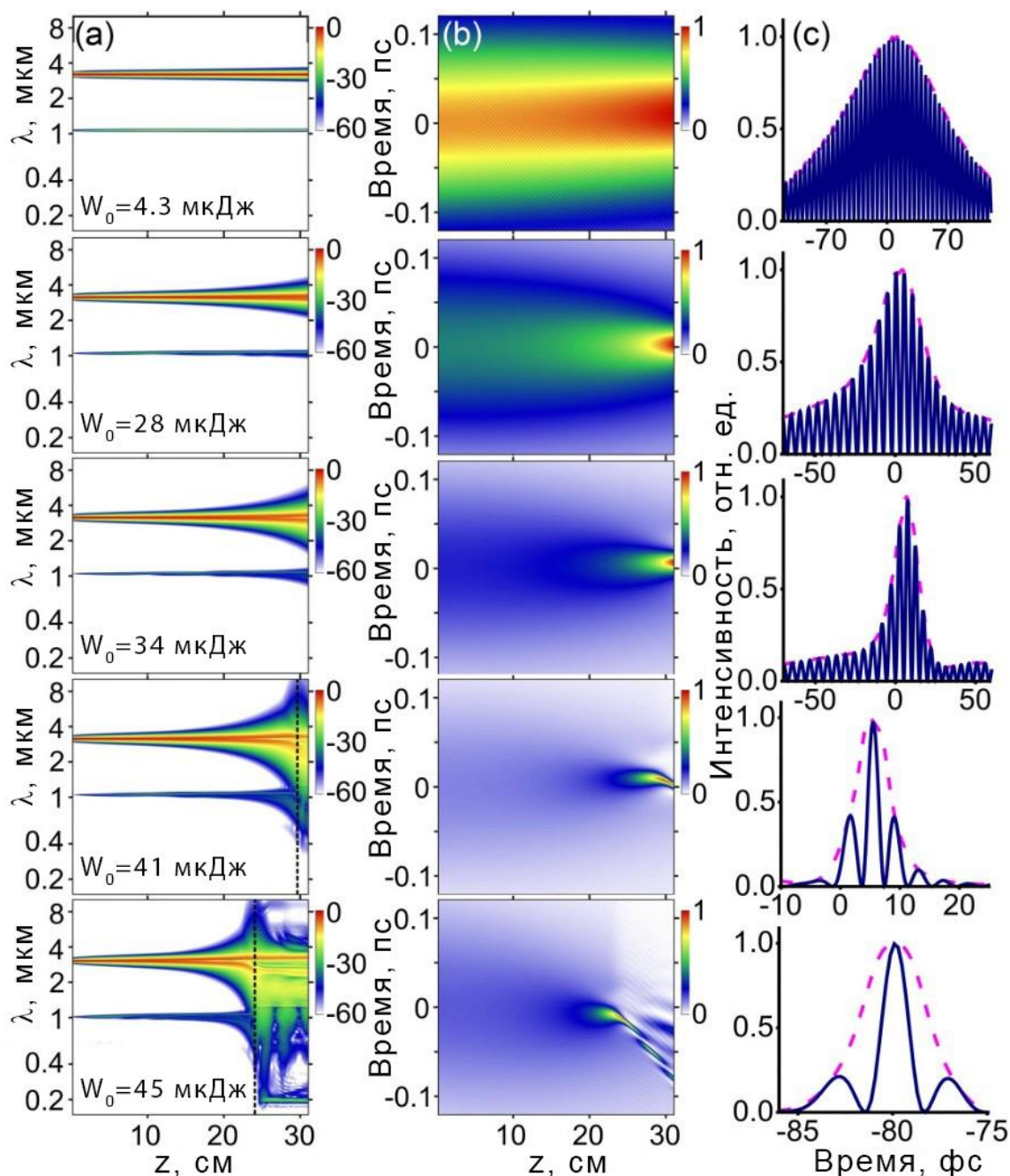


Рис. 31. Рассчитанные теоретически двумерные карты (а) спектральной и (б) временной эволюции сверхкороткого импульса среднего ИК диапазона в полем антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе при различных значениях входной энергии и давлении аргона $p \approx 4.9$ атм. Вертикальная пунктирная линия отмечает границу видимого излучения, вытекающего из волновода сквозь оболочку, наблюдаемую в эксперименте. (с) Моделирование сжатых импульсов на выходе волновода. Огибающие импульсов изображены пунктирной линией.

Данное обобщение нелинейного уравнения Шредингера включает в рассмотрение все ключевые эффекты, играющие существенную роль при волноводном распространении сверхкороткого импульса среднего ИК-диапазона: дисперсию, линейные волноводные потери, керровскую нелинейность, явление генерации оптических гармоник,

самоукручение фронта импульса, ионизационные потери, а также ионизационные дисперсию и нелинейность. Уравнение эволюции поля решалось совместно с уравнением для эволюции плотности плазмы:

$$\frac{\partial \rho}{\partial \eta} = W(I) + \sigma(\omega_0) U_i^{-1} \rho I, \quad (3)$$

которое учитывает фото- и столкновительную ионизацию. Скорость фотоионизации $W(I)$ рассчитывалась при помощи модификации Попова, Переломова и Терентьева формализма Келдыша, а обратное сечение рассеяния тормозного излучения σ включена посредством формулы в модели Друде:

$$\sigma(\omega) = e^2 \tau_c [m_e \varepsilon_0 n_0 c (1 + \omega^2 \tau_c^2)]^{-1}, \quad (4)$$

где τ_c – время столкновений.

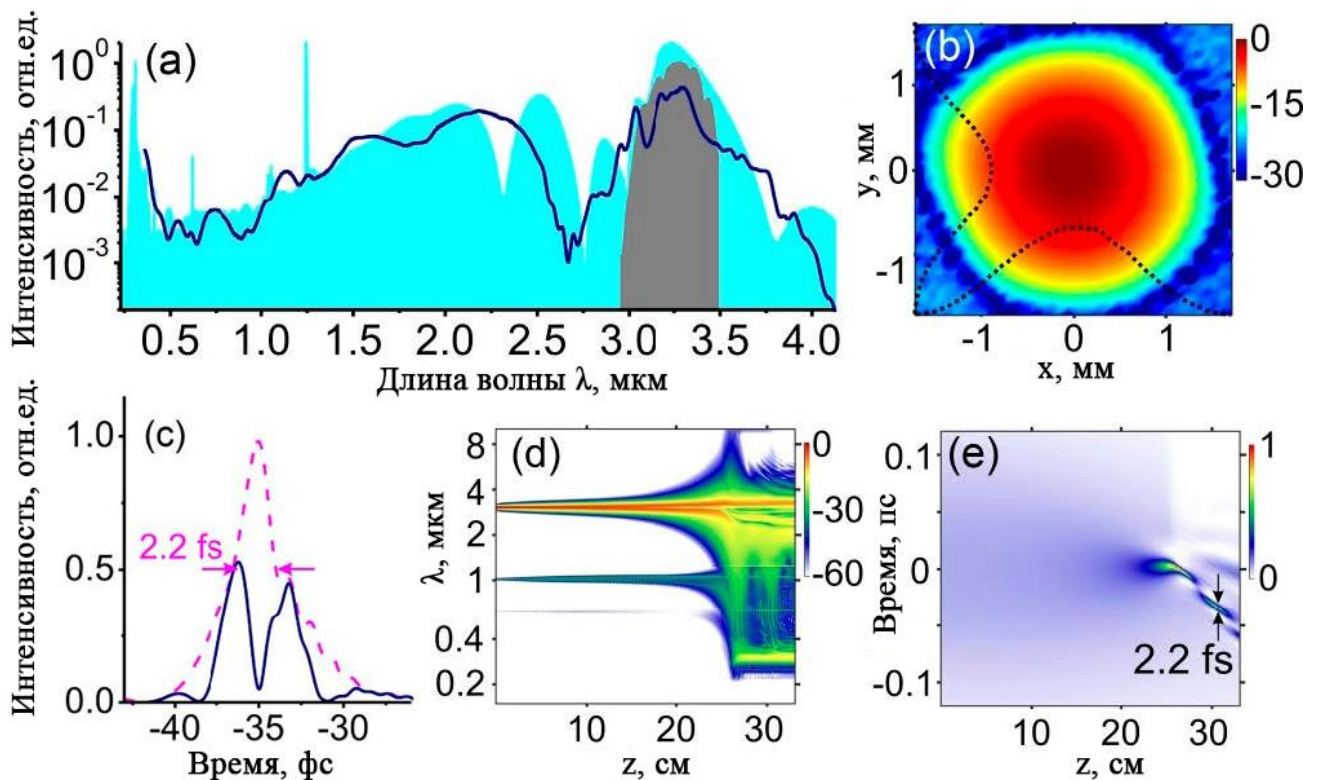


Рис.32. (a) Спектр излучения на выходе ($z = 31$ см) фотонно-кристаллического волокна, заполненного аргонном под давлением $p \approx 16$ атм. для начальной энергии импульса накачки $W_0 \approx 35$ мкДж: (сплошная линия) эксперимент, (голубая заливка) моделирование. Исходный спектр импульса накачки показан серой заливкой. (b) Профиль пучка на выходе волновода, измеренный в дальней зоне, одномерные сечения профиля вдоль двух координат изображены на рисунке пунктирными линиями. (c) Моделирование временного профиля сжатого импульса на выходе из волновода для $p \approx 16$ атм. и $W_0 \approx 35$ мкДж. (d,e) Двумерные карты спектрального (d) и временного (e) преобразования импульса среднего ИК диапазона в полном ФК волноводе, заполненном газом.

Начальное лазерное поле определено в нашей модели в соответствии с временной огибающей и спектром (серая заливка на Рис.30а) импульса накачки на центральной длине волны 3.2 мкм, использовавшегося в наших экспериментах. Нелинейный Керровский показатель преломления n_2 для полого фотонно-кристаллического волновода, заполненного аргоном, был задан выражением $n_2 \approx 1.1 \times 10^{-19}(p/p_0) \text{ см}^2/\text{Вт}$, где p_0 – атмосферное давление, и нелинейная оптическая восприимчивость третьего порядка для процесса генерации третьей гармоники $\chi^{(3)} \approx 7.5 \times 10^{-22}(p/p_0) \text{ см}^2/\text{В}^2$. Потенциал ионизации аргона $U_0 \approx 15.76 \text{ эВ}$, и время столкновений в модели Друде $\tau_c \approx 190(p/p_0) \text{ фс}$.

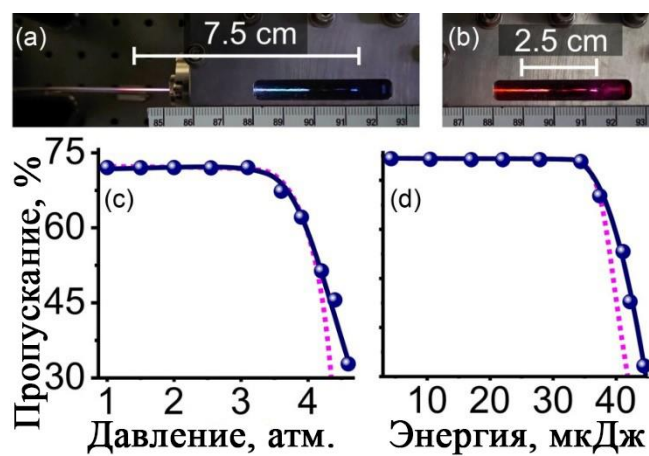


Рис. 33. (a,b) Выходной конец полого фотонно-кристаллического волокна, заполненного аргоном, излучающий видимый свет сквозь боковые стенки. Энергия импульса накачки на входе волокна составляет (a) $W_0 \approx 41 \text{ мкДж}$ и (b) $W_0 \approx 46 \text{ мкДж}$, давление аргона $p \approx 4.9 \text{ атм.}$ (c,d) Общий коэффициент пропускания полого фотонно-кристаллического волновода, измеренный (сплошная линия и точки) и рассчитанный (пунктирная линия) в зависимости от (c) давления газа внутри волокна при энергии импульса накачки $W_0 \approx 47 \text{ мкДж}$ и (d) энергии импульса среднего ИК диапазона при постоянном давлении аргона $p \approx 4.9 \text{ атм.}$

Принимая во внимание спектральную ширину суперконтинуума, формирующегося на выходе волновода и простирающуюся на несколько октав, использование при описании Керровской нелинейности коэффициента n_2 , не зависящего от частоты и интенсивности поля, безусловно, является упрощением. И дисперсионная зависимость, и зависимость от интенсивности поля для коэффициента n_2 должны быть включены в рассмотрение [154–156] для более строгого анализа процесса формирования столь протяжённого суперконтинуума в широком диапазоне интенсивностей поля накачки и давлений газа. Однако, замкнутые численные модели, позволяющие интегрировать уравнение эволюции

поля совместно с уравнениями для нелинейного отклика, с учётом его зависимости от частоты и интенсивности, на данный момент ещё не разработаны.

Двумерные карты на Рис. 31а иллюстрируют спектральное преобразование импульса накачки среднего ИК диапазона в полном фотонно-резонансном волноводе, рассчитанное для различных значений входной энергии импульса W_0 . Данные карты демонстрируют смещение спектра в область высоких частот, вызванное самоукручением фронта импульса и ионизационными изменениями показателя преломления, по мере распространения импульса по волокну. Спектры излучения на выходе из волокна ($z = 31$ см на Рис.30 и Рис.32а) хорошо согласуются с экспериментальными данными.

Проанализировав и подтвердив предсказательные возможности нашей численной модели, мы провели анализ спектрально-временных двумерных карт с точки зрения временного преобразования сверхкоротких импульсов среднего ИК диапазона (Рис. 31b). Существенная самокомпрессия является наиболее важной особенностью, наблюдаемой в наших расчётах эволюции импульсов. Однако процесс самокомпрессии, и что наиболее важно — минимальная длительность импульса, достигаемая на длине наилучшей самокомпрессии, сильно зависит от значения начальной энергии импульса W_0 и давления газа p . При небольшой энергии импульса и низком давлении длительность среднего ИК диапазона τ_p монотонно убывает по мере распространения излучения вдоль волновода. Для больших значений W_0 и p , с другой стороны, зависимость $\tau_p(\zeta)$ демонстрирует хорошо различимые колебания (Рис. 31b и Рис.32е), типичные для дышащей солитонной динамики [150,157].

На Рис. 34 представлены для сравнения временные и спектральные карты, отражающие динамику идеального солитона (Рис. 34а,е), определяемую как решение нелинейного уравнения Шредингера, и эволюцию импульса среднего ИК диапазона, рассчитанную при помощи нашей численной модели с учётом всех её составляющих (Рис. 34d,h), а также при «выключении» слагаемых, отвечающих за ионизацию и/или самоукручение фронта импульса (Рис. 34b,c,f,g). Динамика идеального солитона определяется значением солитонного числа $N = (l_d/l_{nl})^{1/2}$, где $l_d = \tau^2/|\beta_2|$, l_d — дифракционная длина, $l_{nl} = \lambda(2\pi n_2 I)^{-1}$ — нелинейная длина, τ — длительность импульса, β_2 — коэффициент дисперсии групповых скоростей, λ — длина волны.

Идеальный солитон, в соответствии с решением нелинейного уравнения Шредингера, демонстрирует хорошо известную «дышащую» динамику, состоящую из повторяющихся циклов самокомпрессии и растяжения импульса (Рис. 34а,е) [157]. Дисперсия высокого порядка модифицирует такую динамику, приводя к расщеплению солитона [158] и уменьшению длины самокомпрессии (Рис. 34б,ф). При приближении длительности импульса в процессе самокомпрессии к периоду оптического поля эффекты, связанные с образованием ударной волны огибающей, начинают играть заметную роль в спектрально-временной динамике, приводя к укручению заднего фронта импульса (Рис. 34г) и усилению смещения спектра в область высоких частот (Рис. 34д).

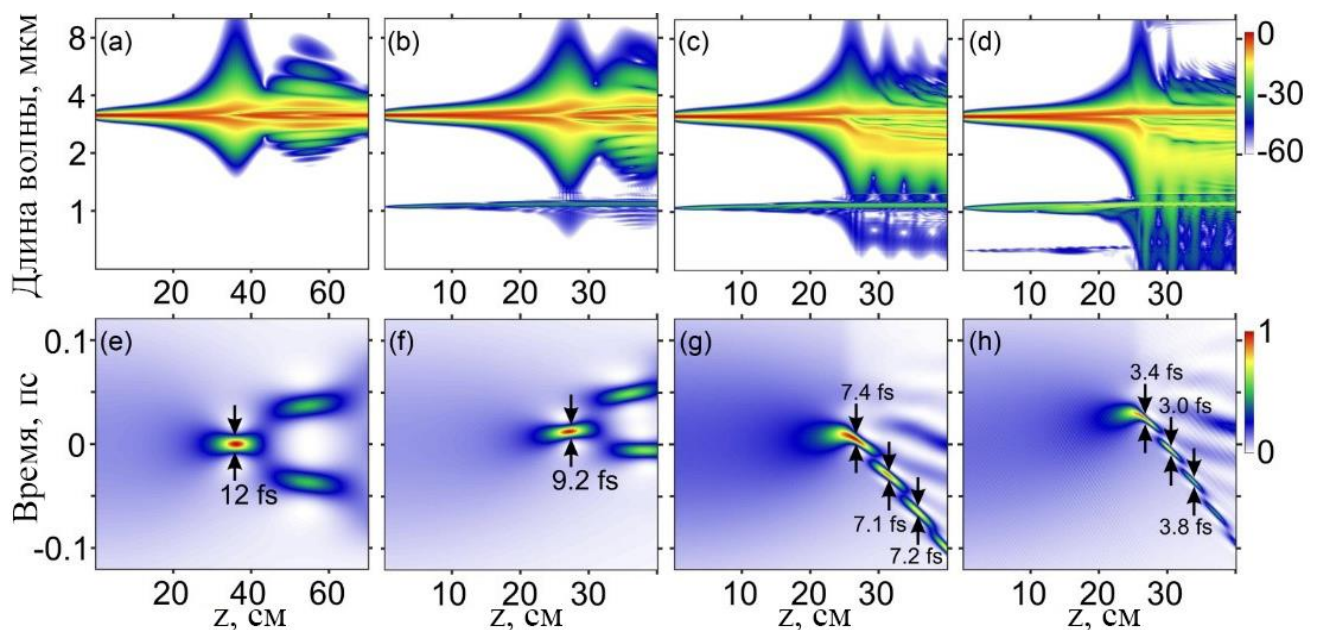


Рис. 34. (а)-(д) Карты спектральной и (е)-(h) временной эволюции импульса среднего ИК диапазона с начальной энергией $W_0 = 42$ мкДж в полном фотонно-кристаллическом волокне с оболочкой в виде одного кольца тонкостенных капилляров заполненном аргоном под давлением $p \approx 4.9$ атм., полученные в результате численного решения (а), (е) нелинейного уравнения Шредингера, (б), (ф) обобщённого нелинейного уравнения Шредингера (ОНУШ) без учёта слагаемых, отвечающих за ионизацию и самоукручение фронта импульса, (с), (г) ОНУШ без учёта самоукручения фронта импульса, и (д), (h) в результате применения полной модели ОНУШ.

При больших значениях энергии импульса W_0 и давления газа p самокомпрессия развивается на меньших длинах распространения и приводит к формированию более коротких и интенсивных импульсов, при большем влиянии эффекта самоукручения фронта и соответствующего ему смещения спектра в область высоких частот. В то же время, при достижении значений W_0 и p , необходимых для осуществления солитонной самокомпрессии до длительностей менее одного периода оптического поля,

существенное влияние на спектрально-временную эволюцию излучения начинают играть эффекты, связанные с ионизацией (Рис. 34 с,g). Сверхбыстрая ионизация сама по себе приводит к сильному смещению спектра в синюю область, приводя к возникновению важных эффектов, влияющих на распространение предельно коротких лазерных импульсов в заполненном газом полом ФК волноводе [159–162]. Однако при рассмотрении физического сценария, в котором солитонная самокомпрессия действует совместно с самоукручением фронта импульса, приводя к формированию субпериодных волновых всплесков, сверхбыстрая ионизация выступает в роли ограничивающего механизма, приводя к существенным энергетическим потерям. На Рис. 33с,d представлены зависимости общего коэффициента пропускания полого ФК волокна, измеренного (сплошная кривая с точками) и рассчитанного (пунктирная линия) в зависимости от давления газа (Рис. 33с) и входной энергии импульса (Рис. 33d). При высоких значениях W_0 и p коэффициент пропускания волновода уменьшается с 73% (полученных при низких давлении и энергии импульса, определяющихся в основном эффективностью заведения излучения в волокно) до примерно 30% при $W_0 \approx 45$ мкДж и $p \approx 4.7$ атм. Потери энергии, связанные с ионизацией, приводят к уменьшению пиковой мощности солитонов, в конечном итоге не повышая, а снижая эффективность смещения спектра в синюю область, и ограничивая минимальное достижимое значение длительности импульса в точке наилучшей самокомпрессии.

Среди других эффектов, приводящих к потерям энергии при распространении импульса с высокой энергией при высоком давлении газа, можно выделить возбуждение волноводных мод сердцевины высокого порядка, вытекание излучения сквозь оболочку, возбуждение излучающих мод [163]. Одним из примеров такого процесса, приводящего к энергетическим потерям, является четырёхволновое смешение между модами сердцевины ФК волновода и модами стенок капилляров, составляющих его оболочку, поддержанное фазовым синхронизмом [153], и приводящее к образованию в спектре суперконтинуума, измеренного при давлении более 4.2 атм. (Рис.30b), хорошо различимого пика на длине волны около 1.25 мкм. Суммарная энергия этого пика, однако, не превышает 3% от полной энергии суперконтинуума на выходе из волновода, что является пренебрежимо малой величиной по сравнению с ~70% коэффициентом потерь, наблюдаемым в режиме высоких значений W_0 и p . Данный результат хорошо согласуется с численным моделированием, выполненным при «выключении» из рассмотрения всех

источников волноводных потерь, в предположении, что потери энергии на вытекание излучения из основной моды ФК волокна не превышает значения 2-3% во всех реализуемых режимах распространения импульса в наших экспериментах.

Представленные на Рис. 34 результаты моделирования показывают, что пропускание и дисперсионный профиль полого ФК волновода, использованного в наших экспериментах, хорошо подходит для формирования предельно коротких лазерных импульсов длительностью менее одного периода поля, формирующихся в результате солитонной самокомпрессии. При достаточно высоких значениях энергии импульса W_0 и давления газа p солитоны при распространении претерпевают несколько циклов самокомпрессии (Рис. 34h), формируя в результате такой осциллирующей динамики волновые всплески длительностью менее одного периода поля. В спектральном представлении таким предельно коротким импульсам соответствует многооктавный суперконтинуум, регистрируемый на выходе из волновода (Рис. 34d).

На Рис.32a представлен один из вариантов спектра такого суперконтинуума, измеренный на выходе ФК волокна длиной 31 см для начальной энергии импульса $W_0 \approx 35$ мкДж и $p \approx 16$ атм. Измеренный поперечный профиль пучка суперконтинуума на выходе волокна (Рис.32b) демонстрирует гладкое распределение интенсивности. Профиль пучка в дальней зоне не позволяет однозначно определить модовый состав излучения всего суперконтинуума. Тем не менее, учитывая результаты анализа волноводных потерь [164], показывающих, что потери фундаментальной моды почти на два порядка меньше потерь мод высокого порядка, экспериментальные результаты хорошо согласуются с физическим сценарием, в котором генерация суперконтинуума происходит преимущественно в фундаментальной волноводной моде.

В процессе спектрально-временной эволюции поля, ответственной за генерацию мультиоктавного суперконтинуума (Рис.32d,e), происходит эффективная самокомпрессия импульса накачки, приводящая к формированию на расстоянии $z=31$ см от входного торца волокна предельно короткого лазерного импульса, полная ширина на полувысоте (FWHM) которого составляет всего 2.2 фс (Рис.32c), что соответствует примерно 0.31 периода поля на центральной длине волны $\lambda_c = 2.1$ мкм. Энергия такого импульса, длительностью 2.2 фс составила около 5 мкДж ($\approx 30\%$ от полной энергии на выходе волокна длиной 31 см), что соответствует пиковой мощности порядка 1.2 ГВт.

Структура фотонно-кристаллического волокна является основным фактором, определяющим способность волновода поддерживать солитонную самокомпрессию импульса до длительности менее одного периода поля. Для иллюстрации данного утверждения нами было проведено сравнение (Рис. 35) эффективности самокомпрессии импульса при распространении в полом ФК волноводе с параметрами, соответствующими реальному образцу и описанными выше, и волноводе с такой же структурой оболочки в виде одного кольца тонкостенных капилляров, но с изменёнными размером полости и толщиной стенок капилляров (Рис. 29b). Для второго ФК волновода вместо значений $D_c \approx 70$ мкм и $t \approx 0.59$ мкм, соответствующих использовавшемуся в наших экспериментах ФК волокну, мы выбрали значения параметров $D_c \approx 88$ мкм и $t \approx 1.1$ мкм, что соответствует волокну, использованному ранее в экспериментальных работах других авторов [60]. Длина отрезка волокна $L = 17$ см, давление заполняющего полую сердцевину аргона $p = 12$ атм, и исходная энергия импульса накачки $W_0 = 65$ мкДж, были выбраны в соответствие с реальными значениями в экспериментальной работе [60].

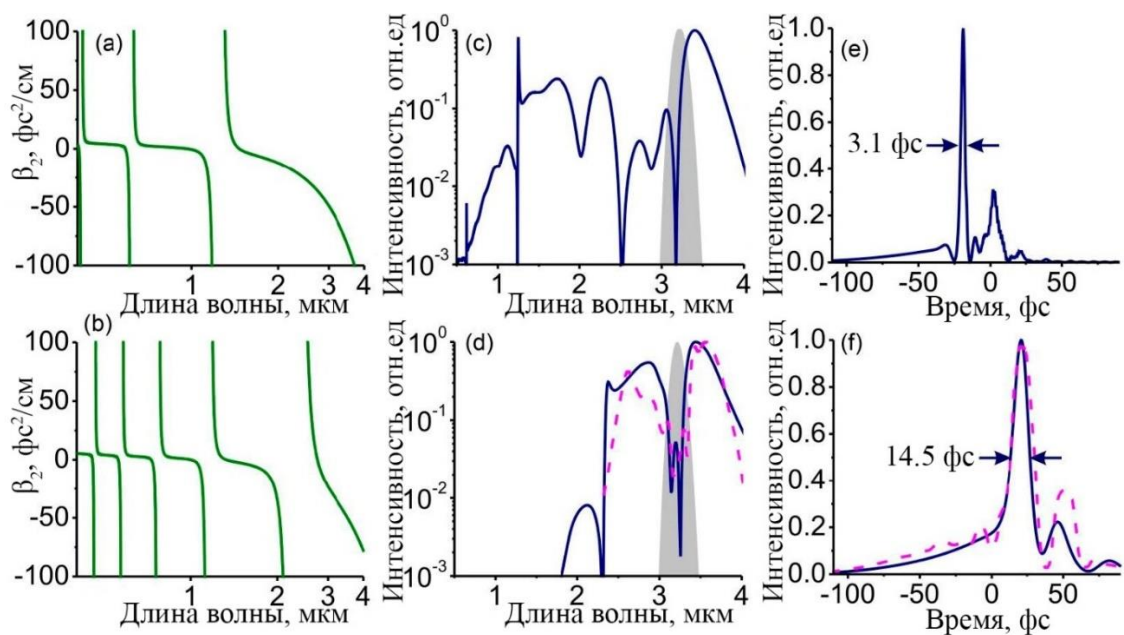


Рис. 35. (a), (b) Дисперсионный профиль полого ФК волокна с оболочкой в виде одного кольца тонкостенных капилляров, параметры структуры которого соответствуют волокну, (a), (c), (e) использовавшемуся в наших экспериментах: $D_c \approx 70$ мкм и $t \approx 0.59$ мкм, и (b), (d), (f) использованному в работе [60]: $D_c \approx 88$ мкм и $t \approx 1.1$ мкм, рассчитанные при помощи модели, предложенной Цейсбергом и Шмидтом. (c), (d) Спектр и (e), (f) временная огибающая импульса на выходе из волокна: (синяя сплошная линия) моделирование и (пунктирная линия) эксперимент [60]. Исходный спектр импульса накачки изображён серой заливкой. Волокно заполнено аргоном под давлением 12 атм. Энергия импульса накачки (c), (e) $W_0 \approx 40$ мкДж и (d), (f) $W_0 \approx 65$ мкДж, начальная длительность – 100 фс. Длина волокна составляет (c), (e) 15 см и (d), (f) 17 см.

Зависимости на Рис. 35a,b демонстрируют высокую чувствительность дисперсионного профиля волновода к изменению толщины стенок капилляров, окружающих полую сердцевину ФК волокна. Увеличение толщины стенок приводит к смещению длин волн межмодовых резонансов, что приводит к сужению полос прозрачности и областей аномальной дисперсии групповых скоростей. Особенно губительное влияние на спектрально-временную эволюцию импульса оказывает межмодовый резонанс вблизи длины волны 2.4 мкм, наблюдаемый в спектре пропускания и дисперсионном профиле ФК волокна с толщиной стенок капилляров $t = 1.1$ мкм (Рис. 35b), подавляя спектральное уширение импульса среднего ИК диапазона в область длин волн короче 2.4 мкм (Рис. 35d), ограничивая при этом минимальную достижимую длительность импульса на уровне около 14.5 фс (Рис. 35f). Данное значение минимальной длительности, рассчитанное при помощи нашей численной модели, очень хорошо соотносится с длительностью импульса, полученной в экспериментах [60]. Полученный в результате моделирования спектр суперконтинуума, формирующегося в волокне с толщиной стенок капилляров $t = 1.1$ мкм (Рис. 35d,f), и временная огибающая сжатого импульса на выходе ФК волокна также хорошо соответствуют результатам работы [60].

Для экспериментальной характеристики временного профиля импульса на выходе фотонно-кристаллического волновода нами был использован метод кросскорреляционного оптического стробирования с разрешением по частоте (XFROG) на основе нелинейного процесса четырёхволнового смешения исследуемого излучения среднего инфракрасного диапазона с опорным сверхкоротким импульсом ближнего ИК диапазона в газовой среде. В качестве среды для четырёхволнового взаимодействия выступал воздух, нелинейные оптические свойства которого позволяют с достаточно высокой эффективностью осуществить цр-конверсию спектра исследуемого импульса с энергией в единицы микроджоулей в процессе вида $\omega_{XFROG} = 2\omega_p - \omega_{MIR}$, где ω_p – частота излучения опорного импульса, ω_{MIR} – частота исследуемого излучения, ω_{XFROG} – частота результирующего излучения, регистрируемого в процессе измерений. Излучение суперконтинуума на выходе волновода коллимировалось внеосевым параболическим зеркалом, не вносящим искажений в спектральную фазу в связи с отсутствием хроматических aberrаций, и затем фокусировалось в воздух другим параболическим зеркалом со сквозным отверстием. В точке фокуса исследуемое излучение пересекалось

с фокусированным пучком опорного импульса, пропущенного через отверстие в параболическом зеркале, взаимодействие с которым приводило к генерации кросскорреляционного сигнала, зависящего от задержки между импульсами (схема аналогична представленной на Рис.22). В качестве опорного излучения нами был выбран доступный в эксперименте импульс накачки на выходе из регенеративного усилителя (его небольшая часть, не использующаяся в процессе параметрического усиления), длительностью около 200 фс, на центральной длине волны 1030 нм, с энергией вплоть до 100 мкДж. При использовании опорного излучения на длине волны 1030 нм в результате up-конверсии спектр суперконтинуума, простирающийся от 1 до 4.5 мкм эффективно отображается в область видимого и ближнего ИК излучения от 600 до 1000 нм, где может быть детектирован высокоэффективными кремниевыми спектрометрами видимого диапазона. Для характеристики временного профиля импульса на выходе волновода были измерены зависимости спектра излучения, формирующегося в результате четырёхволнового смешения, от задержки между исследуемым и опорным импульсами (Рис. 36).

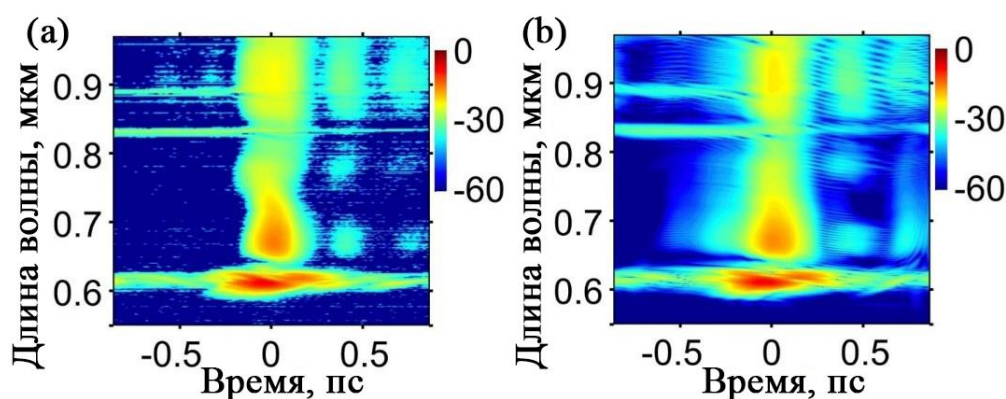


Рис. 36. (a) XFROG-спектрохронограмма, полученная сканированием задержки между опорным импульсом на длине волны 1030 нм и исследуемым излучением на выходе ФК волновода. Начальная энергия импульса накачки на входе в волокно $W_0 = 34.5$ мкДж, давление аргона $p = 16$ атмосфер, длина волокна $L = 31$ см. (b) Результат подбора теоретической спектрохронограммы, соответствующей измеренной.

Полученная в результате восстановления спектрохронограммы спектральная фаза суперконтинуума соответствует импульсу длительностью 4.5 фс, что составляет немного больше половины периода на центральной длине волны (2.5 мкм). Однако, как выяснилось в результате нескольких последовательных измерений, ошибка алгоритма восстановления спектральной фазы для данной длительности опорного импульса (около

200 фс на длине волны 1030 нм) может приводить к разбросу значений длительности исследуемого импульса вплоть до 10 фс, что не позволяет с уверенностью говорить об успешной регистрации импульса, короче периода поля для данного спектрального диапазона. Для улучшения точности алгоритма восстановления спектральной фазы в данной схеме характеристики полученного мультиманового суперконтинуума была проведена дополнительная серия экспериментов по самокомпрессии опорного импульса на центральной длине волны 1030 нм в отрезке того же фотонно-кристаллического волновода, который использовался в основных экспериментах по компрессии импульсов излучения в среднем инфракрасном диапазоне (Рис. 37).

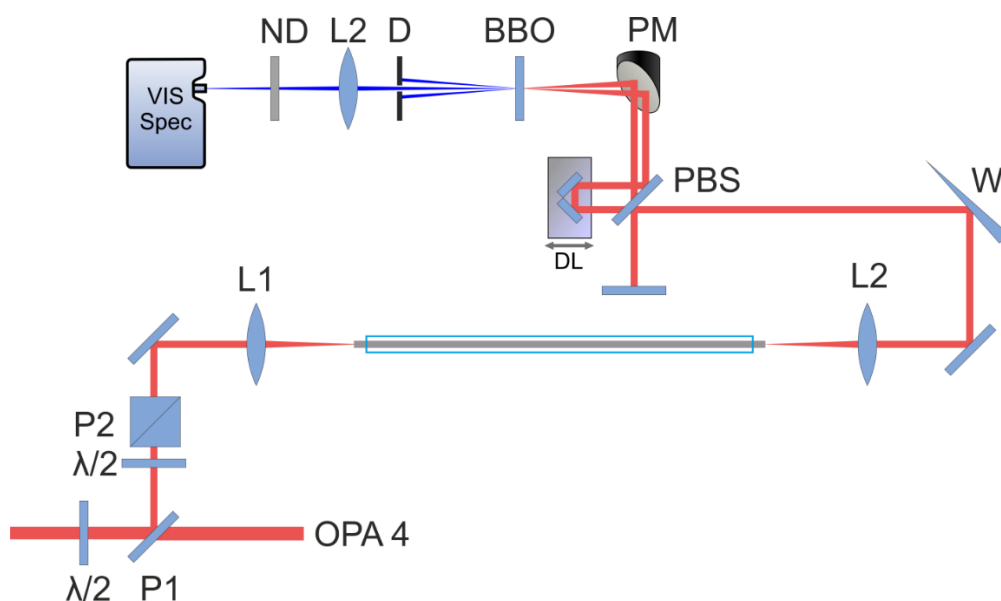


Рис. 37. Схема вспомогательного эксперимента по самокомпрессии импульса накачки на центральной длине волны 1030 нм в полном фотонно-кристаллическом волноводе в воздухе. $\lambda/2$ – полуволновая пластинка; P1, P2 – поляризаторы; L1, L2, L3 – линзы; W – клин из фторида кальция; PBS – плёночный светоделитель; DL – оптическая линия задержки; PM – параболическое зеркало; BBO – нелинейный кристалл; D – диафрагма; ND – нейтральный оптический фильтр; VIS Spec – спектрометр видимого диапазона.

Импульс накачки на центральной длине волны 1030 нм из регенеративного усилителя (начальная длительность порядка 200 фс, энергия более 500 мкДж) проходит сквозь полуволновую пластинку и поляризационный светоделитель для разделения на два пучка. Большая часть энергии проходит на четвёртый каскад оптического параметрического усилителя, а малая его доля отражается и используется в качестве опорного импульса для X-FROG после сжатия в волноводе. После поляризационного светоделителя пучок проходит сквозь полуволновую пластинку и поляризатор (призму Глана-Тейлора) для

поворота поляризации и очистки от остатков излучения в перпендикулярной поляризации в плохой моде. Далее излучение фокусировалось линзой в полый фотонно-кристаллический волновод длиной 150 см, входной торец которого был закреплён на прецизионном трёхкоординатном трансляционном столике. Фокусное расстояние линзы определялось эмпирически по выходной мощности излучения, для достижения максимальной эффективности заведения. Для линзы с фокусным расстоянием 50 мм эффективность составила около 55%, для линзы 75 мм – около 75% и для линзы 100 мм – 65%. Эксперименты проводились с линзой 75 мм, и такая же линза использовалась для коллимирования излучения на выходе из волокна. Само волокно помещалось в открытый тонкий стеклянный капилляр, для того чтобы избежать изгибов и улучшить пропускание. Торцы волновода располагались на открытом воздухе, соответственно давление в волноводе равнялось атмосферному. Выходное излучение отражалось клином из фторида кальция для ослабления без искажений спектральной фазы и характеризовалось методом оптического стробирования с разрешением по частоте (SHG FROG, Рис. 38).

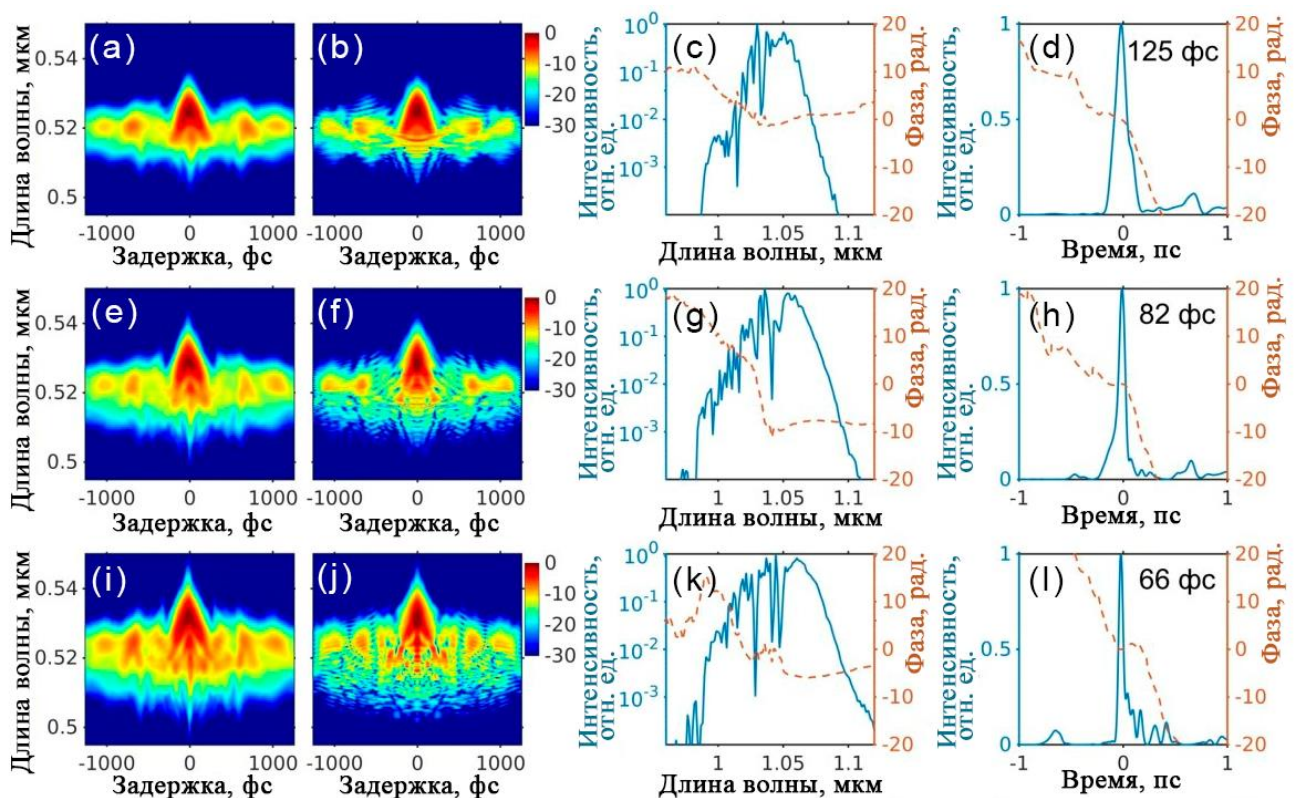


Рис. 38. Экспериментальные (a, e, i) и восстановленные (b, f, j) SHG FROG спектрохронограммы, спектр и спектральная фаза (c, g, k), временной профиль и фаза (d, h, i) опорного импульса на центральной длине волны 1030 нм с энергией на выходе волновода 12 мкДж (a-d), 17 мкДж (e-h) и 20 мкДж (i-l). Давление воздуха 1 атм. Длина волновода 150 см.

Энергия импульса на входе в волновод плавно повышалась до 20 мкДж, при таких значениях энергии удалось зафиксировать наименьшую длительность импульса на выходе из волокна, которая была оценена в 65 фс. Дальнейшее увеличение входной энергии приводило к «разваливанию» исходного импульса в волноводе. Таким образом, в результате данного эксперимента удалось уменьшить длительность опорного импульса примерно в три раза при помощи чрезвычайно простой и надёжной схемы, формирующей сверхкороткий импульс с энергией 20 мкДж длительностью порядка 65 фс в фундаментальной пространственной моде полого фотонно-кристаллического волновода. Полученный импульс может быть использован в качестве опорного импульса в схеме характеристики мультиоктавного суперконтинуума на основе ЧВВ в воздухе со значительно лучшим временным разрешением по сравнению с исходным, однако его длительность всё ещё слишком велика для уверенной экспериментальной характеристики субпериодных импульсов среднего инфракрасного диапазона.

Таким образом, в полом антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе сгенерирован мультиоктавный суперконтинуум, простирающийся от 300 нм до 4.2 мкм, спектральная ширина которого соответствует импульсу, длительность которого по полувысоте составляет менее 0.5 периода поля на центральной длине волны $\lambda_c = 2.1$ мкм. Энергия такого импульса около 5 мкДж, что соответствует пиковой мощности порядка 1.2 ГВт. Проведённые экспериментальные измерения методом FWM XFROG с опорным импульсом на центральной длине волны 1030 нм не позволили экспериментально подтвердить столь короткую длительность. Для прямых измерений длительностей импульсов порядка одного периода поля в подобных экспериментах, описываемых следующем параграфе, была использована методика X-SEA-F-SPIDER, позволяющая охарактеризовать импульсы столь короткой длительности.

4.2 Формирование и полная характеристика импульсов ближнего инфракрасного диапазона длительностью порядка одного периода поля

Эксперименты по спектрально-временному преобразованию сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона в полом фотонно-кристаллическом волноводе, заполненном аргоном, представленные в предыдущем параграфе, показали, что характеристика формирующегося предельно короткого импульса на основе

четырёхволнового взаимодействия в газе требует для достижения необходимого временного разрешения дополнительного источника сверхкоротких опорных импульсов с длительностью одного порядка с исследуемым излучением. Это существенно усложняет экспериментальную схему и тем самым ограничивает его применимость. Альтернативные методы, основанные на измерении спектральной и пространственной интерференции, позволяют обойти данное ограничение и осуществить полную характеризацию предельно коротких импульсов при смещении его в нелинейно-оптической среде с квазимонохроматическим излучением, в качестве которого обычно выступает чирпированный или прошедший фильтрацию узкополосным фильтром импульс накачки. Для подтверждения полученных в предыдущем параграфе результатов и оценок, связанных с формированием в результате солитонной самокомпрессии сверхкоротких импульсов длительностью порядка одного периода поля, была реализована одна из разновидностей техники прямого восстановления поля методом спектральной интерферометрии (SPIDER). В представляемой методике информация о фазе поля кодируется с помощью пространственной, а не частотной карты спектральной интерференции (X-SEA-F-SPIDER), позволяя существенно уменьшить ошибки и избежать многих артефактов при восстановлении структуры поля сверхкоротких импульсов [145,146].

В силу ряда технических причин, таких как возможность использования доступных узкополосных оптических фильтров с частотой пропускания вблизи 800 нм и тонкого кристалла ВВО толщиной 20 мкм, а также перспективой получения фазостабильных предельно коротких импульсов, было решено провести эксперименты с титан-сапфировой лазерной системой. Подробное описание реализованной экспериментальной схемы X-SEA-F-SPIDER представлено в параграфе 2.3, где также указано, что данная схема легко модернизируется для работы в более длинноволновом спектральном диапазоне, при установке соответствующих используемой накачке узкополосных фильтров и нелинейно-оптического кристалла. Оптическая накачка полого антирезонансного фотонно-кристаллического волокна осуществлялась в наших экспериментах импульсами холостой волны из оптического параметрического усилителя титан-сапфировой лазерной системы (подробно описанного в параграфе 2.1) на центральной длине волны в области 1.8 - 2.1 мкм с энергией до 180 мкДж и длительностью около 55 фс. В экспериментах использовался отрезок того же волновода,

что и в предыдущем параграфе, поэтому спектр импульса накачки в области длины волны 2 мкм попадал в ту же первую полосу пропускания $\lambda > 1$ мкм, в которой за счёт положительной дисперсии заполняющего световод аргона при давлении до 16 бар обеспечивается широкий диапазон аномальной дисперсии. Таким образом, доступная для данного импульса накачки полоса пропускания волновода шириной более одной октавы позволяет говорить о возможности формирования в условиях предложенного эксперимента предельно коротких импульсов длительностью порядка одного периода поля. Условия представленных ниже экспериментов, позволяют говорить о прямом подобии с представленными в предыдущем параграфе результатами, в частности связанными с оценками минимальной длительности формируемых импульсов в полном фотонно-кристаллическом световоде.

Для исследования динамики спектрально-временного преобразования сверхкоротких импульсов в полых фотонно-кристаллических световодах импульсы холостой волны, формируемые на выходе оптического параметрического усилителя, ослабляются по интенсивности с помощью оптического аттенюатора, состоящего из полуволновой пластинки и поляризатора, и далее заводятся в световод с помощью собирающей линзы с фокусным расстоянием 50 мм. Эффективность заведения излучения в волновод составляет 75%. На Рис.39 представлены спектральные и временные огибающие интенсивности излучения, регистрируемые на выходе полого ФК-световода с диаметром сердцевины 70 мкм длиной 210 мм, заполненного аргоном под давлением 4 бар. Спектрально-временное преобразование лазерных импульсов с начальной энергией до 65 мкДж в таком световоде приводит к генерации излучения с непрерывным спектром в полосе длин волн от 1.0 до 2.7 мкм (Рис.39а).

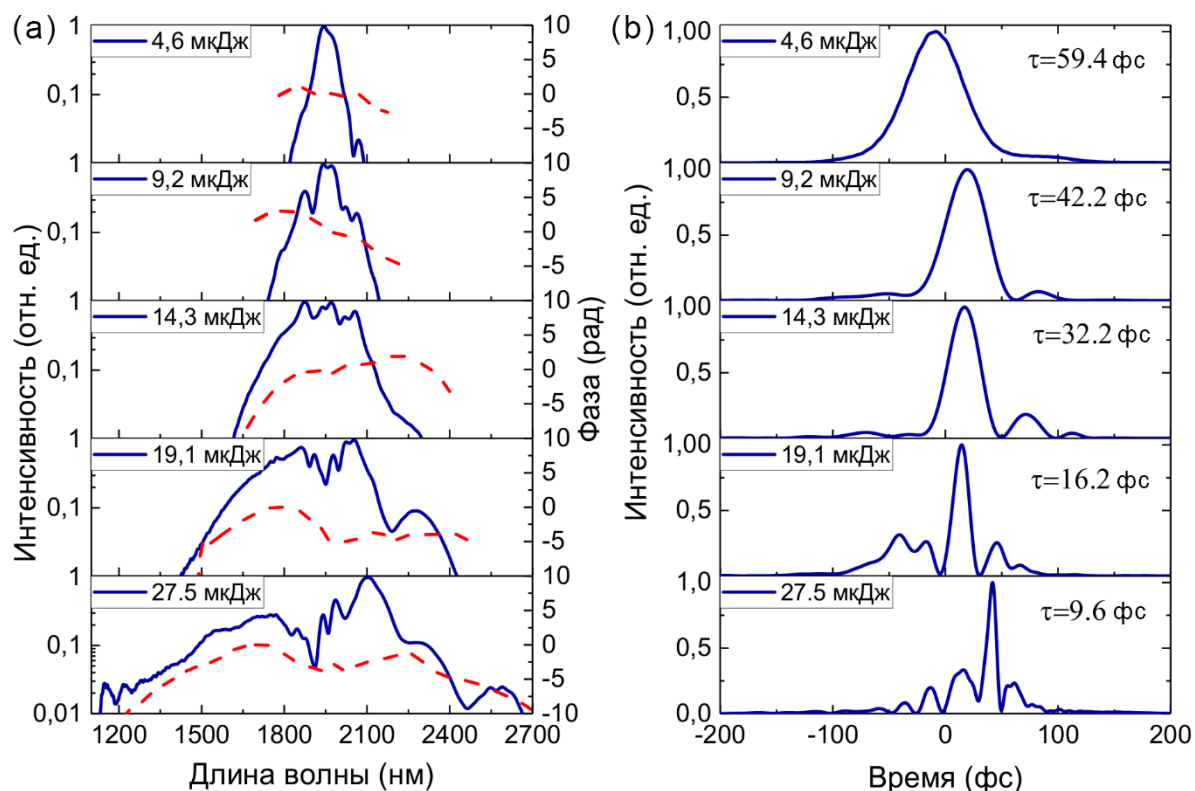


Рис.39. Динамика спектрального уширения (а) и временной компрессии (б) излучения на выходе полого ФК-световода с диаметром сердцевины 70 мкм длиной 210 мм, заполненного аргоном под давлением 4 атмосферы в зависимости от энергии лазерного импульса накачки на входе в волновод.

Высокая скорость регистрации и обработки спектральных карт в режиме реального времени, регистрируемых методом X-SEA-F-SPIDER, позволила провести серию измерений в широком диапазоне начальных энергий импульса и давлений газа в волноводе. Минимальную длительность выходных импульсов, соответствующей максимальному уширению, удалось наблюдать при энергии импульсов 21 мкДж при давлении аргона 8 атмосфер. Длительность получаемых в этом режиме импульсов составляет 6.6 фс по полувысоте, что соответствует примерно одному колебанию поля. При этом в центральном пике по нашим оценкам содержится около 9.8 мкДж, то есть примерно 35% энергии импульса (Рис. 40), а пиковая мощность достигает 1.5 ГВт.

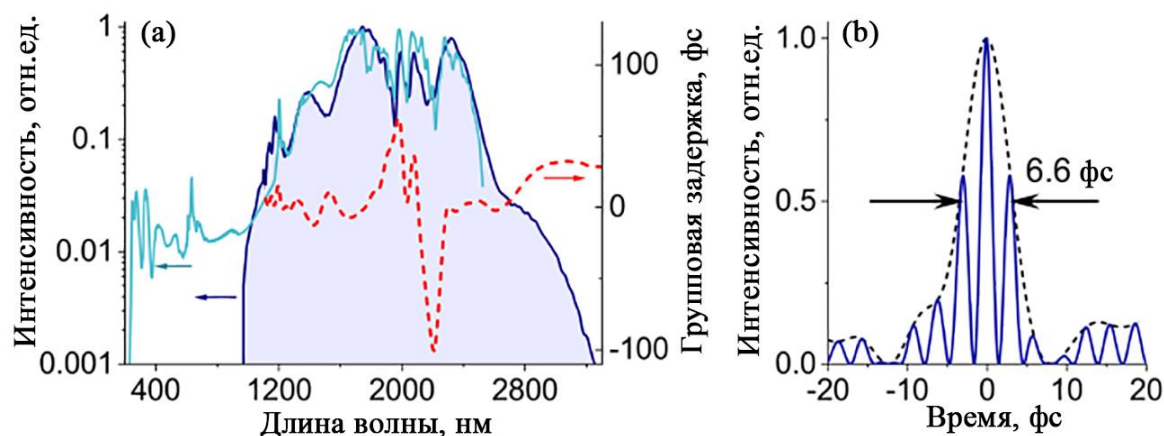


Рис. 40. Спектр и спектральная фаза наиболее короткого импульса на выходе полого фотонно-кристаллического волновода измеренная методом X-SEA-F-SPIDER (а) и восстановленная по нему огибающая поля (б).

Таким образом, в этой главе нами было показано формирование мультиоктавного суперконтинуума, простирающегося от 300 нм до 4.2 мкм, при распространении лазерного импульса среднего инфракрасного диапазона на центральной длине волны 3.2 мкм и длительностью порядка 200 фс в полном антирезонансном фотонно-кристаллическом волокне с оболочкой в виде одного кольца тонкостенных капилляров, заполненном аргоном с давлением в несколько атмосфер. Анализ спектра излучения на выходе волновода, измеренного в широком спектральном диапазоне в зависимости от энергии импульса накачки и давления газа внутри волокна, показал, что образование столь протяжённого мультиоктавного суперконтинуума происходит при формировании необычайно короткого, полупериодного лазерного импульса, в результате солитонной самокомпрессии, усиленной образованием ударной волны огибающей. Реализованная методика прямого измерения светового поля X-SEA-F-SPIDER позволила экспериментально выяснить особенности временной структуры однопериодных импульсов, формируемых в результате солитонной самокомпрессии импульсов накачки на центральной длине волны 2.1 мкм. Длительность формируемых импульсов составляет 6.6 фс по полувывоте, что соответствует одному колебанию поля, а пиковая мощность достигает 1.5 ГВт.

Глава 5. Нелинейно-оптическая спектроскопия на основе генерации высших оптических гармоник с использованием предельно коротких импульсов ближнего и среднего ИК диапазона

В этой главе развиваются методы нелинейно-оптической спектроскопии зонной структуры и сверхбыстрой электронной динамики полупроводниковых материалов на основе явления генерации высших оптических гармоник сверхкороткими импульсами среднего инфракрасного диапазона. В параграфе 5.1 представлены результаты реализации этой методики в поликристалле селенида цинка. Были исследованы различные режимы генерации оптических гармоник, анализ которых обеспечивает возможность восстановления зонной структуры селенида цинка вдоль одного из направлений кристаллической решётки при использовании микроджоулевых фемтосекундных импульсов накачки с центральными длинами волны в диапазоне от 5 до 6.7 мкм. Параграф 5.2 посвящён анализу поляризационных карт гармоник высшего порядка, позволяющих полностью охарактеризовать анизотропные свойства сверхбыстрых фотоиндуцированных токов, возникающих в монокристаллическом полупроводниковом материале под действием сверхкоротких импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона.

5.1 Методика нелинейно-оптической спектроскопии на основе генерации высших оптических гармоник поликристаллического селенида цинка

Для экспериментов по генерации гармоник высоких порядков (ГГВП) в полупроводниковом поликристаллическом образце селенида цинка использовались импульсы с длительностью 85 фс в среднем ИК диапазоне с центральной длиной волны, перестраиваемой в диапазоне от 5.0 до 6.7 мкм и энергией от 7 до 5 мкДж, соответственно. Эти импульсы формируются в Ti:Sapphire лазерной системе, описание которой подробно изложено в параграфе 2.1. В схему были внесены некоторые модификации (Рис. 41). Вместо длинноволнового фильтра на выходе генератора разностной частоты в оптический путь были установлены два клина (WP на Рис. 41) из фторида кальция с малым углом раствора (~10 градусов), которые служили спектрально-угловым сепаратором пучков сигнальной, холостой волн и импульса на разностной частоте. Для фокусировки инфракрасного излучения в поликристаллический образец селенида цинка использовался отражающий объектив 15х, 0.30 NA (LMM-15X-P01, Thorlabs).

Коллимация зондирующего ИК излучения и генерируемых гармоник проводилась линзами из фторида кальция с фокусным расстоянием 50 мм. Профиль перетяжки пучка инфракрасного импульса был измерен методом амплитудного ножа в различных положениях вдоль оси распространения излучения при помощи автоматизированной системы на базе трёхкоординатного трансляционного столика. Это позволило оценить максимальную интенсивность светового поля в перетяжке при фокусировке используемым объективом, которая составила величины порядка 4 ТВт/см^2 и 2.6 ТВт/см^2 для центральных длин волн 5 мкм и 6.7 мкм, соответственно. Так как показатель преломления селенида цинка в данном диапазоне длин волн составляет величину $n = 2.4$, то максимальная напряжённость электрического поля внутри образца достигала значений 0.32 В/Å на длине волны 5 мкм и 0.26 В/Å на длине волны 6.7 мкм.

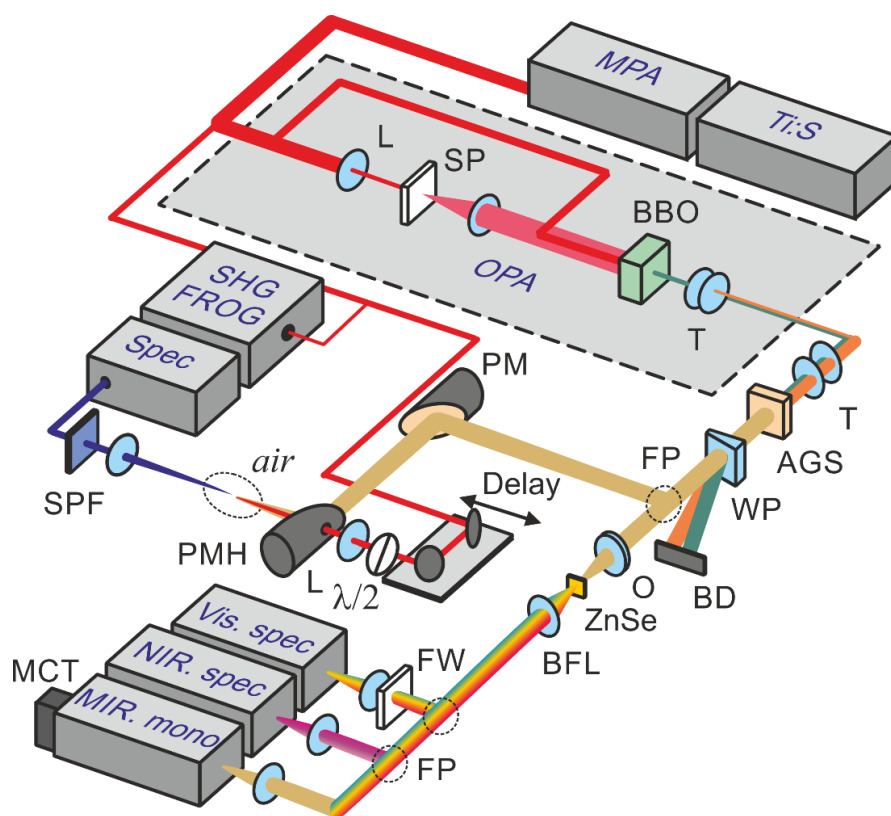


Рис. 41. Схема эксперимента по ГГВП в поликристаллическом образце ZnSe. Ti:S – задающий генератор; MPA – многопроходный усилитель; OPA – ОПУ; Spec – спектрометр видимого диапазона; SP – сапфир; BBO, AGS – нелинейно-оптические кристаллы; T – телескоп; L – линзы, LPF, SPF, – длинноволновые и коротковолновые оптические фильтры; PM – параболическое зеркало; PMH – параболическое зеркало с отверстием; WP – клинья из фторида кальция; BD – экран; O – отражательный объектив x15 0.30NA; FP – откидывающееся зеркало, FW – нейтральный фильтр переменной оптической плотности; Vis. spec. – спектрометр OceanOptics USB2000 (200–1000 nm); NIR spec. – спектрометр SDH-IV (900–2550 nm); MID mono – монохроматор; MCT – HgCdTe детектор инфракрасного излучения.

Регистрация сгенерированного в кристалле ZnSe излучения на частотах от 2-ой до 16-ой гармоник производилась рядом устройств. Спектр в видимой области от 300 до 950 нм регистрировался спектрометром OceanOptics USB2000 с использованием набора фильтров высоких частот для записи каждой гармоники с высоким динамическим диапазоном. Время экспозиции составляла до 30 секунд для наименее ярких гармоник. Гармоники второго, третьего, четвертого и пятого порядков записывались при отведении пучка зеркалом FM при помощи инфракрасного спектрометра, работающего в диапазоне от 900 до 2550 нм (SDH-IV, Solar). Спектр излучения на фундаментальной частоте и второй гармонике в диапазоне от 2.5 до 7 мкм регистрировался при помощи инфракрасного спектрометра на базе монохроматора (МДР-23, с оригинальной схемой автоматизацией) с решеткой 300 см^{-1} , HgCdTe-детектора (PDA10JT, Thorlabs) и синхронного усилителя SR830 (SRS).

В описываемых в данном параграфе результатах экспериментов использовался кристалл селенида цинка (ZnSe) с гранецентрированной кубической (ГЦК) кристаллической решеткой (Рис. 42а). Такой выбор был связан с коммерческой доступностью тонкого образца полупроводника в поли- и монокристаллическом исполнении, ясными перспективами материала в оптоэлектронике, относительно высокой чистотой от примесей получаемых образцов, а также тем, что ГЦК кристаллическая решетка является распространенной и относительно несложной для моделирования, что позволяет интерпретировать результаты экспериментов и расчетов.

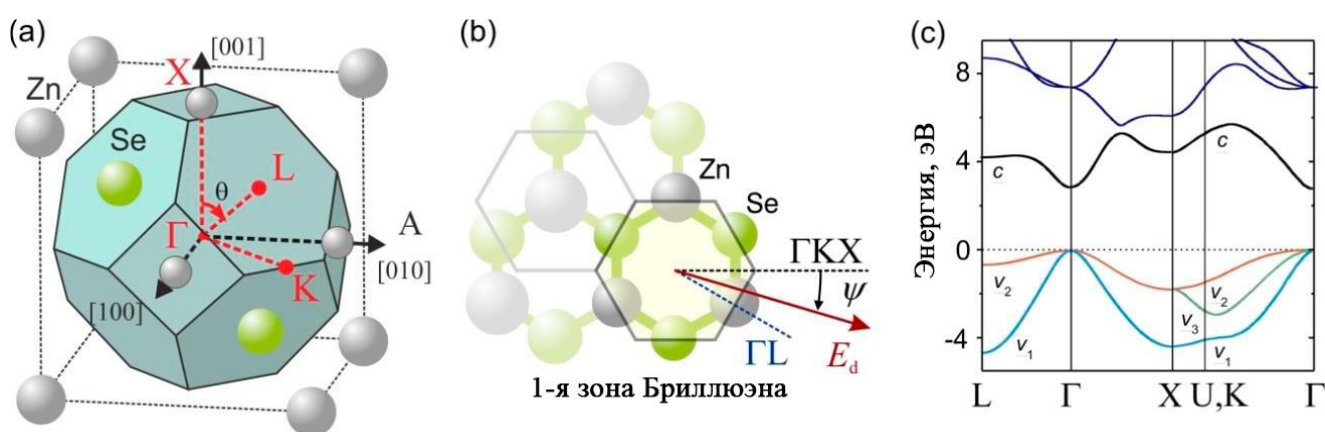


Рис. 42. (а, б) Кристаллическая структура ZnSe с ГЦК и границы первой зоны Бриллюэна в прямом и обратном пространствах в изометрическом виде (а) и вдоль направления $[1,1,1]$ (б). Синей и черной линиями указаны направления Γ L и Γ KX, соответственно. (с) Зонная структура ZnSe с ГЦК решеткой [165].

При наблюдении вдоль направления $[1,1,1]$ (Рис. 42b) элементарный би-слой ГЦК решетки монокристалла ZnSe состоит из отдельных монослоев атомов Zn и Se, уложенные в гексагональную структуру. Каждый атом Zn химически связан с четырьмя атомами Se. Направления ГЛ проходят через атомы Zn и Se по химической связи и лежат почти в плоскости $[1,1,1]$. Кристалл ZnSe – широкозонный полупроводник с запрещенной зоной около 2.8 эВ, что соответствует красной границе на длине волны ~ 480 нм (Рис. 42с).

Используемый образец – поликристаллическая плоскопараллельная ZnSe пластинка толщиной 2 мм была приготовлена методом CVD с зёрнами размером 50-70 мкм. Для определения статистических и количественных характеристик поликристаллической структуры образца и далее режимов его взаимодействия с излучением нами был использован метод микроскопии второй гармоники и осуществлена трехмерная визуализация отдельных монокристаллов из глубоких слоев оптически изотропного поликристалла: был записан стек изображений гранулы кристалла размером около 100 мкм из поликристалла ZnSe глубиной 60 мкм с шагом 0.3 мкм по глубине. Такой стек позволил построить трехмерную реконструкцию кристалла, представленную на Рис. 43 (панель (a)). Одна из граней кристалла расположена на поверхности, другая на глубине 7 мкм, на Рис. 43 также представлены сечения трехмерной картины в плоскостях xy (b) на глубине 7 мкм, в плоскостях xz (c) и yz (d).

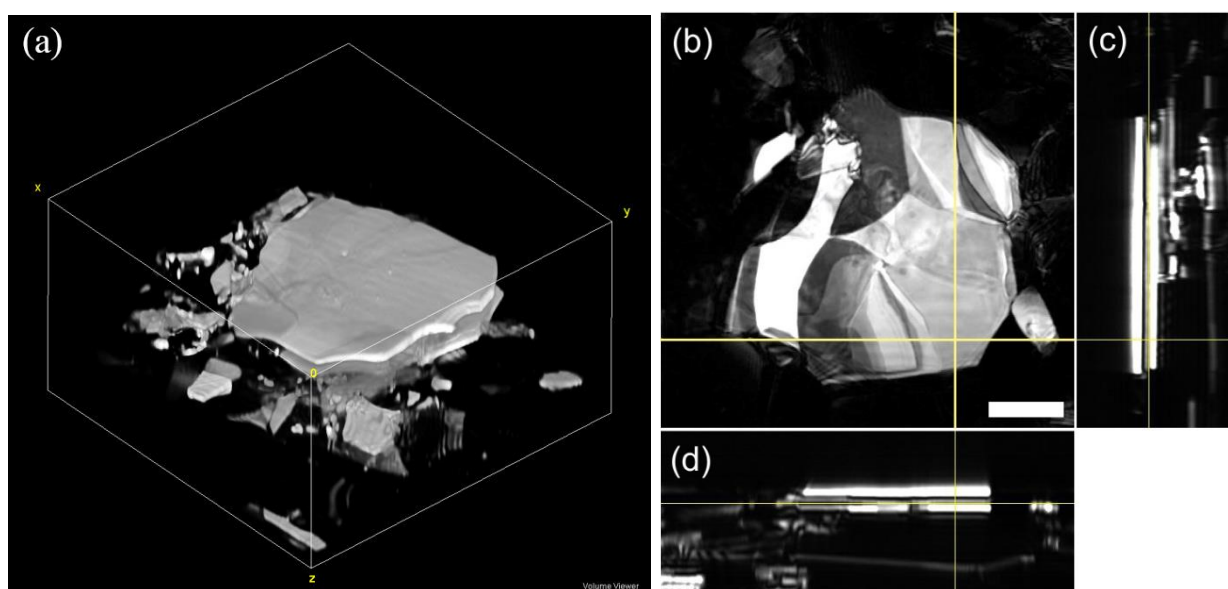


Рис. 43. (a) Трехмерная реконструкция методами ГВГ-микроскопии большого кристаллита в поликристалле ZnSe, одна из граней которого расположена на поверхности, а другая на глубине 7 мкм. Сечения трехмерной картины плоскостями xy (b), yz (c) и xz (d) вдоль желтых прямых на панели (b). Масштабная линейка – 25 мкм.

Использованная методика микроскопии на основе генерации второй гармоники восстанавливает изображения интерфейсов, соответствующих нарушению изотропности среды, поэтому на Рис. 43а визуализируются границы монокристаллов, что дает богатую информацию о структуре и форме образца, в то же время сигнал из объема кристалла напротив слабый, что хорошо видно на срезах трехмерной картины (Рис. 43а панели (с) и (d)). Сравнивая полученные количественные характеристики монокристаллических элементов используемого образца поликристалла селенида цинка с параметрами инфракрасного излучения, фокусируемого отражательным объективом, можно отметить, что толщина отдельных монокристаллических пластинок оказывается на два порядка меньше длины перетяжки излучения, отсчитываемой по половине пиковой интенсивности излучения. Различная относительная пространственная ориентация отдельных монокристаллов приводит к тому, что нелинейно-оптическое преобразование сверхкороткого импульса накачки происходит в среде с некоторыми усреднёнными по большому количеству пластинок параметрами. Эксперимент в таких условиях обладает как преимуществами, связанными нечувствительностью предлагаемый метод спектроскопии зонной структуры к ориентации поликристаллического образца, так и недостатками, определяемых невозможностью составления полной трёхмерной зонной структуры вещества. Однако, как будет показано далее в настоящем параграфе, в случае поликристаллического образца возможно восстановить форму дисперсионной зависимости вдоль одного выделенного кристаллографического направления.

Измеренные в широком диапазоне длин волн спектры высоких оптических гармоник в поликристаллической пластинке селенида цинка толщиной 2 мм при накачке сверхкороткими импульсами на центральной длине волны 5.0 и 6.7 мкм продемонстрированы на Рис. 44. В режиме низких интенсивностей световых полей, при интенсивности накачки $I_0 < 0.04$ ТВт/см², напряжённость электрического поля в полупроводниковом материале $E_0 < 0.03$ В/Å приводит к небольшим возмущениям индуцированной поляризации. Спектр оптических гармоник, сгенерированных в селениде цинка в этом режиме, представляет собой набор гармоник низкого порядка (Рис. 44a-d), интенсивность которых быстро убывает с номером гармоники. В наших экспериментах наблюдались как четные, так и нечетные гармоники вследствие того, что гранецентрированная кубическая кристаллическая решетка селенида цинка является изотропной, но нецентросимметричной. Если рассматривать интенсивности отдельных

гармоник как функции интенсивности излучения накачки I_0 в режиме низких интенсивностей, то эта функция удовлетворяет степенной зависимости I_0^N (штрихпунктирные линии на Рис. 44g-h), где N – номер гармоники. Такая функциональная зависимость указывает на канонический «пертурбативный» сценарий генерации гармоник, то есть описываемый в рамках теории возмущений. Ранее в подобном режиме наблюдалась генерация гармоник вплоть до седьмого порядка в поликристаллическом образце селенида цинка толщиной 3 мм при накачке 200 фс импульсами на центральной длине волны 3.9 мкм [166].

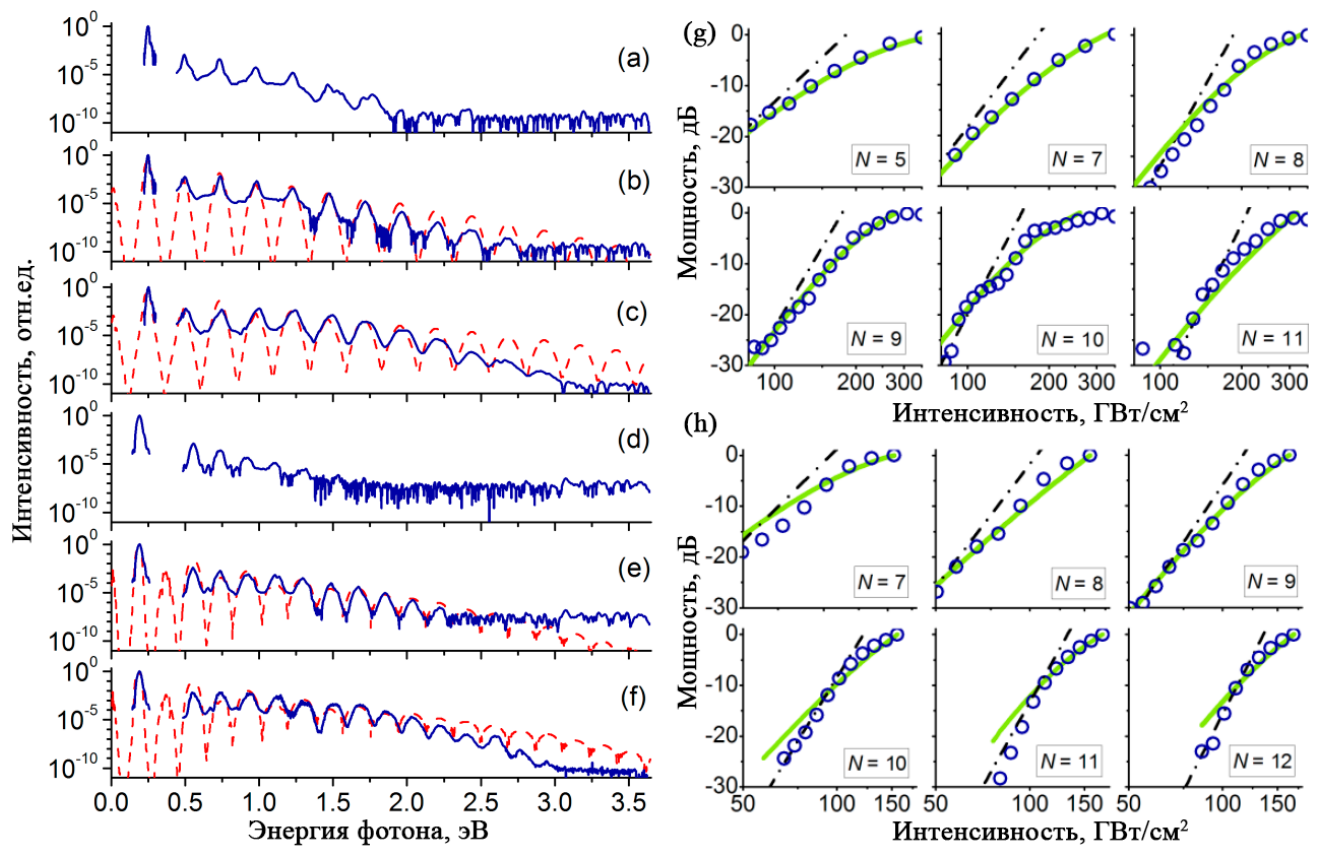


Рис. 44. Измеренные (синие линии) и рассчитанные (красные) спектры высших оптических гармоник из поликристаллического кристалла ZnSe толщиной 2 мм, при накачке импульсами на длине волны 5.0 мкм (a – c) и 6.7 мкм (d – f). Интенсивность накачки оставляла 0.04 ТВт/см² (a), 0.17 ТВт/см² (b), 0.32 ТВт/см² (c), 0.04 ТВт/см² (d), 0.13 ТВт/см² (e), 0.19 ТВт/см² (f). (g, h) Зависимости мощности гармоник с номерами N от интенсивности накачки на длине волны 5.0 мкм (g) и 6.7 мкм (h), соответственно. Штрихпунктирными линиями показаны степенные зависимости. Зеленые линии показывает теоретический расчет квазибаллистической модели.

Как показывают спектры гармоник наших экспериментов для интенсивностей излучения накачки $I_0 > 0.10 - 0.15$ ТВт/см² физические процессы, ответственные за генерацию высоких оптических гармоник в твердом теле, значительно отличаются от

представленного выше пертурбативного режима. В этом диапазоне интенсивностей излучения накачки спектры гармоник демонстрируют хорошо различимое плато, заканчивающееся некоторой частотой отсечки. По своей зависимости от пиковой интенсивности импульса накачки, интенсивности гармоник в этом режиме значительно отличаются от степенных зависимостей I_0^N , указывая на сильно непертурбативный режим взаимодействия светового поля с веществом (Рис. 44g-h), то есть не поддающийся описанию в рамках теории возмущения. Для интенсивностей накачки $I_0 > 0.2 - 0.3$ ТВт/см² спектр гармоник растягивается до самого края запрещенной зоны селенида цинка ($\Delta_0 \approx 2.8$ эВ), продолжаясь и за ним при больших I_0 .

В полуклассическом описании явления внутризонной генерации оптических гармоник высшего порядка в твердых телах [10,106] импульс электронного волнового пакета $k(t)$, находящегося под действием лазерного поля $E(t)$, вычисляется из теоремы Блоха при помощи интеграла [94,106]:

$$k(t) = -\frac{e}{\hbar} \int_{-\infty}^t \mathbf{E}(\theta) d\theta, \quad (5)$$

где e – заряд электрона. Для интенсивностей накачки I_0 порядка 0.4 ТВт/см², соответствующей напряжённости поля E_0 порядка 0.13 В/Å в образце селенида цинка, величину импульса $k_e = eE_0/\hbar\omega_0$ приобретаемого электроном в результате его колебательного движения под действием поля фундаментальной волны с частотой ω_0 , можно оценить как $k_e \sim 0.29$ а.е. и 0.37 а.е. для $\lambda_0 = 5.0$ мкм и $\lambda_0 = 6.7$ мкм, соответственно. Сравнивая эти значения с размером зоны Бриллюэна селенида цинка вдоль основных направлений осей симметрии ГЛ, ГХ и ГК (~ 0.5 а.е., 0.58 а.е. и 0.62 а.е., соответственно), можно видеть, что индуцированное лазерным полем колебательное движение электронов с таким импульсом может зондировать практически всю зону Бриллюэна, достигая краев зоны при движении вдоль направлений ГЛ и ГХ. Таким образом, генерируемые в результате подобной колебательной динамики электронов оптические гармоники с высокими номерами несут в себе информацию об особенностях топологии зонной структуры полупроводника и позволяют провести количественный расчет ангармоничности зоны.

Зонная структура селенида цинка в наших расчётах задавалась аппроксимацией результатов полного численного анализа зонной структуры [165] (сплошная синяя линия

на Рис. 42с) и представлялась в виде суммы пяти гармонических компонент зависимости $\varepsilon(k) = \varepsilon_0 + \sum_{s=1}^5 \varepsilon_s \cos(ska)$. Спектр высших оптических гармоник затем вычисляется [10] при помощи преобразования Фурье от производной по времени внутризонных токов $j(t) = en_e v(t)$, где $v(t) = \hbar^{-1}(d\varepsilon/dk)|_{k(t)}$ – скорость электронного волнового пакета, n_e – концентрация электронов в конкретной зоне проводимости, $k(t)$ – определяется интегрированием выражения (5) с начальными условиями $k(0) = 0$, и учётом того, что все электроны находятся в точке Γ в начальный момент времени. Электрическое поле импульса накачки задаётся в виде

$$E(t) = E_0 \exp(-2\ln 2 t^2 / \tau_0^2) \times [\cos \omega_0 t + \alpha \cos(2\omega_0 t + \varphi_0)], \quad (6)$$

где $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ несущая частота и τ_0 – длительность импульса накачки по полувысоте. В вычислениях значение τ_0 полагалось 85 фс. Слагаемое, отвечающее в выражении (6) для поля за вторую гармонику, включено в модель для учёта ее генерации на интерфейсах монокристаллических зёрен, а также отсутствия центральной симметрии нелинейной оптической поляризации в толще материала селенида цинка. Зависимости $I_N(I_0)$ интенсивностей N -х гармоник I_N от интенсивности импульса накачки I_0 для всех рассматриваемых N оказались нечувствительны к значению относительной фазы φ_0 поля второй гармоники и фундаментальной частоты и доли мощности, сосредоточенной во второй гармонике α , поэтому были приняты в расчётах за $\varphi_0 = 0$ и $\alpha = 0.02$, что примерно соответствует реальной измеренной доле излучения на удвоенной частоте.

Спектры оптических гармоник, генерируемых колебательным движением электронов и дырок в соответствующих валентных и зонах проводимости (Рис. 42с) селенида цинка под действием электрического поля импульса накачки с амплитудой $E_0 = 0.07$ В/Å, длительностью $\tau_0 = 85$ фс, на центральной длине волны $\lambda_0 = 6.7$ мкм представлены на Рис. 45а-с. В связи с тем, что наиболее сильная нелинейность демонстрируется вдоль направлений симметрии ΓL и ΓK зоны проводимости,двигающиеся вдоль этих направлений электронные волновые пакеты излучают наиболее протяжённые спектры гармоник (фиолетовая и синяя зависимости на Рис. 45d), достигая наибольших номеров гармоник. Высокая нелинейность зонной структуры вдоль этих направлений позволяет выделить их вклад в общий спектр гармоник даже в экспериментах с поликристаллическим образцом, несмотря на то что в таком эксперименте неизбежно происходит усреднение сигнала по всем возможным ориентациям отдельных

монокристаллических зёрен, присутствующих в фокальном объёме излучения накачки. (Подобный подход был успешно применён в экспериментах с поликристаллическим образцом оксида кремния [13]). Движение электронов вдоль оси ГХ приводит к генерации наиболее протяжённого плато в спектре гармоник (синяя линия на Рис. 45d), однако направление ГЛ позволяет получить наибольшую интенсивность гармоник, простирающуюся до края запрещённой зоны (фиолетовая линия на Рис. 45d), поэтому зонная структура вдоль именно этого кристаллографического направления может быть восстановлена в экспериментах по генерации высших оптических гармоник в толстых поликристаллических образцах селенида цинка.

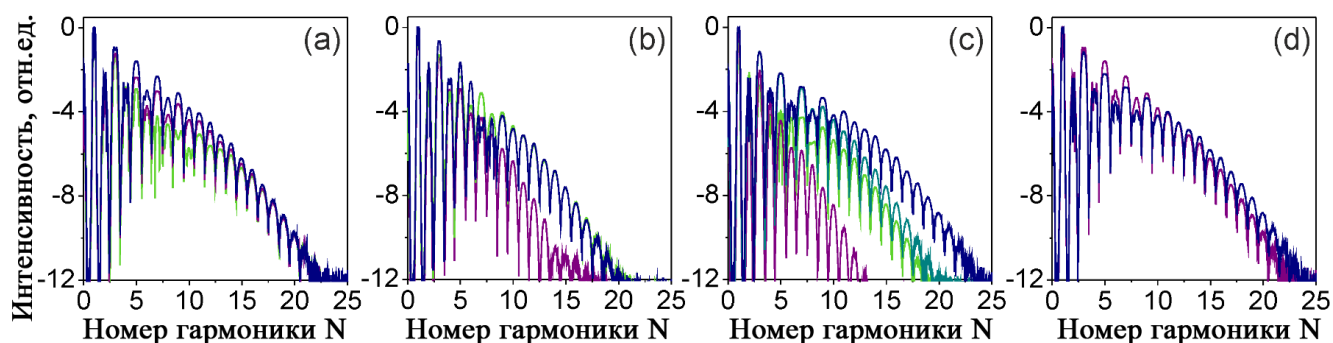


Рис. 45. Спектры высоких оптических гармоник сгенерированных в результате движения электронов (тёмно-синие линии) и дырок (остальные) в соответствующих валентных зонах и зонах проводимости вдоль основных направлений симметрии зонной структуры кристалла селенида цинка ГЛ (a,d), ГХ (b) и ГК (c,d) в поле импульса накачки с параметрами $E_0 = 0.07 \text{ В/Å}$, $\tau_0 = 85 \text{ фс}$, $\lambda_0 = 6.7 \text{ мкм}$. (d) наиболее широкие спектры гармоник, генерируемые электронными волновыми пакетами при движении в зоне проводимости вдоль направлений ГЛ (фиолетовая линия) и ГК (синяя линия).

Измеренные экспериментальные зависимости интенсивностей отдельных гармоник от мощности инфракрасного импульса накачки (круги на Рис. 44g-h) показывают хорошее совпадение с рассчитанным в рамках нашей модели генерацией высших оптических гармоник в твёрдых телах (сплошные линии на Рис. 44g-h) при задании профиля зонной структуры селенида цинка в виде суммы пяти гармоник, определяемых по данным работы [165]. Для низких интенсивностей накачки $I_0 < 0.04 \text{ ТВт/см}^2$ характерно преобладание степенной зависимости I^N , в то время как непертурбативный режим генерации гармоник высокого порядка, при котором зависимость $I_N(I_0)$ отклоняется от степенной зависимости I^N , является наиболее интересным, позволяя выполнить обратную процедуру и восстановить профиль зонной структуры по энергетической зависимости спектров гармоник. Для этого выполняется определение набора амплитуд пяти спектральных

компонент профиля зоны Бриллюэна ε_s , обеспечивающего наилучшее одновременное совпадение предсказаний описанной модели генерации гармоник высшего порядка с экспериментально измеренными зависимостями интенсивностей нескольких отдельных гармоник от пиковой интенсивности импульса накачки. Аппроксимация выполнялась для двух наборов зависимостей интенсивности гармоник: $N = 5, 7, 8, 9, 10, 11$ для импульса накачки на центральной длине волны 5.0 мкм (Рис. 44g), и $N = 7, 8, 9, 10, 11, 12$ для импульса накачки на центральной длине волны 6.7 мкм (Рис. 44h). В рамках нашей модели внутризонного механизма генерации высоких оптических гармоник в твёрдом теле были вычислены отдельные вклады в спектр излучения гармоник для первых пяти компонент разложения в ряд Фурье профиля зоны проводимости селенида цинка вдоль направления ГЛ. Полученные зависимости мощности гармоник от интенсивности импульса накачки представлены на Рис. 46.

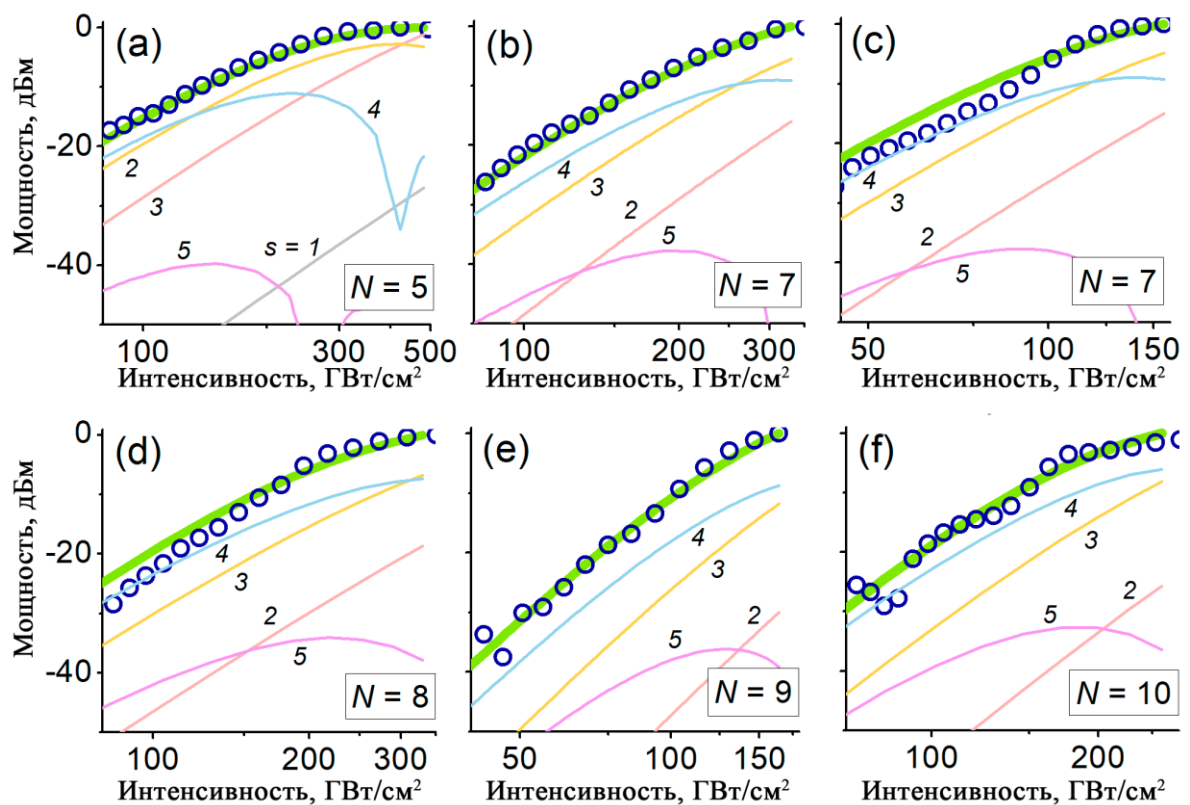


Рис. 46. Зависимость мощности оптических гармоник с номерами $N = 5$ (a), 7 (b,c), 8 (d), 9 (e), 10 (f) от интенсивности импульса накачки на центральной длине волны 5.0 мкм (a,b,d,f) и 6.7 мкм (c,e) в 2 мм пластинке поликристаллического селенида цинка. Кругами показаны экспериментальные результаты, сплошными линиями показаны интенсивности гармоник с номером N , генерирующейся отдельной спектральной компонентой с номером s профиля зоны проводимости вдоль направления ГЛ, вычисленными в рамках описанной модели внутризонного механизма ГТВП в твёрдых телах для $s = 1$ (серые), 2 (красные), 3 (жёлтые), 4 (синие) и 5 (розовые кривые).

В результате независимой аппроксимации для двух наборов зависимостей мощностей гармоник при различных центральных длинах волн импульса накачки были получены два набора амплитуд спектральных компонент профиля зоны проводимости в направлении ГЛ, представленные в таблице 2. Полученные наборы амплитуд хорошо согласуются как между собой, так и со спектральными амплитудами профиля зоны, полученного по результатам полного анализа зонной структуры $\varepsilon(k)$ селенида цинка из работы [165]. Аппроксимация выполнена методом наименьших квадратов, погрешности спектральных амплитуд ε_s найдены как диапазон, в пределах которого значения ε_s могут варьироваться, приводя к изменениям суммы квадратов ошибок не более чем на 10%. Для оценки устойчивости по выборке для аппроксимации были выделены экспериментальные точки, отстоящие от результата моделирования более, чем на фактор 1.5 величины стандартного отклонения, и аппроксимация была выполнена заново с уменьшением в два раза веса выделенных точек. Результат повторной аппроксимации не отличался от изначального более чем на 10%, что подтверждает её устойчивость.

s	Значения ε_s полученные по результатам полного анализа зонной структуры $\varepsilon(k)$ селенида цинка, а.е.	Значения ε_s восстановленные по экспериментальным данным для импульсов накачки (а.е.) на центральной длине волны:	
		$\lambda_0 = 5.0$ мкм	$\lambda_0 = 6.7$ мкм
1	-0.0207	-0.018 ± 0.008	-0.017 ± 0.011
2	-0.0131	-0.016 ± 0.007	-0.012 ± 0.008
3	-0.0041	-0.004 ± 0.001	-0.003 ± 0.001
4	-0.0012	-0.0010 ± 0.0002	-0.0014 ± 0.0003
5	$-3.5 \cdot 10^{-4}$	$(-3 \pm 2) \cdot 10^{-4}$	$(-3 \pm 2) \cdot 10^{-4}$

Таблица 2. Амплитуды Фурье-компонент профиля зоны проводимости селенида цинка вдоль направления ГЛ полученные в результате полного анализа зонной структуры $\varepsilon(k)$ и восстановленные по аппроксимации экспериментальных данных в рамках описанной модели внутризонного механизма ГГВП в твёрдом теле.

Стоит также отметить, что факт регистрации спектра, состоящего из ярко выраженных отдельных гармоник, возникающий под действием импульса накачки на центральной длине волны вплоть до 6.7 мкм, является значимым сам по себе, наглядно демонстрируя, что существенной доле электронов удаётся избежать потери когерентности в результате рассеяния на временных масштабах порядка периода излучения накачки [10,12], что

позволяет говорить о возможности применения сверхкоротких инфракрасных импульсов в задачах зондирования зонной структуры полупроводников.

Таким образом, в результате проведенных экспериментов реализован полностью оптический метод зондирования зонной структуры полупроводника на основе генерации высоких оптических гармоник от сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона. При зондировании поликристаллического образца селенида цинка фемтосекундными микроджоулевыми импульсами на центральной длине волны в диапазоне от 5.0 до 6.7 мкм с пиковой интенсивностью $I_0 > 0.1$ ТВт/см² была зарегистрирована генерация четных и нечетных оптических гармоник в режиме, в котором зависимость их мощности от пиковой интенсивности импульса накачки, значительно отличаются от степенной зависимости I_0^N , указывая на сильно непертурбативный режим взаимодействия светового поля с веществом. В этом режиме импульс электрона селенида цинка, приобретаемый под действием поля, напряжённость которого достигает значений порядка 0.1 В/Å, что соответствует краям зоны Бриллюэна, и его вынужденная колебательная динамика позволяет получать информацию о топологии зонной структуры полупроводника. Анализ энергетической эффективности генерации высоких гармоник 5 – 12 порядка в непертурбативном режиме позволил определить внутри- и межзонные механизмы генерации гармоник, и точно восстановить профиль зоны проводимости селенида цинка вдоль направления ΓL, обладающего наибольшей нелинейностью. В наших экспериментах впервые был зарегистрирован спектр высших оптических гармоник вплоть до 16-го порядка от импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона с длинами волн от 5.0 до 6.7 мкм, сгенерированным в поликристаллическом образце селенида цинка и простирающимся в диапазоне 250 - 400 нм, что соответствует энергии фотона больше ширины запрещённой зоны ($\Delta_0 \approx 2.8$ эВ).

5.2 Полностью оптический анализ зонной структуры и сверхбыстрой динамики электронов в монокристаллическом полупроводниковом материале на основе генерации высших оптических гармоник

Как показали наши эксперименты, описанные в предыдущем параграфе, явление генерации высших оптических гармоник в полупроводниковом материале является эффективным методом анализа его зонной структуры. Однако, при использовании в этих

целях поликристаллического образца, спектр гармоник несёт в себе усреднённую информацию об электронных и дырочных токах вдоль разных направлений, позволяя уверенно выделить только вклад токов вдоль основных кристаллических осей с профилем с наиболее сильной нелинейностью. Для полного трёхмерного анализа зонной структуры материала необходимо использовать относительно тонкие монокристаллические образцы, что позволяет реализовать точный контроль ориентации кристаллической решётки относительно вектора напряжённости электрического поля импульса накачки. Поэтому представленные ниже эксперименты с монокристаллическим селенидом цинка стали естественным продолжением описанных выше результатов с поликристаллическим образцом. В качестве образца для исследования генерации гармоник была взята монокристаллическая квадратная пластинка селенида цинка размером 10x10 мм толщиной 200 мкм с гранецентрированной кубической кристаллической решёткой, направление [1,1,1] которой совпадает с нормалью к поверхности пластинки. Для автоматизации сканирования его ориентации относительно поляризованного поля накачки, кристалл был зафиксирован на вращающемся моторизованном держателе.

Эксперименты были проведены на иттербиевой килогерцовой лазерной системе, подробно описанной в параграфе 2.2, позволяющей получить импульсы среднего инфракрасного диапазона с большей энергией, что в свою очередь снижает требования к фокусировке излучения в образец и приводит к увеличению мощности генерируемых оптических гармоник при той же пиковой интенсивности накачки. Спектрально-ограниченные импульсы накачки длительностью менее 200 фс на центральной длине волны 3.6 мкм с энергией до 100 мкДж фокусировались в область перед образцом линзой из фторида кальция с фокусным расстоянием 40 мм (Рис.47).

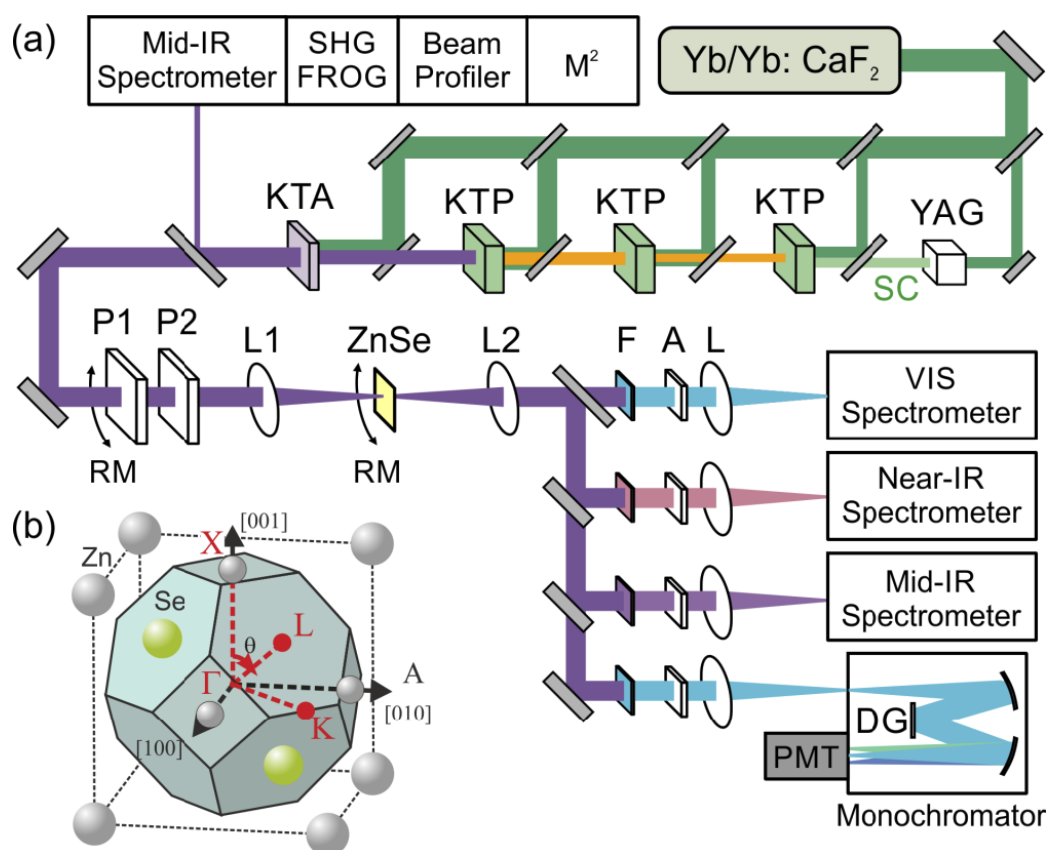


Рис.47. (а) Схема эксперимента, включающая регенеративный усилитель на ионах иттербия, четыре стадии параметрического усиления инфракрасных импульсов на 1.48 и 3.6 мкм, систему характеристики сформированного на выходе оптического параметрического усилителя и излучения, систему управления энергией и поляризацией ИК импульсов, а также схему регистрации гармоник в мультиоктавном спектральном диапазоне от УФ до среднего ИК. (б) Границы первой зоны Бриллюэна кристалла ZnSe с ГЦК в трехмерном обратном пространстве.

Интенсивность поля накачки в материале не превышала значения 0.4 ТВт/см^2 во всех экспериментах, чтобы избежать повреждений кристалла. Интенсивность на образце варьировалась изменением энергии импульса накачки при помощи пары специальных решеточных поляризаторов для среднего ИК диапазона. Излучение гармоник коллимировалось линзой с фокусным расстоянием 50 мм и затем фокусировалось на входные щели спектрометров видимого и ИК диапазонов. Для регистрации света в видимом диапазоне использовался кремниевый спектрометр OceanOptics «HR4000 UV», в инфракрасной области спектра нам позволяли работать компактные спектрометры «SDH-IV» и «SDH-IV MIR», оснащённые линейкой из InGaAs. Перед спектрометрами устанавливался анализатор, ориентированный горизонтально или вертикально, что позволяло записывать последовательно параллельную и перпендикулярную квадратуру интенсивности гармоники по отношению к поляризации накачки. Направление кристалла

[1,1,1] было коллинеарно волновому вектору $\mathbf{k}$ импульса накачки, таким образом, вектор напряженности E_0 составлял угол ψ с направлением ГКХ в зависимости от поворота кристалла вокруг вектора $\mathbf{k}$ (Рис.47b).

Так как наши эксперименты связаны с точными количественными исследования воздействия интенсивных инфракрасных полей на твердотельную мишень, аккуратные измерения пиковой интенсивности импульсов являлись важным пунктом подготовительной работы. Полная характеристика инфракрасного импульса накачки во временном представлении была выполнена при помощи метода нелинейно-оптического стробирования с разрешением по частоте при смешении с репликой импульса на выходе регенеративного усилителя в воздухе (FWM XFROG), описанного в параграфе 2.3. Для измерения качества пучка M^2 и размера перетяжки во всем ИК диапазоне была собрана полностью автоматизированная компактная переносная оптическая схема на основе пьезоэлектрической многоканальной камеры и одноканального детектора, совмещенного с техникой оптического ножа. В результате получены параметры $M^2 \approx 1.06$ для холостой волны на длине волны 3.2 мкм по горизонтальной и вертикальной осям. Эти измерения позволили точно оценивать интенсивности импульсов накачки в области взаимодействия с образцом.

Спектры высоких оптических гармоник, зарегистрированные в экспериментах при относительно высоких интенсивностях инфракрасного импульса накачки $I_0 > 0.10-0.15$ ТВт/см², демонстрируют наличие ярко выраженного плато, простирающегося до некоторой частоты отсечки (Рис. 48а), что свидетельствует о сильно непертурбативном режиме взаимодействия. Зависимости мощностей отдельных гармоник от интенсивности накачки I_0 (Рис. 48с) в этом режиме значительно отличаются от зависимостей вида I_0^N , наблюдающихся при низких интенсивностях (пунктирные линии на Рис. 48с). Природа этих зависимостей и явлений была подробно описана в предыдущем параграфе.

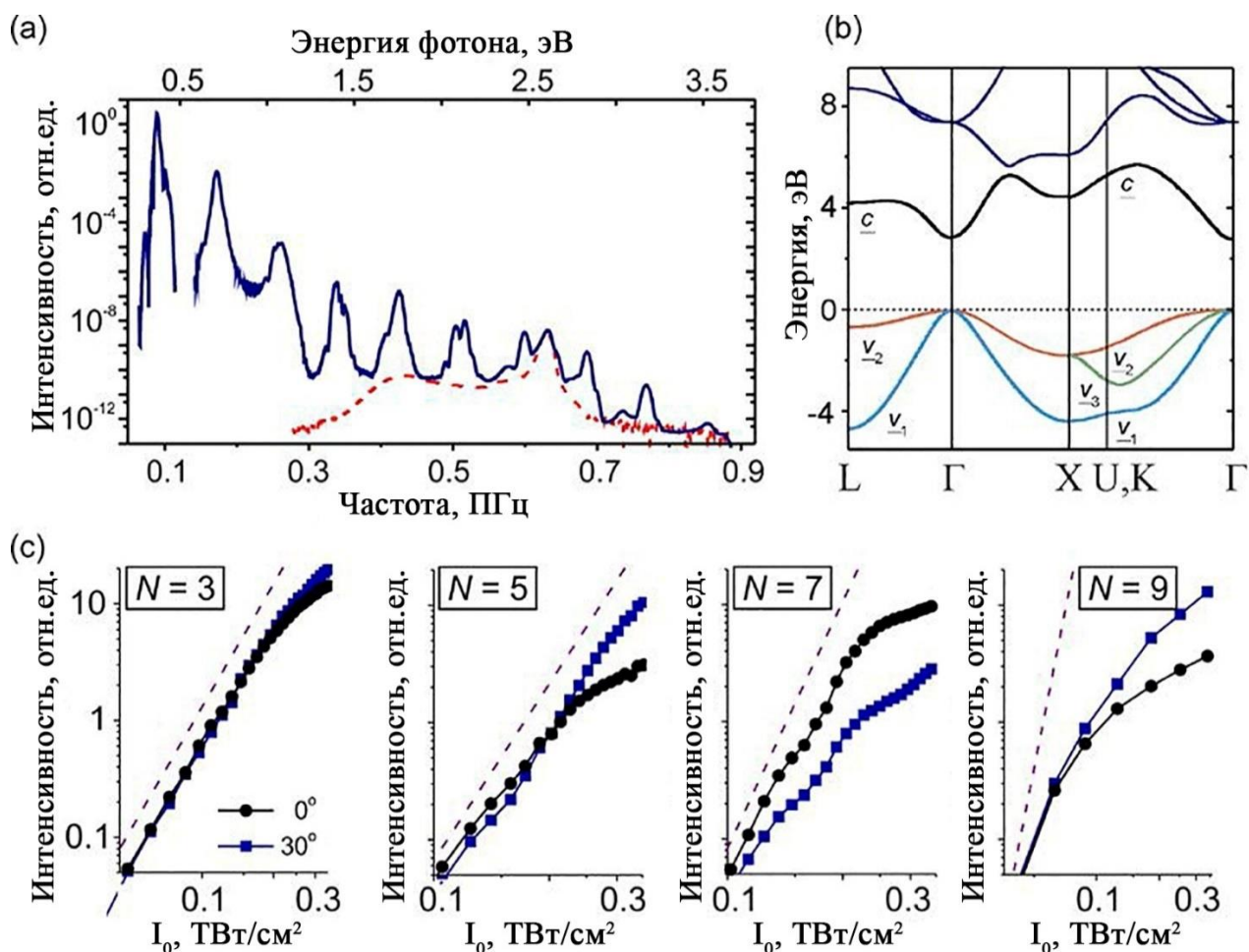


Рис. 48. (а) Экспериментально записанный спектр генерации гармоник до 10 порядка включительно при интенсивности накачки $\sim 0.4 \text{ ТВт/см}^2$. (b) Зонная структура ZnSe с ГЦК решеткой [165]. (c) Зависимости мощности нечетных гармоник от интенсивности накачки, генерирующиеся при ориентации кристалла $\psi = 0^\circ$ (круги) и 30° (квадраты). Закрашенные фигуры соответствуют параллельной поляризации гармоники относительно накачки, пустые – перпендикулярной поляризации. Фиолетовая пунктирные линии показывают степенные зависимости, соответствующие пертурбативному режиму.

Эффективность преобразования импульса накачки во вторую и третью гармонику η_2 и η_3 были определены в прямых измерениях мощности излучения на удвоенной и утроенной частотах калиброванным германиевым детектором. Для максимальной интенсивности импульса накачки $I_0 \approx 0.4 \text{ ТВт/см}^2$ эти эффективности составили $\eta_2 \approx 5 \cdot 10^{-3}$ и $\eta_3 \approx 10^{-5}$, исключая таким образом наличие возможного истощения накачки в процессе нелинейно-оптического преобразования излучения в высшие гармоники. Измерение поляризационных компонент излучения гармоник при помощи анализаторов, расположенных перед соответствующими спектрометрами («А» на Рис.47а), показало наличие слабой, но уверенно детектируемой компоненты, перпендикулярной

поляризации импульса накачки. Эти перпендикулярные компоненты были как минимум на порядок слабее компонент, параллельных накачке, поэтому все результаты, представленные ниже, сфокусированы на анализе излучения поляризованного параллельно накачке.

Максимальная интенсивность излучения инфракрасного импульса накачки в наших экспериментах не превышала значения 0.4 ТВт/см^2 , что позволяло не только избежать повреждения материала, но и пренебречь в рассмотрении явления генерации гармоник высокого порядка нежелательными эффектами самофокусировки и фазовой самомодуляции. Действительно, нелинейный набег фазы $\varphi_{nl} \approx (2\pi/\lambda_0)n_2I_0L$ на оси пучка для пиковой интенсивности импульса накачки 0.4 ТВт/см^2 на центральной длине волны 3.6 мкм в кристалле селенида цинка толщиной $L \approx 200 \text{ мкм}$ с нелинейным показателем преломления второго порядка $n_2 \approx 6 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$ [167] оказывается меньше $\pi/4$, что значительно меньше типичных значений φ_{nl} при которых явления самовоздействия оказывают влияние на картину генерации оптических гармоник высокого порядка [168].

Для выявления физических механизмов, стоящих за процессом генерации оптических гармоник высокого порядка в наших экспериментах, мы воспользовались теоретической моделью, сочетающей в себе вклады внутризонных фототоков и межзонных дипольных переходов [10,106,131]. Численный анализ в рамках данной модели, в соответствие с ранними работами [9,10,13,14,17], показал что генерация гармоник с энергией фотонов меньше ширины запрещённой зоны E_g селенида цинка происходит в основном под действием внутризонных фототоков, в то время как межзонные переходы в большей степени ответственны за генерацию гармоник с энергией фотонов больше ширины запрещённой зоны E_g . В частности для пятой гармоники, генерирующейся при накачке сверхкороткими импульсами среднего инфракрасного диапазона, вклад внутризонных токов оказывается на порядок больше вклада межзонных переходов.

Внутризонный фототок, возникающий в кристалле селенида цинка под действием поля импульса накачки $\mathbf{E}_0 = \mathbf{e}_0 E_0$ можно выразить в виде суммы по соответствующим электронным зонам:

$$J(t) = \sum_i J_i(t) = \sum_i q_i n_i v_i(t), \quad (7)$$

где q_i – электрический заряд, n_i – концентрация носителей заряда в соответствующей i -ой зоне, $\mathbf{v}_i$ – групповая скорость волнового пакета носителей заряда под действием лазерного поля в i -ой зоне. Для зоны с профилем зонной структуры $\varepsilon_i(\mathbf{k})$, групповая скорость волнового пакета задаётся выражением $\mathbf{v}_i(\mathbf{k}) = \hbar^{-1} \nabla_{\mathbf{k}} \varepsilon_i(\mathbf{k})$. Раскладывая $\varepsilon_i(\mathbf{k})$ в ряд Фурье $\varepsilon_i(\mathbf{k}) = \Delta_i + \sum_s \varepsilon_{i,s} \cos(s\mathbf{k}\mathbf{a}_i)$, где $\Delta_i = E_g$ для электронов (E_g – ширина запрещённой зоны) и $\Delta_i = 0$ для дырок, $\mathbf{a}_i = a_i \mathbf{e}_i$, a_i – постоянная решётки и $\mathbf{e}_i$ – единичный вектор направления i -ой зоны, и используя следствие теоремы Блоха [106], можем записать выражение для фотоиндуцированного тока в i -ой зоне:

$$J_i(t) = q_i n_i a_i \mathbf{e}_i \hbar^{-1} \sum_s \varepsilon_{i,s} \sin \left[s a_i \mathbf{e}_i \left(\mathbf{k}_i - q_i \hbar^{-1} \int_{t_1}^t \mathbf{E}_0(\theta) d\theta \right) \right], \quad (8)$$

где t_1 – момент времени, в который волновой пакет носителей заряда возникает в i -ой зоне, а $\mathbf{k}_i$ – начальный волновой вектор волнового пакета фотоиндуцированных носителей заряда в i -ой зоне.

Все фотоиндуцированные токи $J_i(t)$, для которых скалярное произведение $\mathbf{E}_0 \mathbf{e}_i$ не равно нулю, являются источниками излучения гармоник высокого порядка. В соответствии с выражением (8) мощности излучения гармоник определяются отношением ω_{Bi}/ω_0 частоты Блоха $\omega_{Bi} = eE_0 a(\mathbf{e}_i \mathbf{e}_0)$ к несущей частоте импульса накачки ω_0 . В условиях наших экспериментов доминирующий вклад в спектр гармоник высокого порядка вносят фотоиндуцированные токи электронов и дырок вдоль направлений ГЛ и ГКХ селенида цинка в зоне проводимости c и в трёх валентных зонах v_1 , v_2 и v_3 (Рис. 48b). На Рис. 49 представлены вычисленные отдельные амплитуды соответствующих вкладов в полную интенсивность нечётных гармоник (с третьей по девятую) в зависимости от интенсивности импульса накачки. Спектральные амплитуды профиля зонной структуры $\varepsilon_{i,s}$ определены по данным полного анализа зонной структуры ZnSe из работы [165].

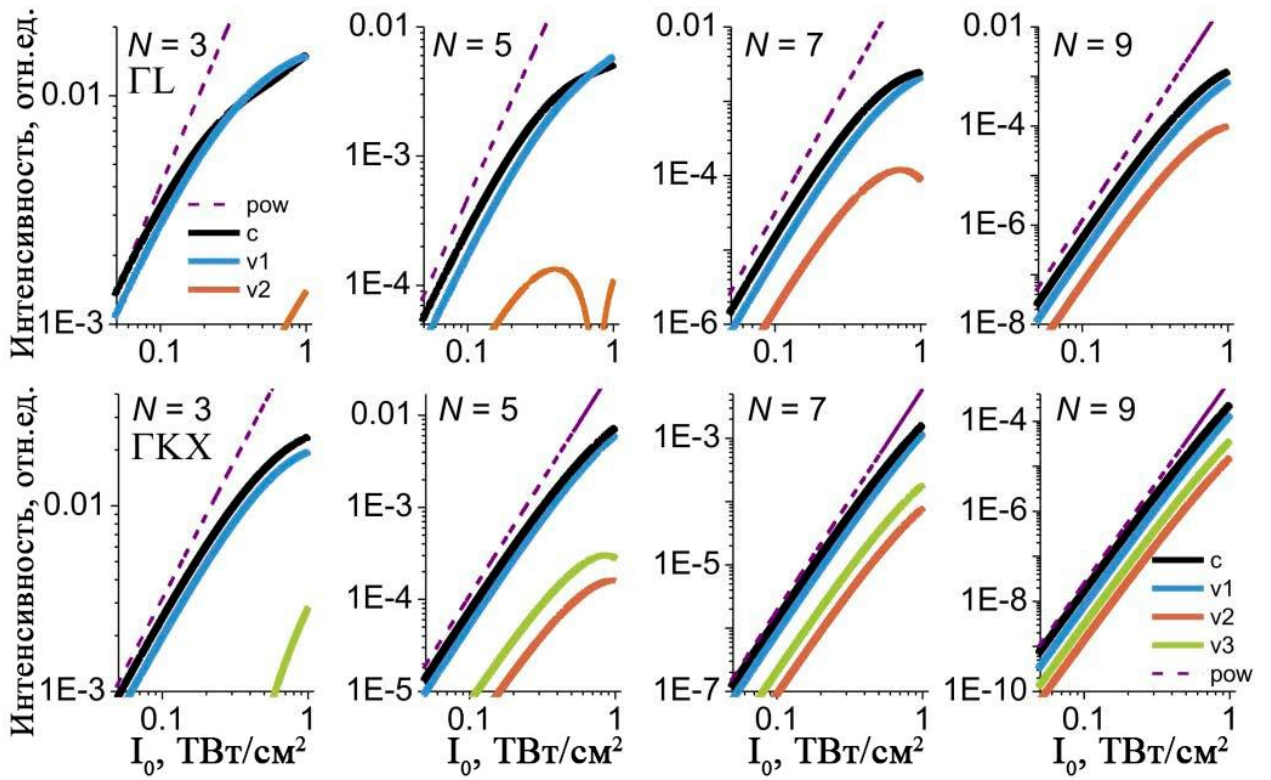


Рис. 49. Зависимости интенсивности нечетных ($N = 3, 5, 7, 9$) гармоник от интенсивности импульса накачки I_0 , генерируемых фототоками J электронов в зоне проводимости (черные кривые) и дырок в валентных зонах v_1 (голубые кривые), v_2 (оранжевые кривые), v_3 (зеленые кривые) для направлений ΓL (верхний ряд) и ΓKX (нижний ряд). Пунктирными прямыми показаны степенные зависимости I_0^N .

Анализ полученных зависимостей показывает, что нечётные гармоники вдоль направления ΓL в селениде цинка генерируются в основном фотоиндуцированными токами электронов в зоне проводимости и лёгкими дырками в валентной зоне v_1 , их вклады близки по интенсивности (чёрные и синие кривые на Рис. 49). Гармоники, генерируемые токами тяжёлых дырок в зоне v_2 оказываются на порядок слабее по амплитуде, так как нелинейность профиля зонной структуры $\varepsilon_i(\mathbf{k})$ вдоль направления ΓL в этих зонах значительно меньше (голубая кривая, соответствующая профилю зоны v_1 на Рис. 48b значительно круче на отрезке ΓL соответствующей зоне v_2 красной кривой). Для количественного сравнения нелинейности профилей зонной структуры можно сравнить отношения спектральных амплитуд $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ и $\varepsilon_3/\varepsilon_1$, которые для зоны v_1 оказываются в 1.6 и 31 раз больше соответствующих соотношений для зоны v_2 . Также можно отметить, что вдоль обоих направлений ΓL и ΓKX вклад в интенсивность гармоник фототоков электронов в зоне проводимости, оказывается немного больше вклада токов лёгких дырок (чёрные и синие кривые на Рис. 49).

Описанная модель генерации оптических гармоник высокого порядка в монокристаллическом образце селенида цинка теперь может быть применена к описанию поляризационных зависимостей мощностей отдельных гармоник от ориентации кристаллической решётки относительно направления вектора поляризации поля инфракрасного импульса накачки при разных пиковых интенсивностях (Рис. 50). В режиме низкой интенсивности импульса накачки I_0 в нелинейном отклике доминирует исключительно пертурбативная генерация третьей гармоники. Её интенсивность I_3 оказывается строго изотропной, не зависящей от ориентации кристалла, и выглядит на двумерной поляризационной карте как идеальная окружность (Рис. 50, N=3). При больших интенсивностях накачки, когда начинает проявляться отклонение зависимости мощности третьей гармоники от интенсивности накачки от степенной функции I_0^3 (Рис. 48с), а спектр высоких гармоник приобретает вид протяжённого плато (Рис. 48а), поляризационная зависимость третьей гармоники $I_3(\psi)$ перестаёт быть изотропной, и демонстрирует ярко выраженные максимумы в направлениях $\psi = \pi m/6$, где m – целое число, при которых вектор напряжённости поля E_d импульса накачки направлен вдоль кристаллических осей ГЛ и ГКХ зоны Бриллюэна селенида цинка.

Для гармоник более высокого порядка, особенно 9-ой ($N = 9$ на Рис. 50), поляризационные зависимости могут быть достоверно измерены лишь для уже достаточно высокой интенсивности импульса накачки I_0 . Поэтому увидеть чисто пертурбативный режим их генерации, соответствующий изотропной угловой зависимости $I_N(\psi)$, экспериментально не удаётся. Тем не менее, особая роль направлений ГЛ и ГКХ зонной структуры селенида цинка, как неортогонального базиса двумерной карты процесса ГГВП, отчётливо видна в зависимостях для всех N .

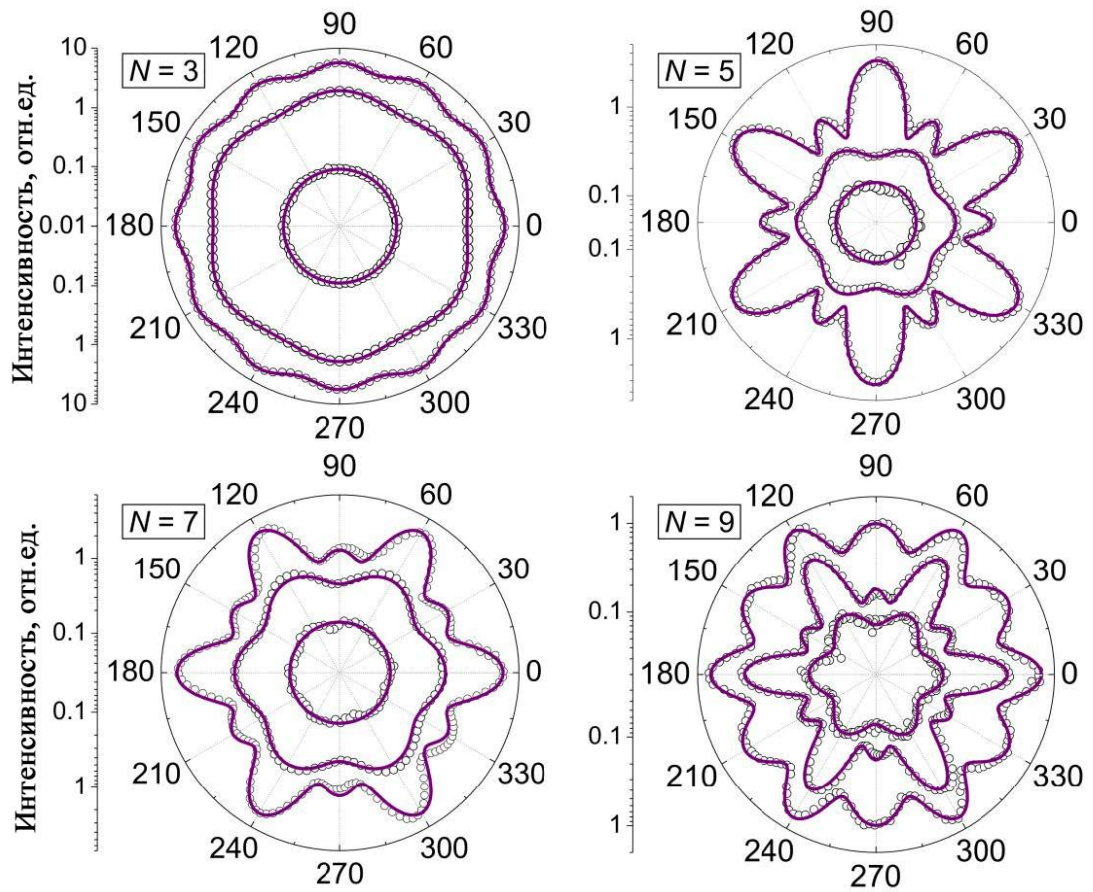


Рис. 50. Угловые зависимости мощности гармоник с номером $N = 3, 5, 7$ и 9 при варьировании мощности накачки: $I_0 \approx 0.04, 0.28, 0.35 \text{ ТВт/см}^2$ ($N=3$); $0.07, 0.29, 0.36 \text{ ТВт/см}^2$ ($N=5$); $0.09, 0.17, 0.3 \text{ ТВт/см}^2$ ($N=7$); $0.14, 0.32, 0.4 \text{ ТВт/см}^2$ ($N=9$). Эксперимент показан кружками, теоретический расчет на базе суммы фотоиндуцированных токов – сплошными линиями.

Для подтверждения особой роли направлений ГЛ и ГКХ зонной структуры селенида цинка в процессе генерации гармоник высокого порядка мы выполнили аппроксимацию поляризационной зависимости мощности гармоник $I_N(\psi)$, наблюдающейся в эксперименте, разложением в виде суммы трёх вкладов $\tilde{I}_N(\psi) \propto |\alpha_N J_{\text{ГЛ}} + \beta_N J_{\text{ГКХ}} + \gamma_N \mathbf{j}|^2$, где $J_{\text{ГЛ}}$ и $J_{\text{ГКХ}}$ – фотоиндуцированные токи вдоль направлений ГЛ и ГКХ зонной структуры селенида цинка, α_N, β_N и γ_N – коэффициенты разложения, $\mathbf{j}$ – изотропные микроскопические токи, не зависящие от ориентации кристалла относительно поляризации импульса накачки. Для вычисления токов $J_{\text{ГЛ}}$ и $J_{\text{ГКХ}}$ использовалось введённое выше выражение для J_i со следующими значениями параметров: $a_{\text{ГЛ}} = 6.18$ а.е., $a_{\text{ГКХ}} = 3.79$ а.е., спектральные амплитуды $\varepsilon_{\text{ГЛ},s}$ и $\varepsilon_{\text{ГКХ},s}$ получены разложением в ряд Фурье профиля зонной структуры $\varepsilon_i(\mathbf{k})$ определённого по данным работы [165]. Для пиковой интенсивности инфракрасного импульса накачки $I_0 \approx 0.4 \text{ ТВт/см}^2$ поле в

кристалле с показателем преломления $n \approx 2.44$ на длине волны 3.6 мкм достигает значения $E_0 \approx 1$ В/нм, что соответствует частотам Блоха $\omega_{B,\Gamma L} \approx 0.012$ а.е. и $\omega_{B,\Gamma KX} \approx 0.0074$ а.е. вдоль направлений ΓL и ΓKX , соответственно. Максимальное волновое число волнового пакета электронов под действием такого поля равно $k_{max} \approx 0.162$ а.е., что соответствует 20% и 30% полуширины зоны проводимости вдоль направлений ΓL и ΓKX , соответственно. Предложенное разложение токов в виде суммы трёх вкладов позволило аппроксимировать экспериментальные поляризационные карты высших оптических гармоник с высокой точностью (Рис. 50, Рис. 51) и определить особую роль направлений ΓL и ΓKX зонной структуры селенида цинка в процессе генерации высших оптических гармоник.

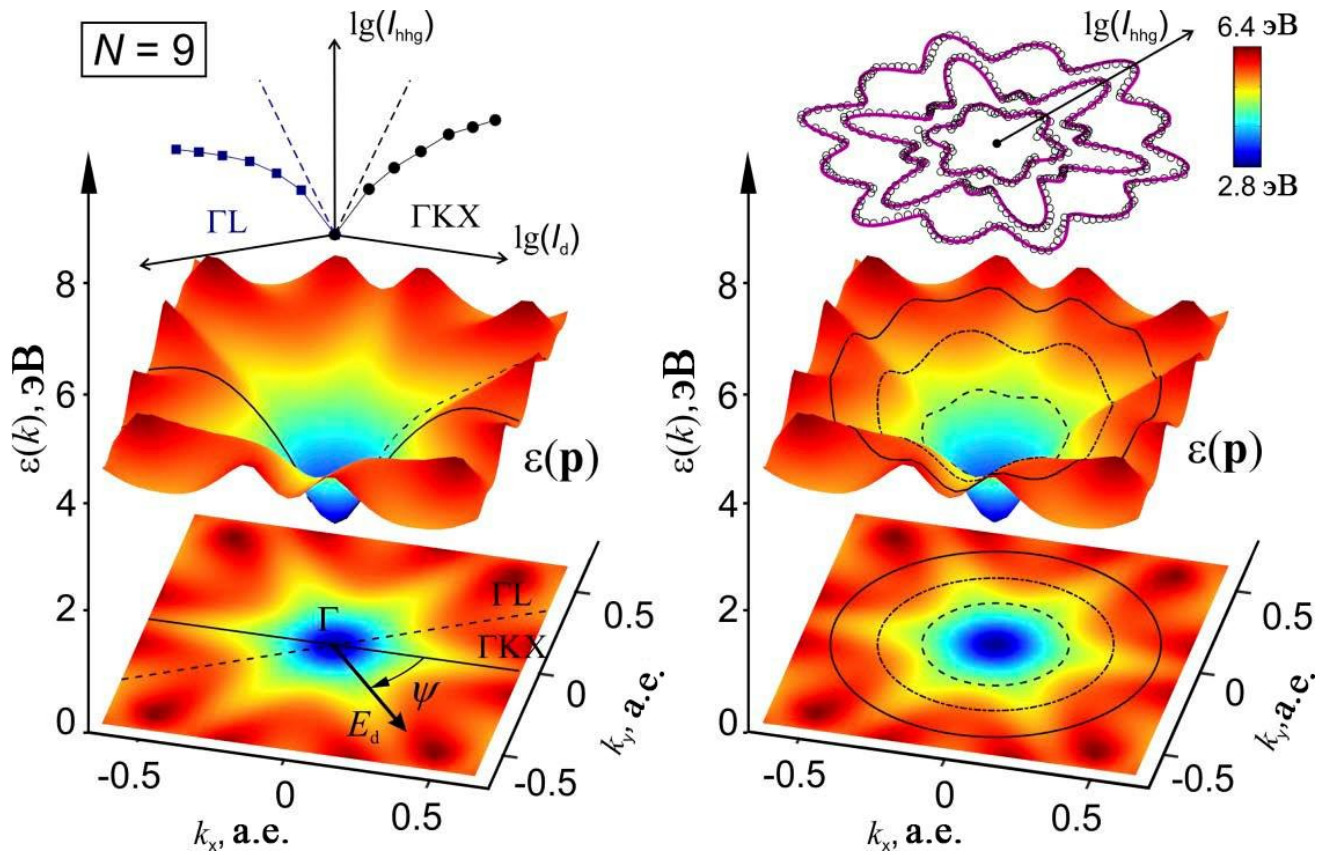


Рис. 51. Верхний ряд: интенсивность девятой гармоники как функция пиковой интенсивности импульса накачки, напряжённость поля которого ориентирована вдоль направлений ΓL и ΓKX (слева), и как функция угла ψ для нескольких интенсивностей накачки (справа). Средний ряд: двумерная карта ландшафта энергетической структуры электронов в зоне проводимости и его сечения плоскостями $\psi = \psi_0$ (слева) и сферами $p = p_0$ (справа). Нижний ряд: проекции поверхности $\varepsilon(\mathbf{p})$ на плоскость $k_x k_y$.

Описанные в данном параграфе результаты экспериментов и численного моделирования показали, что поляризационные карты гармоник высшего порядка

позволяют полностью охарактеризовать анизотропные свойства петагерцовых фотоиндуцированных токов, возникающих в монокристаллическом полупроводниковом материале под действием сверхкоротких импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона. Анализ энергетического ландшафта зонной структуры полупроводникового материала позволяет выявить особые направления, которые могут служить наиболее удобным базисом для описания анизотропных свойств гармоник высшего порядка в рамках модели внутризонной генерации гармоник фотоиндуцированными токами.

Подводя итоги, отметим, что развиваемый нами полностью оптический метод спектроскопии на основе нелинейно-оптического процесса генерации высших оптических гармоник является перспективным для исследования субфемтосекундной электронной динамики, индуцируемой сверхкороткими лазерными импульсами в твердом теле. Это необходимо знать, для анализа возможности переключения полупроводниковых материалов в проводящее состояние электромагнитным полем с длительностью меньшей оптического цикла. Структура энергетических уровней полупроводниковых материалов диктует необходимость использования импульсов накачки в различных диапазонах частот, поэтому что связано с возможностью исследования и управления межзонными и внутризонными переходами в полупроводнике. Поэтому использование перестраиваемых и предельно коротких импульсов, является принципиальным условием как для реализации этой методики спектроскопии, так и для развития сверхбыстрых оптических логических устройств и процессоров, способных функционировать на петагерцовых частотах. Другим условием, связанным с возможностью когерентного контроля электронных состояний, является использование оптической накачки с контролем фазы поля относительно огибающей (техника CEP) в различных диапазонах инфракрасного спектра. Поэтому перспективы развития наших исследований связаны развитием техники генерации фазостабильных относительно огибающей (CEP) импульсов, что является принципиальным для когерентного контроля и управления генерацией электронов в полупроводниковых кристаллах на субфемтосекундной временной шкале.

Заключение

В работе была продемонстрирована реализация полностью твердотельного источника микроджоулевых субпериодных импульсов среднего ИК диапазона за счет компрессии фемтосекундных импульсов в диапазоне 4 – 8 мкм в полупроводниковом кристалле арсенид галлия. В условиях нормальной (4 – 6.8 мкм) и аномальной (6.8 – 8 мкм) дисперсии групповых скоростей материала были получены импульсы менее двух периодов поля. При преобразовании импульсов накачки вблизи нуля дисперсии групповых скоростей в области 6.8 мкм происходит эффективная генерация суперконтинуума и формирование импульсов длительностью менее одного периода поля на центральной длине волны 6.8 мкм с пиковой мощностью около 50 МВт.

Продemonстрирована возможность генерации мультиоктавного суперконтинуума, простирающегося от 0.3 до 4.2 мкм, при нелинейном распространении 200-фс импульса накачки на центральной длине волны 3.2 мкм в полном антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе, заполненном аргоном при давлении в несколько атмосфер. Проведенный анализ показал, что основным фактором, позволяющим получить столь протяженный спектр и сформировать импульсы с длительностью менее половины цикла поля, является солитонная самокомпрессия. Методика прямого измерения светового поля X-SEA-F-SPIDER позволила измерить спектрально-временную структуру импульсов, формируемых в этом режиме импульсов на центральной длине волны 2.1 мкм. Их длительность составляет 6.6 фс по полувысоте, что соответствует одному колебанию поля, а пиковая мощность импульса достигает 1.5 ГВт.

Реализован полностью оптический метод зондирования зонной структуры полупроводника на основе генерации высших оптических гармоник от сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона. При зондировании селенида цинка импульсами с центральной длиной волны 5.0 – 6.7 мкм обнаружено, что при интенсивностях поля накачки выше 0.1 ТВт/см² реализуется механизм генерации четных и нечетных оптических гармоник, не описываемой стандартной теорией возмущений. Взаимодействие поля с носителями заряда в полупроводнике в таком режиме позволило различить внутри- и межзонные механизмы генерации гармоник, а также восстановить профиль зоны проводимости селенида цинка вдоль направления ГЛ, обладающего наибольшей нелинейностью. Продemonстрировано, что поляризационные карты

гармоник высшего порядка позволяют полностью охарактеризовать анизотропные свойства петагерцовых фотоиндуцированных токов, возникающих в монокристаллическом полупроводниковом материале (селенида цинка) под действием сверхкоротких импульсов накачки среднего инфракрасного диапазона. Анализ энергетического ландшафта зонной структуры полупроводникового материала позволяет выявить особые направления, которые могут служить наиболее удобным базисом для описания анизотропных свойств гармоник высшего порядка в рамках модели внутризонной генерации гармоник фотоиндуцированными токами.

Автор выражает глубокую благодарность своему научному руководителю доценту Андрею Борисовичу Федотову за неоценимую помощь на всех этапах подготовки работы от организации экспериментов до написания текста, а также за его бесконечное терпение и безусловную поддержку на протяжении всего времени научного руководства. Автор выражает глубокую благодарность профессору Алексею Михайловичу Желтикову за поддержку и внимание, обеспечившие высокий научный потенциал проводимых исследований. Автор выражает признательность сотрудникам и преподавателям кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ. Особую благодарность хочется выразить Александру Александровичу Ланину, бесценный опыт совместной работы с которым оказал большое влияние на полученные автором результаты, а также А.В. Митрофанову, А.А. Воронину, И.В. Савицкому, Д.А. Сидорову-Бирюкову, И.В. Федотову, М.С. Почечуеву, М.В. Рожко и М.А. Солотенкову за плодотворные обсуждения и помощь в работе.

Приложение: список используемых аббревиатур и сокращений

AGS – Нелинейно-оптический кристалл AgGaS_2

BBO – Нелинейно-оптический кристалл бета-борат бария

CCD – ПЗС матрица (линейная или двумерная)

FROG – Frequency Resolved Optical Gating – оптическое стробирование с разрешением по частоте, метод полной характеристики сверхкоротких лазерных импульсов

FWM – Four Wave Mixing (**ЧВВ** – четырёхволновое взаимодействие) – нелинейно-оптический процесс в котором одновременно участвуют четыре фотона (не обязательно с различной частотой)

PCF – Photonic Crystal Fiber – фотонно-кристаллическое волокно

SHG FROG – Second Harmonic Generation FROG – метод полной характеристики сверхкоротких лазерных импульсов в основе которого лежит нелинейный оптический процесс генерации второй гармоники

SPIDER – Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction – метод полной характеристики сверхкоротких лазерных импульсов в основе которого лежит техника прямого восстановления поля по картине спектральной интерференции

X-SEA-F-SPIDER – Одна из реализаций метода характеристики сверхкоротких лазерных импульсов SPIDER, в которой информация о фазе поля кодируется с помощью пространственной, а не частотной карты спектральной интерференции

XFROG – Cross-correlation FROG – метод полной характеристики сверхкоротких лазерных импульсов при котором исследуемое излучение взаимодействует в нелинейном процессе с некоторым известным опорным лазерным импульсом

ГГВП – Нелинейно-оптическое явление генерации оптических гармоник высокого порядка

ДГС – Дисперсия групповых скоростей

ИК – Инфракрасный (спектральный диапазон)

ОПУ – Оптический параметрический усилитель

ПИД-алгоритм – Пропорционально-интегрально-дифференциальный алгоритм

ФСМ – Фазовая самомодуляция

Литература

1. Ахманов С.А., Высоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. Москва: Наука, 1988. 312 p.
2. Желтиков А.М. Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики. Москва: ФИЗМАТЛИТ, 2006. 296 p.
3. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. Наука. Москва, 1981. 544 p.
4. Shen Y.R. The Principles of Nonlinear Optics. Wiley, 2003. 596 p.
5. Mourou G.A., Tajima T., Bulanov S.V. Optics in the relativistic regime // Rev. Mod. Phys. American Physical Society, 2006. Vol. 78, № 2. P. 309–371.
6. Kroger P. et al. Generation and multi-octave shaping of mid-infrared intense single-cycle pulses: 4 // Nat. Photonics. Nature Publishing Group, 2017. Vol. 11, № 4. P. 222–226.
7. Balciunas T. et al. A strong-field driver in the single-cycle regime based on self-compression in a kagome fibre // Nat. Commun. 2015. Vol. 6. P. 6117.
8. Zheltikov A. Multioctave supercontinua and subcycle lightwave electronics [Invited] // JOSA B. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 36, № 2. P. A168–A182.
9. Ghimire S. et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal: 2 // Nat. Phys. Nature Publishing Group, 2011. Vol. 7, № 2. P. 138–141.
10. Schubert O. et al. Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations // Nat. Photonics. 2014. Vol. 8, № 2. P. 119–123.
11. Hohenleutner M. et al. Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation: 7562 // Nature. Nature Publishing Group, 2015. Vol. 523, № 7562. P. 572–575.
12. Vampa G. et al. Linking high harmonics from gases and solids: 7557 // Nature. Nature Publishing Group, 2015. Vol. 522, № 7557. P. 462–464.
13. Luu T.T. et al. Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids: 7553 // Nature. Nature Publishing Group, 2015. Vol. 521, № 7553. P. 498–502.
14. Vampa G. et al. All-Optical Reconstruction of Crystal Band Structure // Phys. Rev. Lett. American Physical Society, 2015. Vol. 115, № 19. P. 193603.
15. Lanin A.A. et al. Mapping the electron band structure by intraband high-harmonic generation in solids // Optica. Optica Publishing Group, 2017. Vol. 4, № 5. P. 516–519.
16. Langer F. et al. Lightwave-driven quasiparticle collisions on a subcycle timescale: 7602 // Nature. Nature Publishing Group, 2016. Vol. 533, № 7602. P. 225–229.
17. You Y.S., Reis D.A., Ghimire S. Anisotropic high-harmonic generation in bulk crystals: 4 // Nat. Phys. Nature Publishing Group, 2017. Vol. 13, № 4. P. 345–349.
18. Langer F. et al. Lightwave valleytronics in a monolayer of tungsten diselenide: 7703 // Nature. Nature Publishing Group, 2018. Vol. 557, № 7703. P. 76–80.
19. Lanin A.A. et al. High-order harmonic analysis of anisotropic petahertz photocurrents in solids // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 44, № 8. P. 1888–1891.
20. Schiffrin A. et al. Optical-field-induced current in dielectrics: 7430 // Nature. Nature Publishing Group, 2013. Vol. 493, № 7430. P. 70–74.
21. Schultze M. et al. Controlling dielectrics with the electric field of light: 7430 // Nature. Nature Publishing Group, 2013. Vol. 493, № 7430. P. 75–78.
22. Kim K.T. et al. Petahertz optical oscilloscope: 12 // Nat. Photonics. Nature Publishing Group, 2013. Vol. 7, № 12. P. 958–962.

23. Krausz F., Stockman M.I. Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing: 3 // Nat. Photonics. Nature Publishing Group, 2014. Vol. 8, № 3. P. 205–213.
24. Garg M. et al. Multi-petahertz electronic metrology: 7625 // Nature. Nature Publishing Group, 2016. Vol. 538, № 7625. P. 359–363.
25. Mashiko H. et al. Petahertz optical drive with wide-bandgap semiconductor: 8 // Nat. Phys. Nature Publishing Group, 2016. Vol. 12, № 8. P. 741–745.
26. Popmintchev T. et al. Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers // Science. 2012. Vol. 336, № 6086. P. 1287–1291.
27. Woodbury D. et al. Laser wakefield acceleration with mid-IR laser pulses // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2018. Vol. 43, № 5. P. 1131–1134.
28. Mitrofanov A.V. et al. High-order harmonic generation from a solid-surface plasma by relativistic-intensity sub-100-fs mid-infrared pulses // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2018. Vol. 43, № 22. P. 5571–5574.
29. Fork R.L. et al. Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 1987. Vol. 12, № 7. P. 483–485.
30. Jung I.D. et al. Self-starting 6.5-fs pulses from a Ti:sapphire laser // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 1997. Vol. 22, № 13. P. 1009–1011.
31. Ell R. et al. Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti:sapphire laser // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2001. Vol. 26, № 6. P. 373–375.
32. Nisoli M., De Silvestri S., Svelto O. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique // Appl. Phys. Lett. American Institute of Physics, 1996. Vol. 68, № 20. P. 2793–2795.
33. Nisoli M. et al. Compression of high-energy laser pulses below 5 fs // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 1997. Vol. 22, № 8. P. 522–524.
34. Baltuška A. et al. Optical pulse compression to 5 fs at a 1-MHz repetition rate // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 1997. Vol. 22, № 2. P. 102–104.
35. Mücke O.D. et al. Self-compression of millijoule 1.5 μm pulses // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2009. Vol. 34, № 16. P. 2498–2500.
36. Hauri C.P. et al. Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation // Appl. Phys. B. 2004. Vol. 79, № 6. P. 673–677.
37. Hauri C.P. et al. Intense self-compressed, self-phase-stabilized few-cycle pulses at 2 μm from an optical filament // Opt. Lett. 2007. Vol. 32, № 7. P. 868–870.
38. Stibenz G., Zhavoronkov N., Steinmeyer G. Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2006. Vol. 31, № 2. P. 274–276.
39. Baltuška A., Fuji T., Kobayashi T. Visible pulse compression to 4 fs by optical parametric amplification and programmable dispersion control // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2002. Vol. 27, № 5. P. 306–308.
40. Brida D. et al. Few-optical-cycle pulses tunable from the visible to the mid-infrared by optical parametric amplifiers // J. Opt. IOP Publishing, 2009. Vol. 12, № 1. P. 013001.
41. Manzoni C. et al. Coherent pulse synthesis: towards sub-cycle optical waveforms // Laser Photonics Rev. 2015. Vol. 9, № 2. P. 129–171.
42. Benabid F. et al. Stimulated Raman Scattering in Hydrogen-Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber // Science. 2002. Vol. 298, № 5592. P. 399–402.
43. Couny F. et al. Generation and photonic guidance of multi-octave optical-frequency combs // Science. 2007. Vol. 318, № 5853. P. 1118–1121.

44. Pryamikov A.D. et al. Demonstration of a waveguide regime for a silica hollow - core microstructured optical fiber with a negative curvature of the core boundary in the spectral region $> 3.5 \mu\text{m}$ // Opt. Express. 2011. Vol. 19, № 2. P. 1441–1448.
45. Yu F., Knight J.C. Negative Curvature Hollow-Core Optical Fiber // IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 2016. Vol. 22, № 2. P. 146–155.
46. Hemmer M. et al. Self-compression to sub-3-cycle duration of mid-infrared optical pulses in dielectrics // Opt. Express. 2013. Vol. 21, № 23. P. 28095–28102.
47. Tian K. et al. Mid-Infrared Few-Cycle Pulse Generation and Amplification: 8 // Photonics. Multidisciplinary Digital Publishing Institute, 2021. Vol. 8, № 8. P. 290.
48. Li Z., Kato Y., Kawanaka J. Simulating an ultra-broadband concept for Exawatt-class lasers: 1 // Sci. Rep. Nature Publishing Group, 2021. Vol. 11, № 1. P. 151.
49. Herrmann D. et al. Investigation of two-beam-pumped noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification for the generation of few-cycle light pulses // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2010. Vol. 18, № 5. P. 4170–4183.
50. Cerullo G. et al. Sub-8-fs pulses from an ultrabroadband optical parametric amplifier in the visible // Opt. Lett. 1998. Vol. 23, № 16. P. 1283–1285.
51. Heiner Z., Petrov V., Mero M. Efficient, sub-4-cycle, $1\text{-}\mu\text{m}$ -pumped optical parametric amplifier at $10 \mu\text{m}$ based on BaGa_4S_7 // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2020. Vol. 45, № 20. P. 5692–5695.
52. Chen B.-H. et al. Octave-spanning single-cycle middle-infrared generation through optical parametric amplification in LiGaS_2 // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 27, № 15. P. 21306–21318.
53. Migal E.A., Potemkin F.V., Gordienko V.M. Highly efficient optical parametric amplifier tunable from near- to mid-IR for driving extreme nonlinear optics in solids // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2017. Vol. 42, № 24. P. 5218–5221.
54. Nam S.-H. et al. Octave-spanning mid-infrared femtosecond OPA in a ZnGeP_2 pumped by a $2.4 \mu\text{m}$ Cr:ZnSe chirped-pulse amplifier // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2020. Vol. 28, № 22. P. 32403–32414.
55. Zou X. et al. $300 \mu\text{J}$, 3 W , few-cycle, $3 \mu\text{m}$ OPCPA based on periodically poled stoichiometric lithium tantalate crystals // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 44, № 11. P. 2791–2794.
56. Zou X. et al. Flat-Top Pumped Multi-Millijoule Mid-Infrared Parametric Chirped-Pulse Amplifier at 10 kHz Repetition Rate // Laser Photonics Rev. 2021. Vol. 15, № 6. P. 2000292.
57. Rigaud P. et al. Supercontinuum-seeded few-cycle mid-infrared OPCPA system // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2016. Vol. 24, № 23. P. 26494–26502.
58. Mero M. et al. 43 W , $1.55 \mu\text{m}$ and 12.5 W , $3.1 \mu\text{m}$ dual-beam, sub-10 cycle, 100 kHz optical parametric chirped pulse amplifier // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2018. Vol. 43, № 21. P. 5246–5249.
59. Thiré N. et al. Highly stable, 15 W , few-cycle, 65 mrad CEP-noise mid-IR OPCPA for statistical physics // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2018. Vol. 26, № 21. P. 26907–26915.
60. Elu Etxano U. et al. High average power and single-cycle pulses from a mid-IR optical parametric chirped pulse amplifier // Optica. 2017. Vol. 4. P. 1024.
61. Mayer B.W. et al. Sub-four-cycle laser pulses directly from a high-repetition-rate optical parametric chirped-pulse amplifier at $3.4 \mu\text{m}$ // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2013. Vol. 38, № 21. P. 4265–4268.

62. Zhao K. et al. Generation of 120 GW mid-infrared pulses from a widely tunable noncollinear optical parametric amplifier // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2013. Vol. 38, № 13. P. 2159–2161.
63. Andriukaitis G. et al. 90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier // Opt. Lett. 2011. Vol. 36, № 15. P. 2755–2757.
64. Wang P. et al. 2.6 mJ/100 Hz CEP-stable near-single-cycle 4 μm laser based on OPCPA and hollow-core fiber compression // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2018. Vol. 43, № 9. P. 2197–2200.
65. Grafenstein L. von et al. Multi-millijoule, few-cycle 5 μm OPCPA at 1 kHz repetition rate // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2020. Vol. 45, № 21. P. 5998–6001.
66. Elu U. et al. Table-top high-energy 7 μm OPCPA and 260 mJ Ho:YLF pump laser // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 44, № 13. P. 3194–3197.
67. Qu S. et al. 9 μm few-cycle optical parametric chirped-pulse amplifier based on LiGaS₂ // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 44, № 10. P. 2422–2425.
68. Mitrofanov A.V. et al. Subterawatt femtosecond pulses in the mid-infrared range: new spatiotemporal dynamics of high-power electromagnetic fields // Phys.-Uspekhi. 2015. Vol. 58, № 1. P. 89.
69. Mitrofanov A.V. et al. Mid-infrared laser filaments in the atmosphere // Sci. Rep. 2015. Vol. 5. P. 8368.
70. Pupeza I. et al. High-power sub-two-cycle mid-infrared pulses at 100 MHz repetition rate // Nat. Photonics. 2015. Vol. 9, № 11. P. 721–724.
71. Timmers H. et al. Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs // Optica. Optica Publishing Group, 2018. Vol. 5, № 6. P. 727–732.
72. Gaida C. et al. Watt-scale super-octave mid-infrared intrapulse difference frequency generation: 1 // Light Sci. Appl. Nature Publishing Group, 2018. Vol. 7, № 1. P. 94.
73. Zhang J. et al. Intra-pulse difference-frequency generation of mid-infrared (2.7–20 μm) by random quasi-phase-matching // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 44, № 12. P. 2986–2989.
74. Zhang J. et al. Multi-mW, few-cycle mid-infrared continuum spanning from 500 to 2250 cm^{-1} : 2 // Light Sci. Appl. Nature Publishing Group, 2018. Vol. 7, № 2. P. 17180–17180.
75. Vasilyev S. et al. Super-octave longwave mid-infrared coherent transients produced by optical rectification of few-cycle 2.5- μm pulses // Optica. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 6, № 1. P. 111–114.
76. Liu K. et al. High-energy mid-infrared intrapulse difference-frequency generation with 5.3% conversion efficiency driven at 3 μm // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2019. Vol. 27, № 26. P. 37706–37713.
77. Junginger F. et al. Single-cycle multiterahertz transients with peak fields above 10 MV/cm // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2010. Vol. 35, № 15. P. 2645–2647.
78. Nomura Y. et al. Phase-stable sub-cycle mid-infrared conical emission from filamentation in gases // Opt. Express. 2012. Vol. 20, № 22. P. 24741–24747.
79. Fuji T., Suzuki T. Generation of sub-two-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing through filamentation in air // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2007. Vol. 32, № 22. P. 3330–3332.
80. Théberge F. et al. Generation of tunable and broadband far-infrared laser pulses during two-color filamentation // Phys. Rev. A. American Physical Society, 2010. Vol. 81, № 3. P. 033821.
81. Petersen P.B., Tokmakoff A. Source for ultrafast continuum infrared and terahertz radiation // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2010. Vol. 35, № 12. P. 1962–1964.

82. Thomson M.D., Blank V., Roskos H.G. Terahertz white-light pulses from an air plasma photo-induced by incommensurate two-color optical fields // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2010. Vol. 18, № 22. P. 23173–23182.
83. Lassonde P. et al. Infrared generation by filamentation in air of a spectrally shaped laser beam // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2011. Vol. 19, № 15. P. 14093–14098.
84. Lanin A.A. et al. Frequency-tunable sub-two-cycle 60-MW-peak-power free-space waveforms in the mid-infrared // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2014. Vol. 39, № 22. P. 6430–6433.
85. Lanin A.A. et al. Multioctave, 3-18 μm sub-two-cycle supercontinua from self-compressing, self-focusing soliton transients in a solid // Opt. Lett. 2015. Vol. 40, № 6. P. 974–977.
86. Stepanov E.A. et al. Solid-State Source of Subcycle Pulses in the Midinfrared // Phys. Rev. Lett. American Physical Society, 2016. Vol. 117, № 4. P. 043901.
87. В. П. Кандидов et al. Световые пули в прозрачных диэлектриках // Квантовая электроника. 2022. Vol. 52, № 3. P. 233–246.
88. Chekalin S.V. et al. Light bullets from a femtosecond filament // J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. IOP Publishing, 2015. Vol. 48, № 9. P. 094008.
89. Durand M. et al. Self-Guided Propagation of Ultrashort Laser Pulses in the Anomalous Dispersion Region of Transparent Solids: A New Regime of Filamentation // Phys. Rev. Lett. 2013. Vol. 110, № 11. P. 115003.
90. Hamm P., Zanni M. Concepts and Methods of 2D Infrared Spectroscopy. Cambridge University Press, 2011. 297 p.
91. Wei C. et al. Negative curvature fibers // Adv. Opt. Photonics. Optica Publishing Group, 2017. Vol. 9, № 3. P. 504–561.
92. Stepanov E.A. et al. Multioctave supercontinua from shock-coupled soliton self-compression // Phys. Rev. A. American Physical Society, 2019. Vol. 99, № 3. P. 033855.
93. Bethe H. Theorie der Beugung von Elektronen an Kristallen // Ann. Phys. 1928. Vol. 392, № 17. P. 55–129.
94. Bloch F. Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern // Z. Für Phys. 1929. Vol. 52, № 7. P. 555–600.
95. Kronig R.D.L., Penney W.G., Fowler R.H. Quantum mechanics of electrons in crystal lattices // Proc. R. Soc. Lond. Ser. Contain. Pap. Math. Phys. Character. Royal Society, 1931. Vol. 130, № 814. P. 499–513.
96. Wannier G.H. The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals // Phys. Rev. American Physical Society, 1937. Vol. 52, № 3. P. 191–197.
97. Zener C., Fowler R.H. A theory of the electrical breakdown of solid dielectrics // Proc. R. Soc. Lond. Ser. Contain. Pap. Math. Phys. Character. Royal Society, 1934. Vol. 145, № 855. P. 523–529.
98. Houston W.V. Acceleration of Electrons in a Crystal Lattice // Phys. Rev. American Physical Society, 1940. Vol. 57, № 3. P. 184–186.
99. Kane E.O. Zener tunneling in semiconductors // J. Phys. Chem. Solids. 1960. Vol. 12, № 2. P. 181–188.
100. Келдыш Л.В. Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // ЖЭТФ. 1965. Vol. 47. P. 1945.
101. Haug H., Koch S.W. Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors. WORLD SCIENTIFIC, 2004. 468 p.
102. Meier T., Thomas P., Koch S.W. Coherent Semiconductor Optics. New York: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007.

103. Klingshirn C.F. Semiconductor optics / C.F. Klingshirn. 2nd ed. Berlin ; New York, Berlin, Heidelberg: Springer, Springer Berlin Heidelberg : Imprint: Springer, 2005. xxv+797 p.
104. Feise M.W., Citrin D.S. Semiclassical theory of terahertz multiple-harmonic generation in semiconductor superlattices // Appl. Phys. Lett. American Institute of Physics, 1999. Vol. 75, № 22. P. 3536–3538.
105. Golde D. et al. Microscopic theory of the extremely nonlinear terahertz response of semiconductors // Phys. Status Solidi B. 2011. Vol. 248, № 4. P. 863–866.
106. Golde D., Meier T., Koch S.W. High harmonics generated in semiconductor nanostructures by the coupled dynamics of optical inter- and intraband excitations // Phys. Rev. B. American Physical Society, 2008. Vol. 77, № 7. P. 075330.
107. Mücke O.D. Isolated high-order harmonics pulse from two-color-driven Bloch oscillations in bulk semiconductors // Phys. Rev. B. American Physical Society, 2011. Vol. 84, № 8. P. 081202.
108. Kemper A.F. et al. Theoretical description of high-order harmonic generation in solids // New J. Phys. IOP Publishing, 2013. Vol. 15, № 2. P. 023003.
109. Hawkins P.G., Ivanov M.Yu. Role of subcycle transition dynamics in high-order-harmonic generation in periodic structures // Phys. Rev. A. American Physical Society, 2013. Vol. 87, № 6. P. 063842.
110. Hawkins P.G., Ivanov M.Yu., Yakovlev V.S. Effect of multiple conduction bands on high-harmonic emission from dielectrics // Phys. Rev. A. American Physical Society, 2015. Vol. 91, № 1. P. 013405.
111. Krausz F., Stockman M.I. Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing // Nat. Photonics. 2014. Vol. 8, № 3. P. 205–213.
112. Basov D.N., Averitt R.D., Hsieh D. Towards properties on demand in quantum materials: 11 // Nat. Mater. Nature Publishing Group, 2017. Vol. 16, № 11. P. 1077–1088.
113. Mashiko H. et al. Petahertz optical drive with wide-bandgap semiconductor // Nat. Phys. Nature Publishing Group, 2016. Vol. 12, № 8. P. 741–745.
114. Schiffrin A. et al. Optical-field-induced current in dielectrics // Nature. 2013. Vol. 493, № 7430. P. 70.
115. Sivilis M. et al. Tailored semiconductors for high-harmonic optoelectronics // Science. American Association for the Advancement of Science, 2017. Vol. 357, № 6348. P. 303–306.
116. Krausz F., Ivanov M. Attosecond physics // Rev. Mod. Phys. 2009. Vol. 81, № 1. P. 163–234.
117. Ghimire S. et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal // Nat. Phys. 2011. Vol. 7, № 2. P. 138–141.
118. Huttner U., Kira M., Koch S.W. Ultrahigh Off-Resonant Field Effects in Semiconductors // Laser Photonics Rev. 2017. Vol. 11, № 4. P. 1700049.
119. Ghimire S. et al. Generation and propagation of high-order harmonics in crystals // Phys. Rev. A. American Physical Society, 2012. Vol. 85, № 4. P. 043836.
120. Higuchi T., Stockman M.I., Hommelhoff P. Strong-Field Perspective on High-Harmonic Radiation from Bulk Solids // Phys. Rev. Lett. American Physical Society, 2014. Vol. 113, № 21. P. 213901.
121. Wu M. et al. High-harmonic generation from Bloch electrons in solids // Phys. Rev. A. American Physical Society, 2015. Vol. 91, № 4. P. 043839.
122. Ghimire S. et al. Strong-field and attosecond physics in solids // J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. IOP Publishing, 2014. Vol. 47, № 20. P. 204030.

123. Vampa G. et al. Semiclassical analysis of high harmonic generation in bulk crystals // *Phys. Rev. B. American Physical Society*, 2015. Vol. 91, № 6. P. 064302.
124. Oudar J.L. et al. Subpicosecond Spectral Hole Burning Due to Nonthermalized Photoexcited Carriers in GaAs // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1985. Vol. 55, № 19. P. 2074–2077.
125. Becker P.C. et al. Femtosecond Photon Echoes from Band-to-Band Transitions in GaAs // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1988. Vol. 61, № 14. P. 1647–1649.
126. Prabhu S.S. et al. Carrier dynamics of low-temperature-grown GaAs observed via THz spectroscopy // *Appl. Phys. Lett. American Institute of Physics*, 1997. Vol. 70, № 18. P. 2419–2421.
127. Vampa G. et al. Theoretical Analysis of High-Harmonic Generation in Solids // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 2014. Vol. 113, № 7. P. 073901.
128. Cox J.D., Marini A., de Abajo F.J.G. Plasmon-assisted high-harmonic generation in graphene: 1 // *Nat. Commun. Nature Publishing Group*, 2017. Vol. 8, № 1. P. 14380.
129. Liu H. et al. High-harmonic generation from an atomically thin semiconductor: 3 // *Nat. Phys. Nature Publishing Group*, 2017. Vol. 13, № 3. P. 262–265.
130. Pati A.P., Wahyutama I.S., Pfeiffer A.N. Subcycle-resolved probe retardation in strong-field pumped dielectrics: 1 // *Nat. Commun. Nature Publishing Group*, 2015. Vol. 6, № 1. P. 7746.
131. Langer F. et al. Symmetry-controlled temporal structure of high-harmonic carrier fields from a bulk crystal: 4 // *Nat. Photonics. Nature Publishing Group*, 2017. Vol. 11, № 4. P. 227–231.
132. Yabana K. et al. Time-dependent density functional theory for strong electromagnetic fields in crystalline solids // *Phys. Rev. B. American Physical Society*, 2012. Vol. 85, № 4. P. 045134.
133. Time-Dependent Density Functional Theory. 2006th edition / ed. Marques M.A.L. et al. Berlin: Springer, 2006. 589 p.
134. Feldmann J. et al. Optical investigation of Bloch oscillations in a semiconductor superlattice // *Phys. Rev. B. American Physical Society*, 1992. Vol. 46, № 11. P. 7252–7255.
135. Waschke C. et al. Coherent submillimeter-wave emission from Bloch oscillations in a semiconductor superlattice // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1993. Vol. 70, № 21. P. 3319–3322.
136. Leitenstorfer A. et al. Femtosecond Charge Transport in Polar Semiconductors // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1999. Vol. 82, № 25. P. 5140–5143.
137. Степанов Е.А. et al. Широкополосная двумерная спектрохронография с использованием сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона // *Квантовая электроника*. 2022. Vol. 52, № 3. P. 227–232.
138. Anna J.M., Kubarych K.J. Watching solvent friction impede ultrafast barrier crossings: A direct test of Kramers theory // *J. Chem. Phys. American Institute of Physics*, 2010. Vol. 133, № 17. P. 174506.
139. Trebino R. Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses. Springer Science & Business Media, 2012. 428 p.
140. Chalus O. et al. Six-cycle mid-infrared source with 3.8 μ J at 100 kHz. // *Opt. Lett.* 2010. Vol. 35, № 19. P. 3204–3206.
141. Kaindl R. et al. Generation, shaping, and characterization of intense femtosecond pulses tunable from 3 to 20 μ m // *J. Opt. Soc. Am. B*. 2000. Vol. 17. P. 2086–2094.
142. Lanin A.A. et al. Time-domain spectroscopy in the mid-infrared // *Sci. Rep.* 2014. Vol. 4. P. 6670.

143. Trebino R. et al. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating // *Rev. Sci. Instrum.* 1997. Vol. 68, № 9. P. 3277–3295.
144. Iaconis C., Walmsley I.A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 1998. Vol. 23, № 10. P. 792–794.
145. Kosik E.M. et al. Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2005. Vol. 30, № 3. P. 326–328.
146. Fan G. et al. X-SEA-F-SPIDER characterization of over octave spanning pulses in the infrared range // *Opt. Express.* Optical Society of America, 2016. Vol. 24, № 12. P. 12713–12729.
147. Shumakova V. et al. Multi-millijoule few-cycle mid-infrared pulses through nonlinear self-compression in bulk // *Nat. Commun.* 2016. Vol. 7, № 1. P. 1–6.
148. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // *Phys. Rep.* 2007. Vol. 441, № 2. P. 47–189.
149. Bergé L. et al. Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media // *Rep. Prog. Phys.* 2007. Vol. 70, № 10. P. 1633–1713.
150. Agrawal G. *Nonlinear Fiber Optics.* Academic Press, 2007. 560 p.
151. Zeisberger M., Schmidt M.A. Analytic model for the complex effective index of the leaky modes of tube-type anti-resonant hollow core fibers // *Sci. Rep.* 2017. Vol. 7, № 1. P. 1–13.
152. Peck E.R., Fisher D.J. Dispersion of Argon // *J Opt Soc Am. OSA*, 1964. Vol. 54, № 11. P. 1362–1364.
153. Tani F. et al. Effect of anti-crossings with cladding resonances on ultrafast nonlinear dynamics in gas-filled photonic crystal fibers // *Photonics Res.* 2018. Vol. 6, № 2. P. 84–88.
154. Brée C., Demircan A., Steinmeyer G. Saturation of the All-Optical Kerr Effect // *Phys. Rev. Lett.* 2011. Vol. 106, № 18. P. 183902.
155. Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. Quantum and Semiclassical Physics behind Ultrafast Optical Nonlinearity in the Midinfrared: The Role of Ionization Dynamics within the Field Half Cycle // *Phys. Rev. Lett.* 2014. Vol. 113, № 4. P. 043901.
156. Желтиков А.М. Теория фотоионизации Келдыша: через барьеры // *Успехи Физических Наук.* 2017. Vol. 187, № 11. P. 1169–1204.
157. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Subcycle solitonic breathers // *Phys. Rev. A.* 2014. Vol. 90, № 4. P. 043807.
158. Herrmann J. et al. Experimental Evidence for Supercontinuum Generation by Fission of Higher-Order Solitons in Photonic Fibers // *Phys. Rev. Lett.* 2002. Vol. 88, № 17. P. 173901.
159. Fedotov A.B., Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. Ionization-induced blueshift of high-peak-power guided-wave ultrashort laser pulses in hollow-core photonic-crystal fibers // *Phys. Rev. A.* 2007. Vol. 76, № 5. P. 053811.
160. Hölzer P. et al. Femtosecond Nonlinear Fiber Optics in the Ionization Regime // *Phys. Rev. Lett.* 2011. Vol. 107, № 20. P. 203901.
161. Chang W. et al. Influence of ionization on ultrafast gas-based nonlinear fiber optics // *Opt. Express.* 2011. Vol. 19, № 21. P. 21018–21027.
162. Habib M.S. et al. Soliton-plasma nonlinear dynamics in mid-IR gas-filled hollow-core fibers // *Opt. Lett.* 2017. Vol. 42, № 11. P. 2232–2235.
163. Zheltikov A. Phase-matched four-wave mixing of guided and leaky modes in an optical fiber // *Opt. Lett.* 2008. Vol. 33, № 8. P. 839–841.
164. Uebel P. et al. Broadband robustly single-mode hollow-core PCF by resonant filtering of higher-order modes // *Opt. Lett.* 2016. Vol. 41, № 9. P. 1961–1964.

165. Ghahramani E., Moss D.J., Sipe J.E. Full-band-structure calculation of first-, second-, and third-harmonic optical response coefficients of ZnSe, ZnTe, and CdTe // *Phys. Rev. B. American Physical Society*, 1991. Vol. 43, № 12. P. 9700–9710.
166. Chin A.H., Calderón O.G., Kono J. Extreme Midinfrared Nonlinear Optics in Semiconductors // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 2001. Vol. 86, № 15. P. 3292–3295.
167. Krauss T.D., Wise F.W. Femtosecond measurement of nonlinear absorption and refraction in CdS, ZnSe, and ZnS // *Appl. Phys. Lett. American Institute of Physics*, 1994. Vol. 65, № 14. P. 1739–1741.
168. Xia P. et al. Nonlinear propagation effects in high harmonic generation in reflection and transmission from gallium arsenide // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2018. Vol. 26, № 22. P. 29393–29400.