## УДК 535.1 ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ НА УТРОЕННЫХ И КОМБИНАЦИОННЫХ ЧАСТОТАХ ПРИ ОДНОВРЕМЕННОМ НЕЛИНЕЙНОМ ОТРАЖЕНИИ ОТ ДИЭЛЕКТРИКА ДВУХ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ НА ОСНОВНОЙ И УДВОЕННОЙ ЧАСТОТАХ

О.А. Столповская, С.Э. Путилин, В.Г. Беспалов, С.А. Козлов

Представлены теоретические и экспериментальные результаты одновременного нелинейного отражения от диэлектрика двух фемтосекундных импульсов на основной  $\omega_1$  и удвоенной  $\omega_2 = 2\omega_1$  частотах при падении света на границу раздела сред, близком к нормальному. Показано, что при отражении такого двухкомпонентного излучения происходит генерация импульсов на утроенной и комбинационных частотах. При этом спектр излучения, отраженного на утроенных частотах, представляет собой наложение двух компонент: утроенной  $3\omega_1$  и комбинационной  $2\omega_2 - \omega_1$ . Интерференция этих двух компонент приводит к модуляции спектра излучения, отраженного на утроенных частотах, при изменении временной задержки между падающими импульсами.

Ключевые слова: нелинейное отражение, утроенные и комбинационные частоты, фемтосекундный импульс.

#### Введение

Распространение фемтосекундного излучения в прозрачных твердых телах без оптического пробоя вещества оказывается возможным при значительно больших интенсивностях, чем для более длинных оптических импульсов [1]. Это позволяет при взаимодействии в нелинейных оптических средах двух или более фемтосекундных импульсов разных спектральных составов эффективно генерировать излучение на кратных и комбинационных частотах. Обзор работ по взаимодействию в нелинейных средах сонаправленных и встречных фемтосекундных импульсов можно найти в [2], а также, например, в [3, 4]. В настоящей работе рассмотрено взаимодействие двух разночастотных фемтосекундных импульсов при нелинейном отражении.

В работах [5–7] были получены соотношения, связывающие параметры поля отраженного излучения с характеристиками падающего на нелинейный диэлектрик света, спектр которого может занимать значительную часть диапазона прозрачности диэлектрической среды, для случая нормального падения плоской поперечно однородной волны. Особенностью этих работ было использование непосредственно полевых уравнений при выводе зависимостей. В работе [8] также на основе полевых уравнений были получены аналоги формул Френеля для случая отражения от нелинейного диэлектрика поперечно слабонеоднородной (параксиальной) волны со сверхшироким временным спектром. В этой работе была выведена зависимость пространственно-временного спектра светового импульса, отраженного от диэлектрической среды с нерезонансной дисперсией и нелинейностью, от параметров пространственно-временного спектра падающего параксиального пучка, временной спектр которого в общем случае рассматривается сверхшироким, вида

$$G_{ref}(\omega, k_x, k_y) = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \left( 1 + \frac{c^2}{n_1 n_2} \frac{k_x^2 + k_y^2}{\omega^2} \right) G_{inc} - \frac{gcS}{3(n_1 + n_2)},$$
(1)

где  $G_{inc}$  и  $G_{ref}$  – пространственно-временные спектры падающего и отраженного излучения соответственно;  $n_1(\omega)$  и  $n_2(\omega)$  – линейные показатели преломления граничащих сред, для которых зависимость от частоты имеет вид

$$\begin{cases} n_i(\omega) = N_i + \Delta n_i(\omega), \\ \Delta n_i(\omega) = ca_i\omega^2 - c\frac{b_i}{\omega^2} \end{cases}$$

где  $N_i$ ,  $a_i$ ,  $b_i$  – константы, характеризующие нерезонансную дисперсию линейного показателя преломления среды;  $g = 2\tilde{n}_2/c$  – описывает безынерционную нелинейность поляризационного отклика среды,  $\tilde{n}_2$  – коэффициент нелинейного показателя преломления среды; c – скорость света в воздухе,

$$\begin{split} S(\omega,k_{x},k_{y}) &= \int \int_{-\infty}^{\infty} \int E_{inc}^{3}(t,x,y) e^{i(\omega\cdot t-k_{x}\cdot x-k_{y}\cdot y)} dt \, dx \, dy = \\ &= \frac{1}{(2\pi)^{6}} \int \int \int \int_{-\infty}^{\infty} \int \int G_{inc}(\omega-\omega',k_{x}-k_{x}',k_{y}-k_{y}') \, G_{inc}(\omega'-\omega'',k_{x}'-k_{x}'',k_{y}'-k_{y}'') \times \\ &\quad \times G_{inc}(\omega'',k_{x}'',k_{y}'') \, d\omega' dk_{x}' dk_{y}' \, d\omega'' dk_{x}'' dk_{y}'', \end{split}$$

где *E*<sub>inc</sub> – напряженность электрического поля падающей волны.

В работах [8, 9] были рассмотрены сценарии нелинейного отражения одиночных импульсов из малого числа колебаний, а также экспериментально исследовано отражение высокоинтенсивного фемтосекундного излучения от поверхности диэлектрика. Теоретический анализ одновременного нелинейного отражения от диэлектрической среды двух фемтосекундных импульсов разных частот и генерации при этом излучения кратных и комбинационных частот в настоящей работе проведем на основе формулы (1).

### Теоретический анализ нелинейного отражения от диэлектрика двух фемтосекундных импульсов на основной и удвоенной частотах

Применим (1) для анализа нелинейного отражения нормированной суперпозиции двух фемтосекундных гауссовых импульсов:

$$E_{inc}(t, x, y) = e^{-2\left(\frac{t}{\tau_{1}}\right)^{2}} \cdot e^{-2\left(\frac{x}{\rho_{1}}\right)^{2}} \cdot e^{-2\left(\frac{y}{\rho_{1}}\right)^{2}} \cdot \sin\left(\omega_{1}\left(t - \alpha_{1} \cdot t^{2}\right)\right) + \frac{E_{2}}{E_{1}} \cdot e^{-2\left(\frac{t + \Delta t}{\tau_{2}}\right)^{2}} \cdot e^{-2\left(\frac{x}{\rho_{2}}\right)^{2}} \cdot e^{-2\left(\frac{y}{\rho_{2}}\right)^{2}} \cdot \sin\left(\omega_{2}\left(t + \Delta t - \alpha_{2} \cdot t^{2}\right)\right),$$
(2)

где  $E_1$  и  $E_2$  – амплитуды первого и второго импульсов соответственно;  $\tau_1$  и  $\tau_1$  – их временные длительности;  $\rho_1$  и  $\rho_2$  – поперечные размеры;  $\omega_1 = 2\pi c / \lambda_1$  и  $\omega_2 = 2\pi c / \lambda_2$  – центральные частоты импульсов;  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ – их центральные длины волн;  $\Delta t$  – временная задержка второго импульса относительно первого;  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  – корфициенты фаророй молуляции

α<sub>2</sub> – коэффициенты фазовой модуляции.

Рассмотрим вначале особенности отражения суперпозиции двух гауссовых импульсов без фазовой модуляции (  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ ) с амплитудами  $E_1 = 2E_2$ , центральными длинами волн  $\lambda_1 = 800$  нм и  $\lambda_2 = 400$  нм, пространственно-временными параметрами  $\rho_1 = \rho_2 = 10 \cdot \lambda_1$  и  $\tau_1 = \tau_2 = 26$  фс и пиковой интенсивностью  $I = 5 \cdot 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>, которые падают из воздуха ( $N_1 = 1$ ,  $a_1 = b_1 = 0$ ) на кварцевое стекло ( $N_2 = 1,4508$ ,  $a_2 = 2,7401 \cdot 10^{-44}$  с<sup>3</sup>/см,  $b_2 = 3,9437 \cdot 10^{17}$  1/(с · см),  $\tilde{n}_2 = 2,9 \cdot 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт [10]) с временной задержкой  $\Delta t = 20$  фс. На рис. 1 представлены нормированные поле и спектр падающего излучения.

На рис. 2 изображены нормированные поле и спектр отраженного излучения. Можно показать, что дифракционно-дисперсионным изменением поля и спектра при указанных параметрах излучения и вещества можно пренебречь, и основными эффектами, как видно из рисунка, являются нелинейные, заключающиеся в генерации импульсов на кратных и комбинационных частотах  $3\omega_1$  (совпадающей с  $2\omega_2 - \omega_1$ ),  $2\omega_1 + \omega_2$ ,  $2\omega_2 + \omega_1$  и  $3\omega_2$ . На утроенных частотах отраженного излучения наблюдается провал спектральной плотности, который объясняется наложением комбинационной частоты  $2\omega_2 - \omega_1$  на утроенную частоту  $3\omega_1$ .

На рис. 3 проиллюстрирован волновой пакет, отраженный на утроенной частоте. Из рисунка видно, что этот импульс имеет меньшую длительность по сравнению с импульсами, отраженными на основных частотах  $\omega_1$  и  $\omega_2$  (в  $\sqrt{3}$  раз).

Введем в падающее излучение (2) фазовую самомодуляцию, которая может возникнуть в оптическом тракте лазерной системы. Положим  $\alpha_1 = 6 \cdot 10^{-4} \omega_1$ ,  $\alpha_2 = 2 \cdot 10^{-4} \omega_1$ . Тогда излучение, отраженное на утроенных частотах, будет иметь вид, который представлен на рис. 4. Из рисунка видно, что спектр третьей гармоники уширяется, провал в спектральной плотности увеличивается и смещается.



Рис. 1. Нормированные поле (а) и спектр (б) падающего излучения – суперпозиции двух гауссовых импульсов разной частоты и амплитуды с временной задержкой между ними, равной 20 фс



Рис. 2. Нормированные поле (а) и спектр (б) отраженного излучения, включающего импульсы на кратных и комбинационных частотах 3ω<sub>1</sub> (совпадающей с 2ω<sub>2</sub> – ω<sub>1</sub>), 2ω<sub>1</sub> + ω<sub>2</sub>, 2ω<sub>2</sub> + ω<sub>1</sub> и 3ω<sub>2</sub>. На вставке изображен спектр кратных и комбинационных частот отраженного излучения (увеличенный)



Рис. 3. Нормированное поле импульса, отраженного на утроенной частоте 3ω<sub>1</sub>. На вставке показан его спектр



Рис. 4. Нормированное поле импульса, отраженного на утроенной частоте 3ω<sub>1</sub>, при фазовой модуляции падающего излучения. На вставке показан его спектр

Рассмотрим теперь излучение, отраженное на утроенных частотах, при изменении временной задержки между падающими импульсами. Пусть  $\Delta t$  изменяется от 15 фс до 25 фс с шагом 0,5 фс. На рис. 5 продемонстрировано изменение спектра третьей гармоники при увеличении временной задержки  $\Delta t$ . Из рисунка видно, что провал в спектральной плотности смещается в зависимости от временной задержки между импульсами. При этом изменяется ширина и амплитуда спектральной плотности.



Рис. 5. Спектр импульса, отраженного на утроенной частоте, при изменении задержки между падающими импульсами на 0,5 фс

# Экспериментальное исследование интерференции излучения, генерируемого при нелинейном отражении на утроенных и комбинационных частотах

В экспериментах нами была использована фемтосекундная лазерная система на кристаллах титансапфира с усилением чирпованного импульса с пиковой мощностью 30 ГВт [11]. Система имела следующие параметры: длительность импульса 40 фс, энергия одиночного импульса до 1,5 мДж, частота повторения импульсов 50 Гц.

Излучение от фемтосекундной системы, пройдя линзу L (рис. 6) с фокусным расстоянием 51 см, попадало на кристалл второй гармоники SHG, установленный на подвижку, с помощью которой можно было изменять положение кристалла вдоль оси распространения пучка. Далее излучение основной частоты и второй гармоники падало на переднюю грань образца кварцевого стекла C. Чтобы избежать влияния излучения, отраженного от задней грани, образец был наклонен относительно падающего луча (угол падения составлял 5,5°), а область взаимодействия была максимально приближена к матовой боковой грани образца. Фокальная плоскость линзы была расположена в 6 см за передней гранью кристалла. Плотность мощности была близка к энергии пробоя, но не превышала ее и составляла около 4 TBT/см<sup>2</sup>.

Отраженное от образца излучение проходило через ультрафиолетовые стекла (УФС-5) F суммарной толщиной 10 мм. За фильтрами на линейный транслятор с шаговым двигателем *MTS* был установлен спектрограф ASP100 *SD*. Работа шагового двигателя линейного транслятора и спектрографа управлялись при помощи компьютера *PC*. На рис. 7 представлен зарегистрированный на спектрографе спектр отраженного излучения без внесения кристалла второй гармоники в схему. Из рисунка видно, что спектр третьей гармоники имеет плавный контур.



Рис. 6. Схема экспериментальной установки



Рис. 7. Спектр отраженного излучения, прошедшего через УФС-фильтры. На вставке изображен спектр излучения, отраженного на утроенных частотах, имеющий плавный контур



Рис. 8. Спектр импульса, отраженного на утроенной частоте, при изменении положения кристалла второй гармоники с шагом 2 мм

Установим кристалл второй гармоники так, как показано на схеме (рис. 6), на расстоянии 7,5 см от линзы *L*, и с помощью подвижки будем изменять его положение по оси распространения пучка с шагом 2 мм в сторону линзы. Изменяя положение кристалла второй гармоники, мы можем управлять временной задержкой между импульсами основной частоты и второй гармоники вследствие дисперсии воздуха.

На рис. 8 проиллюстрировано изменение спектра третьей гармоники в зависимости от положения кристалла второй гармоники. Как видно из рисунка, в спектре отраженного на утроенной частоте излучения присутствуют провалы, вызванные наложением двух спектральных компонент – утроенной и комбинационной, что доказывает генерацию более высоких комбинационных частот в спектре отраженного излучения. Также из рисунка видно, что провалы в спектральной плотности излучения, отраженного на утроенной частоте, смещаются в зависимости от временной задержки между импульсами основной частоты и второй гармоники, что подтверждает вышеприведенные теоретические результаты.

### Заключение

Рассмотренный случай одновременного нелинейного отражения от диэлектрика двух фемтосекундных импульсов на основной и удвоенной частотах расширяет теорию нелинейного отражения, полученную в работе [8], а также экспериментально демонстрирует возможность эффективной генерации утроенных и комбинационных частот. Интерференция между сгенерированными спектральными компонентами на утроенной частоте позволяет качественно изменять отраженное излучение. В частности, изменяя положение кристалла второй гармоники по оси распространения падающего пучка, можно управлять спектральной шириной импульса, отраженного на утроенной частоте.

Работа поддержана грантами Министерства науки и образования Российской Федерации 16.740.11.0459 и РФФИ 11-02-01346а.

### Литература

- 1. Von der Linde D., Schuler H. Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser-solid interaction // J. Opt. Soc. Am. B. 1999. V. 13. № 1. P. 216–222.
- 2. Козлов С.А., Самарцев В.В. Основы фемтосекундной оптики. М.: Физматлит, 2009. 292 с.
- 3. Сазонов С.В., Устинов Н.В. Резонансно-параметрический механизм оптического выпрямления и генерации высших гармоник // Оптика и спектроскопия. 2009. Т. 106. № 3. С. 473–480.
- 4. Буяновская Е.М., Козлов С.А. Взаимодействие встречных световых импульсов из малого числа колебаний в нелинейных диэлектрических средах и генерация излучения на комбинационных частотах в этом процессе // Оптика и спектроскопия. – 2011. – Т. 111. – № 2. – С. 325–332.
- 5. Bespalov V.G., Kozlov S.A., Oukrainski A.O., Sazonov S.V., Shpolyanskiy Yu.A. Self-action of femtosecond pulses with continuum spectrum // Proc. of SPIE. – 1999. – V. 3735. – P. 43–54.
- 6. Розанов Н.Н. Отражение сверхкоротких импульсов от границы среды Друде–Лоренца // Оптика и спектроскопия. 2003. Т. 94. № 3. С. 449–452.
- 7. Ястребова Н.В., Шполянский Ю.А., Козлов С.А. Нелинейное отражение импульсов из малого числа колебаний светового поля от просветленной границы раздела сред // Оптический журнал. 2004. Т. 71. № 6. С. 78–83.
- Мохнатова О.А., Козлов С.А. Нелинейное отражение фемтосекундного лазерного суперконтинуума // ЖЭТФ. – 2008. – Т. 13. – Вып. 2. – С. 260–270.
- 9. Мохнатова О.А., Путилин С.Э., Беспалов В.Г., Козлов С.А. Генерация третьей гармоники при отражении от кристалла фемтосекундного излучения высокой мощности // Научно-технический вестник СПбГУ ИТМО. – 2010. – № 4 (68). – С. 11–15.
- 10. Berkovsky A.N., Kozlov S.A., Shpolyansky Yu.A. Self-focusing of few-cycle light pulses in dielectric media // Phys. Rev. A 72. – 2005. – V. 72. – P. 043821.
- Беспалов В.Г., Киселев В.М., Кисляков И.М. и др. Антистоксов самосдвиг и уширение спектра излучения фемтосекундного лазера в сильно поглощающей среде // Оптика и спектроскопия. 2009. Т. 106. № 4. С. 670–679.

Столповская Ольга Александровна	-	Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, аспирант,
		o.stolpovskaya@gmail.com
Путилин Сергей Эдуардович	-	Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет
		информационных технологий, механики и оптики, кандидат физмат.
		наук, доцент, seputilin@yandex.ru
Беспалов Виктор Георгиевич –	-	Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет
		информационных технологий, механики и оптики, доктор физмат.
		наук, профессор, victorbespaloff@gmail.com
Козлов Сергей Аркадьевич –	_	Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет
		информационных технологий, механики и оптики, доктор физмат. наук, профессор, декан, kozlov@mail.ifmo.ru