

УДК 530.182.551.510.42+535.621.33

## Филаментация фемтосекундных импульсов Ti:Sapphire-лазера на первой и второй гармониках в жидких средах

Д.В. Апексимов<sup>1</sup>, О.А. Букин<sup>2</sup>, Е.Е. Быкова<sup>1</sup>, С.С. Голик<sup>3</sup>,  
А.А. Землянов<sup>1</sup>, А.А. Ильин<sup>2</sup>, А.М. Кабанов<sup>1</sup>, Г.Г. Матвиенко<sup>1</sup>,  
В.К. Ошлаков<sup>1</sup>, А.В. Петров<sup>1</sup>, Е.Б. Соколова<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН  
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

<sup>2</sup>Институт автоматики и процессов управления ДВО РАН  
690041, г. Владивосток, ул. Радио, 5

<sup>3</sup>Дальневосточный федеральный университет  
690950, г. Владивосток, ул. Суханова, 8

Поступила в редакцию 13.03.2013 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований трансформации спектральных и пространственных характеристик фемтосекундных импульсов Ti:Sapphire-лазера с длинами волн излучения 800 и 400 нм при филаментации в жидких средах. Показано, что уширение спектра лазерного импульса на обеих гармониках за счет фазовой самомодуляции в среде с кубичной нелинейностью зависит от мощности импульса и диаметра пучка. При филаментации излучения на второй гармонике лазера в дистиллированной воде наблюдается свечение с максимумом 464 нм, что соответствует комбинационному рассеянию воды, в морской воде наблюдается флуоресценция растворенных органических веществ.

*Ключевые слова:* лазерное излучение, филаментация, фемтосекундный лазерный импульс, жидкость, спектр; laser radiation, filamentation, femtosecond pulse, liquid media, spectrum.

В задачах нелинейной фемтосекундной оптики атмосферы и океана наиболее интересным и перспективным для практического использования среди нелинейных эффектов, сопровождающих распространение мощных ультракоротких лазерных импульсов, является филаментация лазерных пучков, приводящая к трансформации спектральных и пространственных характеристик излучения [1, 2].

В статье представлены результаты экспериментального исследования трансформации спектров и пространственной структуры лазерных пучков при их филаментации в дистиллированной и морской воде, глицерине. Эксперименты проводились на стендах ДВФУ и ИАПУ ДВО РАН совместно с ИОА СО РАН [3]. Использовалось излучение Ti:Sapphire-лазера гигаваттной мощности на основной (800 нм) и второй (400 нм) гармониках. Принципиальная схема эксперимента представлена на рис. 1.

Лазерный пучок диаметром 7 мм фокусировался линзой с фокусным расстоянием 50,2 мм в центр кюветы. Использовались импульсы с длительностями на полувысоте 45 фс (настроенный на оптимальную работу компрессор 2) и 700 фс (перенастроенный компрессор лазерной системы). Также в эксперименте использовались коллимированные пучки диаметром 9 мм, проходящие в кювету через диафрагму 19 с отверстиями диаметром 1, 2 и 2,5 мм. Регистрировались спектры излучения при филаментации пучка в кювете 11 в направлении вперед в интегрирующую сферу 18 и под углом 90° к оси лазерного пучка. Проводилась фото- и видеорегистрация филаментации 14, 15.

При филаментации импульса с длиной волны  $\lambda = 800$  нм в дистиллированной воде наблюдаются уширение спектра (рис. 2, а), связанное с фазовой самомодуляцией в среде с кубичной нелинейностью керровского типа, и смещение его центра тяжести в коротковолновую область, обусловленное плазменной нелинейностью.

Уширение и смещение, в сравнении с исходным импульсом (кривая 1), тем значительнее, чем больше мощность исходного импульса (рис. 2, а, кривые 2–4). Так, при энергии импульса 1 мДж (рис. 2, кривая 2), что для данного импульса составляет  $\sim 15$  ГВт, т.е. параметр  $\eta = P/P_{кр} \sim 2,5 \cdot 10^3$  (для воды при воздействии  $\lambda = 800$  нм, нелинейная добавка показателя

\* Дмитрий Владимирович Апексимов (apeximov@iao.ru); Олег Алексеевич Букин (o\_bukin@mail.ru); Елена Евгеньевна Быкова (bee@iao.ru); Сергей Сергеевич Голик (golik\_s@mail.ru); Александр Анатольевич Землянов (zaa@iao.ru); Алексей Анатольевич Ильин (kunashir@gmail.com); Андрей Михайлович Кабанов (kam@iao.ru); Геннадий Григорьевич Матвиенко (mgg@iao.ru); Виктор Константинович Ошлаков (ovk@iao.ru); Алексей Вадимович Петров; Екатерина Борисовна Соколова (mastapes@mail.ru).

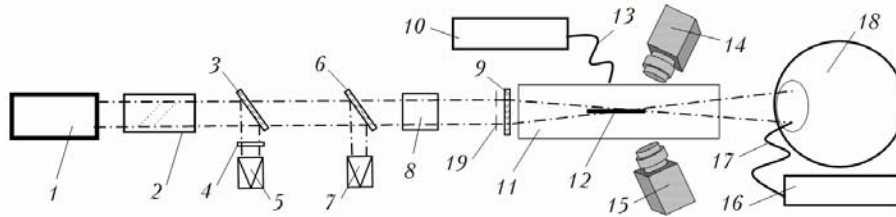


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 – лазерная система ( $\lambda_1 = 800$  нм,  $E_1 < 6$  мДж,  $\lambda_2 = 400$  нм,  $E_2 < 2$  мДж, частота следования импульсов 1 кГц,  $t_u = 45$  фс,  $d = 7, 9$  мм; 2 – компрессор; 3, 6 – поворотные пластины; 4 – светофильтр; 5 – автокоррелятор PSCOUT PL-SP-LF (Spectra Physics); 7 – измеритель энергии 407A (Spectra Physics); 8 – преобразующий кристалл бетабората бария ВВО ( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), 300 мкм; 9 – фокусирующая линза  $f = 50,2$  мм (Plano-Convex Lens, BK7); 10 – спектрометр Maya 2000 Pro (Ocean Optics); 11 – кювета с жидкостью  $L = 10$  см, толщина входного окна 150 мкм; 12 – область филаментации; 13, 17 – световоды; 14 – видеокамера JVC GZ-MG255; 15 – фотокамера SONY DSC-F828; 16 – спектрометр HR4000 (Ocean Optics); 18 – интегрирующая сфера; 19 – диафрагма с диаметрами отверстия 1, 2 и 2,5 мм

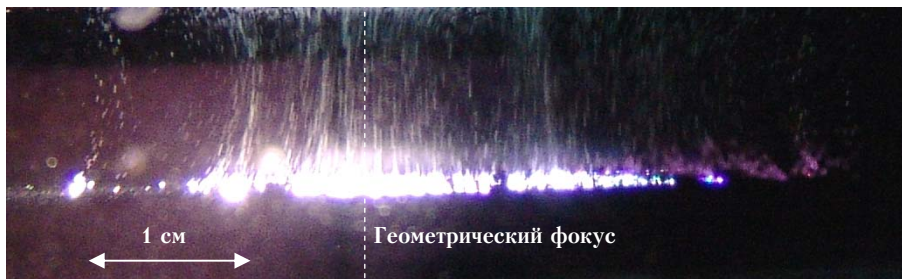
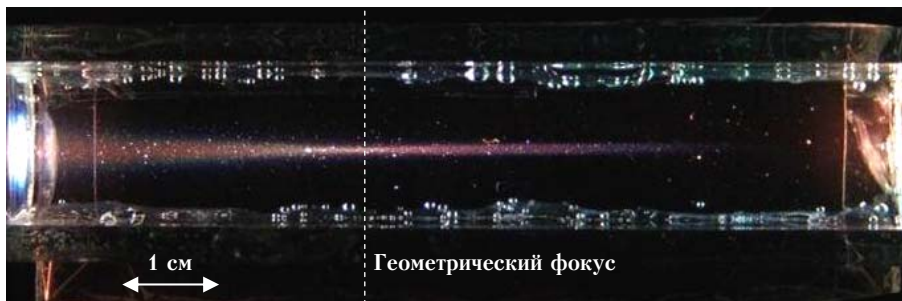
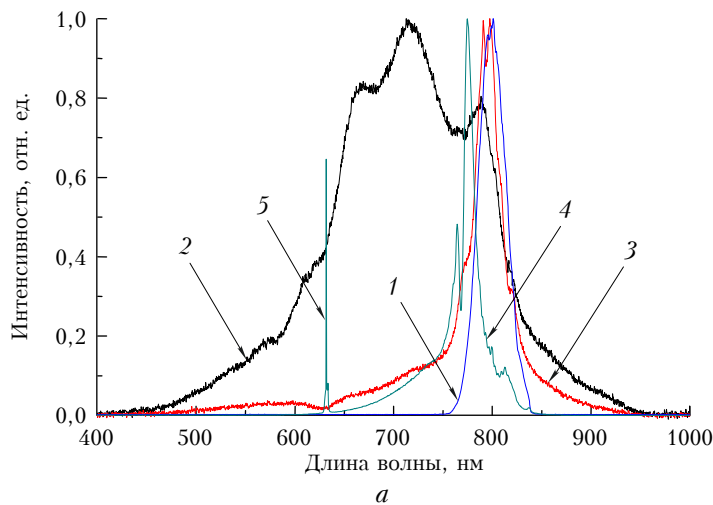


Рис. 2. Спектры основной гармоники фемтосекундного лазерного импульса ( $\lambda = 800$  нм) после филаментации: 1 – спектр исходного импульса (отражение от рассеивающей керамической поверхности); 2 – филаментация импульса  $t_u = 35$  фс,  $E = 1$  мДж в дистиллированной воде; 3 – филаментация импульса  $t_u = 700$  фс,  $E = 1$  мДж в дистиллированной воде; 4 – филаментация импульса  $t_u = 45$  фс,  $E = 1$  мДж в воздухе (2, 3, 4 измерены спектрометром HR4000 с использованием интегрирующей сферы в направлении вперед); 5 – спектр непрерывного HeNe-лазера (для сравнения). Здесь и далее нормировка на максимум интенсивности (а). Филаментация импульсов  $t_u = 35$  фс,  $E = 1$  мДж (б) (вид сверху), и  $t_u = 700$  фс,  $E = 1$  мДж (б) (вид сбоку), излучение справа налево

преломления  $n_2 = 2,0 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ , критическая мощность самофокусировки  $P_{\text{кр}} = 6,5 \text{ МВт}$  [4, 5]), спектр перекрывает практически весь видимый диапазон и часть ближнего ИК. Для сравнения на рис. 2, *a* (кривая 4) представлен спектр лазерного импульса той же мощности при его филаментации в воздухе [6]. Из сравнения спектров 2 и 4 видно, что ширина спектра по уровню  $e^{-2}$  при филаментации в воде в 5 раз больше, чем в воздухе. При уменьшении параметра  $\eta$  в 20 раз, т.е. при  $\eta \sim 125$  (рис. 2, *a*, кривая 3), ширина спектра уменьшается в 3,5 раза, но превышает ширину исходного спектра в 1,5 раза.

Из рис. 2, *b* видно, что при  $\eta \sim 2,5 \cdot 10^3$  филамент формируется в начале кюветы, о чем свидетельствует регистрируемое камерой расходящееся свечение в видимой области спектра, соответствующее генерации суперконтинуального свечения при филаментации пучка. К середине кюветы, вблизи геометрического фокуса линзы, это свечение стягивается, причем в области перетяжки наблюдается свечение плазменных очагов, следовательно там достигается интенсивность  $\sim 10^{11} \text{ Вт}/\text{см}^2$ .

В спектре свечения филамента при измерениях под  $90^\circ$  (рис. 3) в стоксовой области относительно исходного лазерного импульса регистрируются электронно-колебательные линии секвенции перехода с возбужденного электронного состояния на метастабильное состояние первой положительной системы растворенного в воде молекулярного азота ( $B^3\Pi_g - A^3\Sigma_u^+$ ).

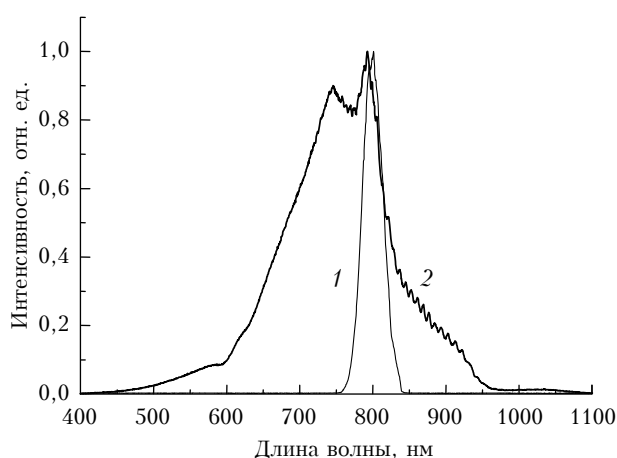


Рис. 3. Спектры основной гармоники фемтосекундного лазерного импульса ( $\lambda = 800 \text{ нм}$ ): 1 – спектр исходного импульса (отражение от рассеивающей керамической поверхности); 2 – филаментация импульса  $t_u = 35 \text{ фс}$ ,  $E = 1 \text{ мДж}$  в дистиллированной воде (измерен из области филаментации спектрометром Maya 2000 Pro под углом  $90^\circ$  к пучку)

Источником данного излучения являются пузырьки воздуха в жидкости. Радиационное время жизни для колебательных уровней с 21 до 0 варьируется от 3,8 до 11 мкс. Отсутствие в регистрируемом спектре первой отрицательной и второй положительной систем азота, согласно данным работ [7, 8], указывает, что температура плазмы составляет 4000–5000 К, поскольку при этих температурах излучение первой положительной системы азота значительно превос-

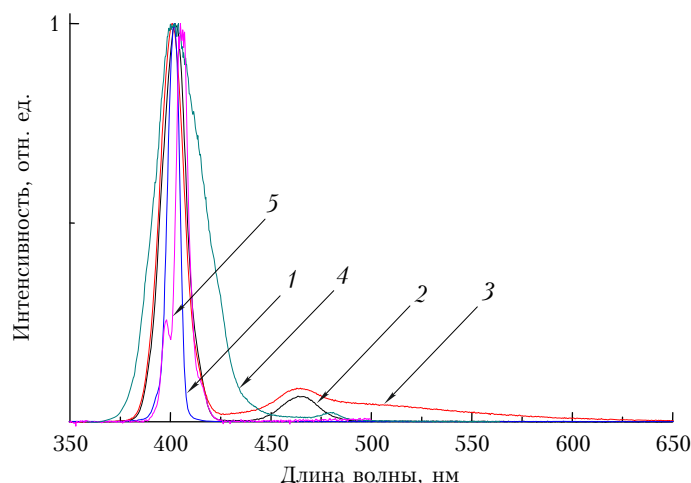
ходит излучение второй положительной и первой отрицательной систем молекулярного азота.

Для  $\eta \sim 125$  филаментация пучка реализуется вблизи геометрического фокуса и сопровождается формированием четочной структуры, ярким свечением и бурным парообразованием с характерным размером зоны тепловыделения  $\sim 2,5\text{--}3 \text{ см}$  (см. рис. 2, *b*). Кроме того, из рис. 2, *b* видно, что область филаментации (если предположить, что области тепловыделения и филаментации совпадают) распространяется за геометрический фокус. Исходя из различий в наблюдаемых картинах филаментации по отношению к геометрическому фокусу, можно сделать вывод о том, что выдвинутый в [9] критерий прохождения области филаментации за фокус является не монотонной функцией, а имеет экстремум.

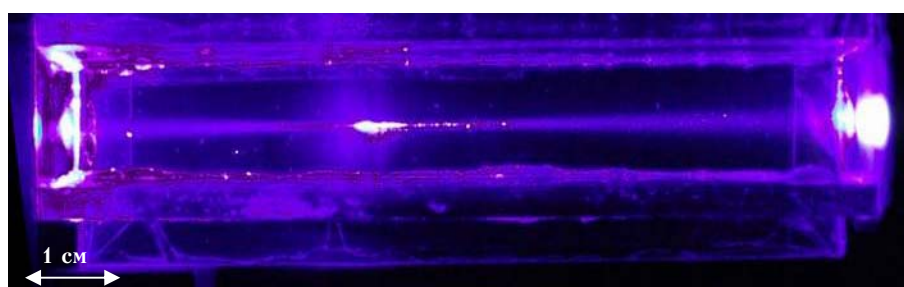
Для второй гармоники 400 нм ( $n_2 \sim 5 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$  [4, 5]) спектр при филаментации в воде также уширяется (рис. 4, *a*) в сравнении со спектром исходного импульса, но наблюдается его смещение в длинноволновую область. Такой же стоксов сдвиг наблюдался и при филаментации на второй гармонике в воздухе [6].

На рис. 4, *a* представлены спектры комбинационного рассеяния (КР) проб морской и дистиллированной воды, возбуждаемые второй гармоникой фемтосекундного Ti:Sapphire-лазера. Спектральная полоса, описывающая исходный импульс падающего излучения на 400 нм (рэлеевское рассеяние), является эталонной. На ее фоне хорошо просматривается разница между полосами КР дистиллированной и морской воды, обусловленными межмолекулярными взаимодействиями.

Характерное смещение эмиссионных полос в длинноволновую область спектра наблюдается в обоих случаях, что говорит о наличии процесса стоксова рассеяния. Максимальное значение интенсивности полосы и для морской (кривая 3), и для дистиллированной воды (кривая 2) приходится на 464 нм ( $21551 \text{ см}^{-1}$ ), значит частотный сдвиг комбинационного рассеяния будет равен 64 нм ( $3449 \text{ см}^{-1}$ ). Полученные спектральные полосы относятся к колебательным спектрам молекул, и поскольку энергия вращательных уровней спектра значительно меньше энергии колебательных и лежит в области от 1 до нескольких десятков  $\text{см}^{-1}$ , ею можно пренебречь и рассматривать в данном случае только колебательные структуры. Молекула воды как объект исследования относится к виду трехатомных молекул и имеет нелинейную угловую структуру с числом колебательных степеней свободы, равным 3. Из них два основных колебания гидроксильной группы –ОН будут валентными симметричными колебаниями ( $\nu_s, \nu_{as}$ ) и будут определять основные колебания молекулы, которая вращается как асимметричный волчок и имеет характерный малый момент инерции. Для обозначения энергии колебательных уровней используют значения квантовых чисел ( $\nu_1, \nu_2, \nu_3$ ), которые описывают симметричное растяжение, изгиб и антисимметричное растяжение и в основном уровне имеют значение (0, 0, 0). Энергия основного колебательного уровня равна 0,574 эВ.



*a*



*б*

Рис. 4. Спектры второй гармоники фемтосекундного лазерного импульса ( $\lambda = 400$  нм) после филаментации: 1 – спектр исходного импульса (отражение от рассеивающей керамической поверхности); 2 – филаментация в дистиллированной воде импульса  $E = 0,3$  мДж; 3 – филаментация в морской воде импульса  $E = 0,3$  мДж (2, 3 измерены из области филаментации спектрометром Maya 2000 Pro под углом  $90^\circ$  к пучку); 4 – филаментация импульса  $E = 0,3$  мДж в дистиллированной воде; 5 – филаментация импульса  $E = 0,3$  мДж в воздухе (4, 5 измерены спектрометром HR4000 в интегрирующую сферу в направлении вперед) (*a*). Филаментация импульса  $E = 0,4$  мДж в воде (вид сверху) (*б*)

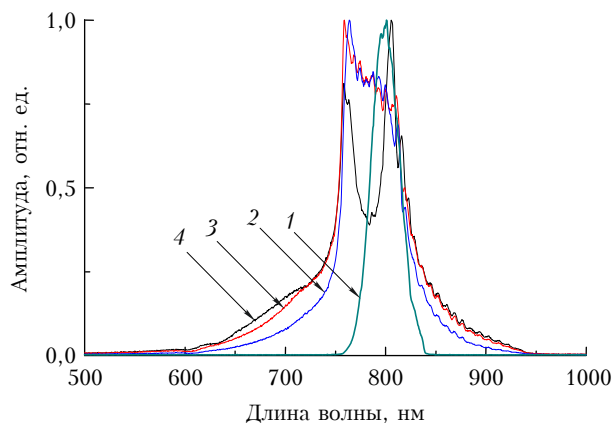
Используя полученное значение частотного сдвига комбинационного рассеяния  $3449 \text{ см}^{-1}$  и сопоставляя его со спектральными данными информационной базы HITRAN, мы установили, что данный подвид колебания ( $-\text{OH}$ ) будет в основном определяться следующим молекулярным переходом:  $(1, 0, 0) \rightarrow (0, 0, 0)$ , и будет относиться к симметричным колебаниям растяжения. Энергия колебания молекулы воды  $E_{V_{1B}}(\nu_1, \nu_2, \nu_3)$  для данного перехода составляет  $1,03$  эВ [10].

Полоса интенсивности дистиллированной воды имеет четкий профиль (кривая 2) в отличие от полосы проб морской воды (кривая 3). Для морской воды видны увеличение ширины полосы в длинноволновую область спектра и медленное спадание интенсивности. Данное обстоятельство обусловлено наличием биогенных взвесей и растворенного органического вещества, к ним относятся флуоресцирующие природные соединения (белки) и ароматические аминокислоты, нуклеиновые кислоты, фенолы и полифенольные соединения (лигнин, танин), гуминовые соединения и их компоненты, а также некоторые пигменты. Авторы [11, 12] объясняют свечение в видимой области спектра с максимумом  $400\text{--}450$  нм наличием флуоресцирующих гуминовых соединений в морской воде. На рис. 4, *a* видно, что при возбуж-

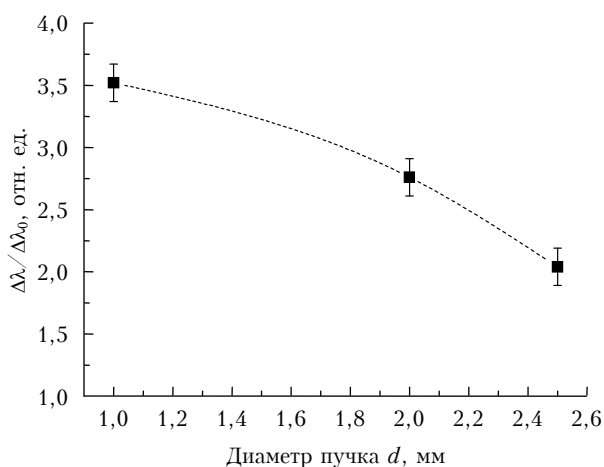
дении пробы фемтосекундными импульсами на длине волны  $400$  нм спектральная полоса имеет уширение, также связанное с перекрытием широких полос колебательной системы гидроксильной группы молекулы воды и флуоресценцией гуминовых соединений.

Измерения спектров при филаментации коллимированных лазерных пучков с различными диаметрами и одинаковой энергией в импульсе на первой гармонике в дистиллированной воде (рис. 5, *a*) показали, что эффективность трансформации спектра при филаментации  $\Delta\lambda$ , относительно исходной ширины спектра  $\Delta\lambda_0$ , при уменьшении диаметра пучка с  $2,5$  до  $1$  мм возрастает в  $1,75$  раза (рис. 5, *б*).

Таким образом, эксперименты по филаментации лазерных пучков в жидких средах показали, что при филаментации на первой и второй гармониках происходит уширение спектра исходного импульса, связанное с фазовой самомодуляцией, при этом для первой гармонике наблюдается смещение центра тяжести и максимума спектра в коротковолновую область, связанное с плазменной нелинейностью (*blue shift*), а для второй гармонике – в длинноволновую область (*red shift*), при этом уширение спектра лазерных импульсов при одинаковой мощности в воде больше, чем при филаментации в воздухе. В спектре филамента, формируемого первой гармоникой ( $800$  нм)



а



б

Рис. 5. Спектры лазерного импульса с  $\lambda = 800$  нм при филаментации в воде коллимированного пучка с диаметрами: 2 – 2,5; 3 – 2; 4 – 1 мм; 1 – спектр исходного лазерного импульса (без филаментации) (а). Зависимость относительной ширины спектров лазерного импульса от диаметра пучка при его филаментации (б)

в воде, при измерениях под  $90^\circ$  в стоксовой области относительно лазерного импульса регистрируется первая положительная система молекулярного азота. При филаментации в воде наблюдается свечение с максимумом в области 464 нм, связанное с комбинационным рассеянием на валентных колебаниях молекул воды. В морской воде уширение спектра данного свечения в длинноволновую область связано с наложением комбинационного рассеяния на флуоресценцию растворенных органических веществ в воде.

Работа выполнена при финансовой поддержке интеграционного проекта Президиума СО РАН № 67,

проекта Президиума СО РАН П.11.2.4 и гранта РФФИ № 12-05-33068 мол\_а\_вед.

1. *Self-focusing: Past and Present* / Y.R. Shen, R.W. Boyd, S.G. Lukishova, eds. N.Y.: Springer, 2009. 605 p.
2. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Кабанов А.М., Матвиенко Г.Г. Нелинейная фемтосекундная оптика атмосферы / Под общей ред. д.ф.-м.н., профессора А.А. Землянова. Томск: Изд-во Института оптики атмосферы СО РАН, 2010. 212 с.
3. Букин О.А., Быкова Е.Е., Гейнц Ю.Э., Голук С.С., Землянов А.А., Ильин А.А., Кабанов А.М., Матвиенко Г.Г., Ошлаков В.К., Соколова Е.Б. Филаментация острогофокусированного ультракороткого лазерного излучения на 800 и 400 нм. Измерения нелинейного коэффициента преломления воздуха // Оптика атмосфер. 2011. Т. 24, № 5. С. 351–358.
4. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. Характеристики филаментов при распространении мощного фемтосекундного лазерного излучения в воздухе и в воде: I. Качественный анализ // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 9. С. 749–756.
5. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. Характеристики филаментов при распространении мощного фемтосекундного лазерного излучения в воздухе и в воде: II. Численное моделирование // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 9. С. 757–760.
6. Geints Yu.E., Kabanov A.M., Zemlyanov A.A., Bykova E.E., Bukin O.A., Goluk S.S. Kerr-driven nonlinear refractive index of air at 800 and 400 nm measured through femtosecond laser pulse filamentation // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99, iss. 18. P. 181114.
7. Chauveau S., Perrin M.-Y., Riviere Ph., Soufiani A. Contributions of diatomic molecular electronic systems to heated air radiation // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 2002. V. 72, iss. 4. P. 503–530.
8. Ильин А.А., Букин О.А., Соколова Е.Б., Голук С.С., Шмирко К.А. Спектральные характеристики фемтосекундной лазерной плазмы, генерируемой на поверхности морской воды // Оптика атмосфер. и океана. 2012. Т. 25, № 5. С. 441–447.
9. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Кабанов А.М., Матвиенко Г.Г., Степанов А.Н. Формирование филамента фемтосекундного лазерного импульса в воздухе после фокуса оптической системы // Оптика атмосфер. и океана. 2012. Т. 25, № 9. С. 745–752.
10. Woźniak B., Dera J. Light Absorption in Sea Water // Atmos. and Oceanogr. Sci. Library. V. 33. Berlin; N.Y.: Springer, 2007. 462 p.
11. Букин О.А., Голук С.С., Салюк П.А., Бауло Е.Н., Ластовская И.А. Изменение спектров лазерной индуцированной флуоресценции морской воды в процессе деградации растворенного органического вещества // Ж. прикл. спектроскопии. 2007. Т. 74, № 1. С. 103–107.
12. Горшкова О.М., Пацаева С.В., Федосеева Е.В., Шубина Д.М., Южаков В.И. Флуоресценция растворенного органического вещества природной воды // Вода: химия и экология. 2009. № 11. С. 31–37.

D.V. Apeksimov, O.A. Bukin, E.E. Bykova, S.S. Goluk, A.A. Zemlyanov, A.A. Ilyin, A.M. Kabanov, G.G. Matvienko, V.K. Oshlakov, A.V. Petrov, E.B. Sokolova. **Filamentation of femtosecond Ti:Sapphire-laser pulses at the first and second harmonics in liquid media.**

The experimental results on transformation of the spectral and spatial characteristics of femtosecond Ti:Sapphire-laser pulses with the wavelengths of 800 and 400 nm at both harmonics during filamentation in liquid media are presented. It is shown that spectral broadening of a laser pulse at the expense of phase self-modulation in a medium with cubic nonlinearity depends on pulse power and beam diameter. Emission with maximum at 464 nm is observed during filamentation of the pulses with wavelength of 400 nm in distilled water, which corresponds to stimulated Raman scattering of the water. Fluorescence of dissolved organic matters is observed in sea water.