

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В. ЛОМОНОСОВА

На правах рукописи

Мареев Евгений Игоревич

**Нелинейно-оптические процессы генерации суперконтинуума и
самокомпрессии в газах высокого давления и сверхкритических
флюидах при филаментации фемтосекундных лазерных импульсов
ближнего ИК диапазона**

01.04.21 – Лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2019

Работа выполнена на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова.

- Научный руководитель (консультант)** – *Гордиенко Вячеслав Михайлович* – доктор физико-математических наук, профессор
- Официальные оппоненты** – *Ионин Андрей Алексеевич* – доктор физико-математических наук, профессор, руководитель отделения квантовой радиофизики Физического института им. П.Н. Лебедева РАН
- Чекалин Сергей Васильевич* – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий лабораторией спектроскопии ультрабыстрых процессов института спектроскопии РАН.
- Дормидонов Александр Евгеньевич* – кандидат физико-математических наук, заместитель начальника отдела, начальник лаборатории ФГУП «ВНИИА»

Защита диссертации состоится «20» июня 2019 г. в 15:30 на заседании диссертационного совета МГУ.01.13 Московского государственного университета имени М.В.Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова.

E-mail: diss.sov.31@physics.msu.ru

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский просп., д. 27) и на сайте ИАС «ИСТИНА»:

<https://istina.msu.ru/dissertations/194430775/>

Автореферат диссертации разослан « » мая 2019 года

Ученый секретарь
Диссертационного совета МГУ.01.13,
Кандидат физико-математических наук

А.А. Коновко.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность исследования. Взаимодействие интенсивного ультракороткого лазерного импульса с веществом является одной из «горячих проблем» современной нелинейной оптики и лазерной физики. При высоких интенсивностях ($>10^{12}$ Вт/см²) существенным образом изменяется характер взаимодействия лазерного импульса с веществом из-за зависимости нелинейно-оптических явлений от интенсивности света. Зависимость показателя преломления прозрачной среды в сильном световом поле ($\sim 10^8$ В/см) от интенсивности приводит к ряду нелинейно-оптических процессов, которые принципиально влияют не только на модификацию параметров среды, но также и на характеристики самого лазерного излучения [1]. Создание современной техники генерации мощных фемтосекундных лазерных импульсов обострило интерес к изучению нелинейно-оптических процессов в конденсированных и газовых средах. К числу основных нелинейно-оптических процессов, сопровождающих распространение лазерного излучения в нелинейно-оптической среде, относятся такие процессы как самофокусировка, генерация суперконтинуума (спектрально сверхуширенное лазерного излучения), самокомпрессия лазерного импульса, генерация ТГц и др. [2,3] Ряд экспериментальных исследований выполнен с использованием газовых и конденсированных сред, обладающих фиксированными и заранее выбранными параметрами (твердотельные оптические элементы, газы при фиксированном давлении).

Предметом диссертационной работы является изучение нелинейно-оптических процессов, протекающие в таких новых нелинейно-оптических объектах как газы высокого давления ($p > 10$ атм.) и сверхкритические флюиды (СКФ). Последние обладают высокими значениями нелинейного показателя преломления, сравнимыми или даже превышающими значения, характерные для конденсированных сред ($\sim 3 \cdot 10^{-16}$ см²/Вт). Наибольшая скорость изменения физических параметров среды достигается в окрестности критической точки, где величина нелинейного показателя преломления (n_2) может значительно вырасти при изменении давления уже в пределах 10 атм. Отмеченные выше особенности стимулируют проведение исследований в веществе с управляемым (за счет регулирования давления, температуры) нелинейно-оптическим показателем преломления, который по величине сравним с твердотельным значением.

Следует особо отметить, что структура сверхкритического состояния вещества значительно отличается от большинства жидкостей и газов за счет наличия кластеров (конгломератов молекул или атомов). В результате возникает возможность работы с кластеризованной средой, нелинейно-оптические свойства которой проявляющиеся под действием мощного фемтосекундного лазерного излучения, ранее не изучались. Наиболее ярко это проявляется в окрестности линии Видома – линии, разделяющей сверхкритический флюид (СКФ) на газо-подобный СКФ и жидкостно-подобный СКФ [4]. В окрестности этой линии кластеризация вещества достигает максимума, что значительным образом сказывается на нелинейно-оптических свойствах вещества. Исследование СКФ в окрестности линии Видома является одной из наиболее актуальных проблем в области сверхкритических технологий [4]. Таким образом, структура среды может оказывать сильное влияние на нелинейно-оптические процессы, возникающие при распространении мощных фемтосекундных импульсов.

В диссертационной работе рассмотрены процессы генерации суперконтинуума и самокомпрессии лазерных импульсов возникающие при распространении излучения

фемтосекундного лазера на хром-форстерите в режиме филаментации. Интенсивность (более 10^{13} Вт/см²), достигаемая при филаментации мощного фемтосекундного лазерного излучения, приводит к генерации протяженной плазмы [5]. Это обеспечивает динамический баланс между плазменной дефокусировкой, Керровской самофокусировкой, дифракцией и дисперсией. Данные процессы значительным образом изменяют динамику лазерного импульса как в пространственной, так и во временной области [2]. Роль филаментации в первую очередь сводится к необходимости создания в среде протяженного (порядка 10 см) канала с высокой ($\sim 3 \times 10^{13}$ Вт/см²) интенсивностью, что существенно и для эффективного управления спектрально-временными свойствами самого лазерного импульса.

В диссертационной работе экспериментально изучено поведение нелинейного показателя преломления и нелинейно-оптических процессов генерации суперконтинуума и самокомпрессии лазерного импульса, возникающих при фемтосекундной филаментации излучения ближнего ИК диапазона в газах высокого давления и СКФ (Ar, Xe, CO₂). Проведены исследования, которые продемонстрировали возможность управления отмеченными нелинейно-оптическими процессами за счет изменения давления и температуры среды (газ высокого давления и сверхкритический флюид).

Целью работы являлось управление нелинейностью среды (n_2), а также процессами генерации суперконтинуума и самокомпрессии мощного лазерного фемтосекундного импульса ближнего ИК диапазона в режиме филаментации в плотных газах и сверхкритических флюидах.

Для выполнения поставленной цели, во-первых, необходимы данные о поведении нелинейного показателя преломления в газах высокого давления и сверхкритических флюидах при изменении давления. До момента проведения данной работы не была известна зависимость нелинейных свойств от давления для всех используемых веществ. Поэтому **первой задачей** являлось:

1) Исследование зависимости нелинейного показателя преломления на примере диоксида углерода, ксенона и аргона от структуры вещества методом уширения спектра ультракороткого лазерного импульса в широком диапазоне давлений (1-100 атм.) в режиме слабой нелинейности, в том числе и в областях кластеризации

Далее, в рамках проведенных исследований необходимо было провести моделирование, учитывающее влияние структуры вещества на нелинейные свойства среды. Таким образом, **второй задачей** являлось:

2) Проведение численного моделирования, основанного на молекулярной динамике и модели нелинейного показателя преломления в кластеризованной среде, для описания поведения нелинейного показателя преломления и молярной рефракции сверхкритических флюидов и плотных газов.

После получения зависимостей нелинейного показателя преломления от давления и температуры появилась возможность описать влияние этих параметров среды на генерируемый при филаментации суперконтинуум. Это позволило поставить **третью задачу**:

3) Исследование возможности управления спектром суперконтинуума, генерируемого в режиме филаментации фемтосекундных импульсов ближнего ИК диапазона в диоксиде углерода, ксеноне и аргоне, в широком диапазоне давлений 1-100 атм.

За счет фемтосекундной филаментации лазерного импульса в благородных газах в среде происходит самокомпрессия лазерного импульса, которая сильно зависит от свойств среды и параметров лазерного импульса. Для того, чтобы сделать этот процесс управляемым была поставлена четвертая задача. **Четвертой задачей** являлось:

4) Исследование возможности управления самокомпрессии лазерных импульсов ближнего ИК диапазона в благородных газах при фемтосекундной филаментации.

Научная новизна

Научная новизна работы заключалась в следующем:

- 1) Впервые измерен нелинейный показатель преломления ксенона, углекислого газа и аргона в широком диапазоне давлений (~1-100 атм.), включая сверхкритическое состояние вещества.
- 2) Проведенное численное моделирование, основанное на молекулярной динамике и модели бинарной среды, показало, что в кластеризованной среде по сравнению с некластеризованной средой нелинейный показатель преломления существенно возрастает около 40% для диоксида углерода при 33.5°C в окрестности линии Видома).
- 3) Установлено, что спектр и спектральная яркость суперконтинуума, генерируемого в режиме филаментации фемтосекундными лазерными импульсами ближнего ИК диапазона в сверхкритических флюидах и газах высокого давления, могут управляться за счет варьирования давления и температуры. В сверхкритическом ксеноне спектр суперконтинуума простирается от 250 до 2400 нм, а наиболее эффективно суперконтинуум генерируется в субкритическом диапазоне давлений, причем конверсия в суперконтинуум по энергии близка к 65%.
- 4) Обнаружено, что на видимую часть спектра суперконтинуума накладывается усиленная спонтанная эмиссия, а излучением суперконтинуума выступает в роли затравки для спонтанной эмиссии. Эффект лазерной генерации зависит от давления, энергии лазерного импульса и носит пороговый характер. Установлено, что максимальная энергия в линии 466 нм достигается при давлении ксенона 20 атм. и энергии лазерного импульса 200 мкДж (эффективность порядка 0,5% при погонном коэффициенте усиления около 0,5 см⁻¹).
- 5) Самокомпрессия фемтосекундных (~230фс) лазерных импульсов ближнего ИК диапазона (длина волны 1.24мкм) в ксеноне и аргоне в режиме фемтосекундной филаментации может управляться путем варьирования давления газа. Оптимальные условия для самокомпрессии субмилиджоулевых фемтосекундных лазерных импульсов в ксеноне и аргоне достигаются в диапазоне давлений 20-40 бар, максимальная зарегистрированная фактор компрессии в ксеноне (p=25 атм., T=24°C) достигает 3.5 (длительность импульса сокращается до 70фс), с энергетической эффективностью порядка 60%.

Научно-практическая значимость

Полученные в работе результаты могут быть использованы для:

1. управления процессом генерации суперконтинуума в режиме фемтосекундной монофиламентации за счет плавного изменения состояния среды (в основном, при изменении давления), а не только параметров фемтосекундного лазерного импульса;

2. управления процессом самокомпрессии лазерного импульса в благородных газах в режиме фемтосекундной монофиламентации за счет плавного изменения давления среды;
3. определения структуры плотного флюида по изменению его линейных и нелинейно-оптических свойств.

Основные положения, выносимые на защиту

- 1) Кластеризация сверхкритического CO₂ флюида в окрестности линии Видома при температуре 33.5°C ведет к росту нелинейного показателя преломления на длине волны 1240 нм на 40% по сравнению с некластеризованным состоянием.
- 2) Спектр и энергия суперконтинуума, генерируемого в газообразном и сверхкритическом состоянии Хе и CO₂ при монофиламентации фемтосекундного (порядка 200 фс) импульса хром-форстеритовой лазерной системы (длина волны 1.24мкм), варьируется с изменением давления. Максимальная эффективность генерации суперконтинуума достигается при субкритических (0.9_{кр}) давлениях среды. В ксеноне ширина генерируемого спектра суперконтинуума достигает 3.5 октавы - от 250 до 2500 нм при энергии лазерного импульса 40мкДж.
- 3) Длительность фемтосекундного импульса хром-форстеритовой лазерной системы может управляться давлением при его распространении в режиме монофиламентации в плотном ксеноне, находящемся в диапазоне давлений от 10 до 50 атм. Достигнуто максимальное сокращение длительности лазерного импульса (230 фс) с энергией 40мкДж в 3.5 раза при энергетической эффективности порядка 60%.

Личный вклад автора. Личный вклад автора работы состоял в активном участии в постановке задач, проведении всех экспериментов, анализе литературы, обработке полученных данных, а также написании статей. Все результаты, представленные в работе, получены автором лично, либо в соавторстве при его непосредственном участии

Степень достоверности данных. Достоверность полученных результатов обеспечивалась, в первую очередь, высоким уровнем современного экспериментального оборудования; использованием современных теоретических представлений и методов обработки при анализе данных; согласованием полученных результатов с известными литературными данными; воспроизводимостью результатов, а также публикацией результатов в рецензируемых научных журналах.

Апробация результатов. Результаты диссертационной работы докладывались на V Международной молодежной научной школе-конференции «Современные проблемы физики и технологий» (Москва, 2016 год); XXIII международной конференции студентов, аспирантов и молодых учёных «Ломоносов 2016» (Москва, 2016 год); 17ой Международной конференции «Оптика Лазеров 2016» (Санкт-Петербург, 2016 год); Международной конференции по «Ultrafast Light-2018» (Москва, 2018 год); V Международная конференции "Лазерные, плазменные исследования и технологии" ЛАПЛАЗ – 2019 (Москва, 2019 год); Международной конференции SPIE Optics+Optoelectronics (Прага, 2019 год).

Публикации. Основные результаты, изложенные в работе, опубликованы в 12 научных работах, из них 7 статей, включенные в перечень рецензируемых научных изданий ВАК.

Объем и структура диссертации. Работа изложена на 112 страницах и состоит из введения, 4 глав, заключения и списка литературы, включающего 152 источника. Диссертационная работа иллюстрирована 37 рисунками.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Первая глава содержит обзор литературы, посвященной описанию способов генерации суперконтинуума и самокомпрессии фемтосекундных лазерных импульсов, а также особенности структуры вещества в сверхкритическом состоянии. Рассматривается влияние кластеризации на физические свойства вещества.

Вторая глава посвящена экспериментальному и численному исследованию линейных (показатель преломления, молярная рефракция) и нелинейных свойств (нелинейный показатель преломления) плотных газов и сверхкритических флюидов (СКФ) в широком диапазоне давлений (1-100 атм.).

В главе 2.1 приводится краткий обзор, посвященный структуре вещества в сверхкритическом состоянии. Вводится понятие линии Видома, разделяющей область, отвечающую сверхкритическому состоянию вещества на р-Т диаграмме, на две части: газо-подобный и жидкостно-подобный СКФ. В главе описано, что максимум кластеризации среды достигается на линии Видома, а также описана эволюция структуры вещества при увеличении давления при «движении» по изотерме при температуре выше критической.

В главе 2.2 приводится описание аналитической модели, разработанной совместно с профессором В.А. Алешкевичем для описания аномального поведения нелинейного показателя преломления и молярной рефракции при кластеризации среды. В рамках предложенного подхода кластер рассматривался в виде цепи случайно ориентированных молекул:

$$\vec{p}_{КЛ} = \sum_{m=1}^s \vec{p}_m = \beta_2 \cdot \vec{E} \quad (1)$$

Учитывая, что показатель преломления записывается в виде

$$n = 1 + \frac{2\pi N\beta}{3} + \frac{4\pi N\beta^2}{45kT} E^2 = n_0 + n_2 E^2, \quad (2)$$

и производя суммирование по всем кластерам с учетом их формы было получено, что нелинейный показатель преломления n_2 может быть представлен в виде:

$$n_2 \propto (N_1\beta^2 + N_2\beta_2^2)n_2 \propto N\beta^2 \left[1 + \frac{N_2}{N} (s^{2\gamma} - s) \right], \quad (3)$$

где N_2 / N относительная концентрация кластеров, s - количество молекул в кластере, а γ - форм-фактор.

Аналогично было получено значение для молярной рефракции среды:

$$LL = \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \frac{1}{\rho} = \frac{4\pi}{3} \frac{\beta}{m_{\text{мол}}} \left[\frac{1}{3} + \frac{N_2}{N} \left(\frac{s^\gamma}{(4\gamma - 1)} - \frac{\langle s \rangle}{3} \right) \right], \quad (4)$$

где $m_{\text{мол}}$ - масса молекулы. Из формул (3) и (4) следует, что молярная рефракция LL и нелинейный показатель преломления n_2 зависят от относительной концентрации N_2/N

кластеров, количества s молекул в кластере, а также от формы кластеров, определяемых форм-фактором γ . Поэтому, кластеризация среды изменяет молярную рефракцию и нелинейный показатели преломления среды. Далее приводится методика для оценки набега фазы лазерного импульса в среде с флуктуациями плотности (СКФ):

$$\langle \delta\varphi_{\max}^2 \rangle = \frac{\sqrt{\pi} k_T k_B T}{sL} \bar{\varphi}_{\max}^2, \quad (5)$$

где sL объем СКФ, через который прошел лазерный импульс (s - площадь сечения), k_T – изотермическая сжимаемость, k_B – постоянная Больцмана, T – термодинамическая температура, $\bar{\varphi}_{\max}$ - среднее значение фазового набега.

В главе 2.3 приводится описание методики численного моделирования, основанного на молекулярной динамике (использовался пакет программ LAMMPS) и приведенного в главе 2.2. аналитического подход. В моделировании использовался потенциал взаимодействия атомов, предложенный в [6]. Алгоритм моделирования состоял в следующем. На начальном этапе создавалась ячейка, в которой размещались 10000 молекул (скорости и положение случайны). Затем производилось моделирование для 20000 шагов (шаг по времени 1 фс) при условии сохранения числа частиц, давления и температуры (npt-расчет). На каждом шаге производилась минимизация потенциала взаимодействия. В результате производилась первичная подстройка к заданным условиям из исходного случайного состояния системы, а далее для увеличения точности производилось моделирование еще 20000 шагов, но с меньшим временным интервалом (0.1 фс). При таком выборе числа шагов система гарантированно достигала равновесного состояния, при котором среднее давление и температура в расчетной ячейки оставались неизменными. Для проверки корректности моделирования определялась плотность диоксида углерода и сравнивалась с табличными данными. В случае, если точность определения плотности находилась в пределах 1%, данные, полученные с помощью МД, обрабатывались, чтобы определить значение n_2 . Для расчета нелинейного показателя преломления использовалась модель, представленная в главе 2.2. В рамках модели, исходя из положения молекул, рассчитывалось число кластеров, их размер и форма. В расчетах, считалось, что молекулы образуют кластер, если расстояние между двумя частицами меньше 0.7Å (размер молекулы углекислого газа $\sim 3.2\text{Å}$). Выбор такого размера обусловлен требованием достижения максимального числа кластеров в окрестности линии Видома. После того, как размер и структура кластеров были определены, нелинейный показатель преломления рассчитывался с использованием модифицированной формулы (3). В ней вместо усреднения рассчитывалась сумма вкладов от отдельных молекул и кластеров:

$$n_2 \propto \sum_m \beta^2 + \sum_c \beta^2 s^{2\gamma}, \quad (6)$$

где первое суммирование ведётся по всем некластеризованным молекулам, а второе по всем кластерам, s – число молекул в кластере. Параметр формы γ рассчитывался как:

$$\gamma = 0.5 + 0.5 \frac{\max(L_x^2, L_y^2, L_z^2)}{L_x^2 + L_y^2 + L_z^2}, \quad (7)$$

где L_x, L_y, L_z – размеры кластера вдоль соответствующий оси, $\max(L_x, L_y, L_z)$ – наибольший из трех параметров размер кластера. Таким образом, максимальное значение параметра

формы равнялось 1, а минимальное порядка 0.66 для кластеров близких по форме к сферической. В расчетах с использованием формулы (6), рассчитывалась величина $\sum_m \beta^2 + \sum_c \beta^2 s^{2\gamma}$. Итоговое значение n_2 было умножено на коэффициент пропорциональности (не зависящий ни от давления, ни от температуры), который был извлечен из сравнения с экспериментальными значениями n_2 .

Для расчета функции Лоренца-Лоренца использовалась следующая формула:

$$LL \propto \frac{1}{3} \sum_m \beta + \sum_c \beta \frac{s^\gamma}{(4\gamma - 1)}, \quad (8)$$

которая является модификацией формулы (4). Как и в случае нелинейного показателя преломления, полученное из формулы (6) и результатов численного моделирования значение нормировалось на коэффициент, не зависящий ни от температуры, ни от давления, который вычислялся исходя из экспериментальных данных.

В главе 2.4 приводятся результаты численного моделирования нелинейного показателя преломления и молярной рефракции диоксида углерода при температуре 33.5°C.

Численное моделирование (см. Рис.1а) показывает, что кластеры практически не образуются при низких давлениях ($p < 30$ атм.). Это вызвано тем, что структура вещества близка к идеальному газу и кинетические энергии молекул весьма высоки. В этом случае число молекул в кластере редко превышает 3, находясь на среднем уровне $\langle s \rangle = 2.1-3$ (см. Рис.1а).

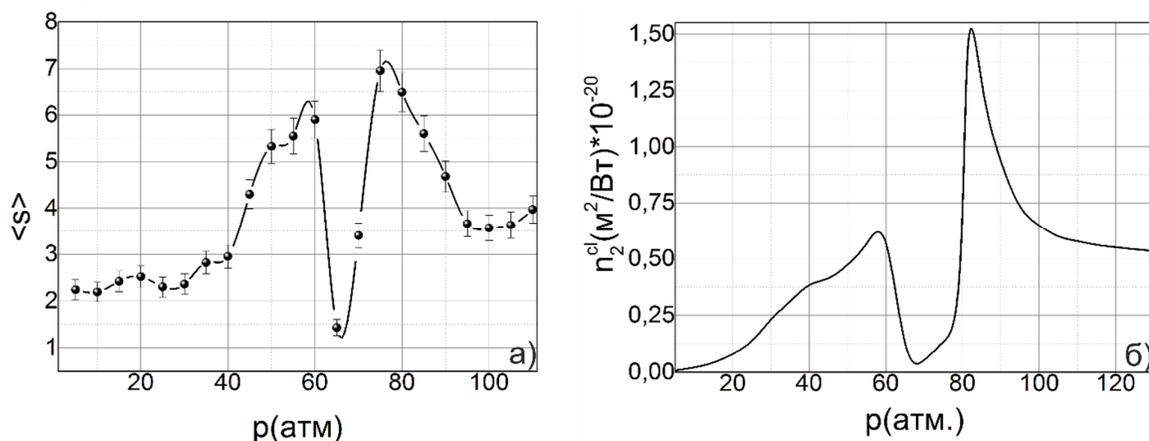


Рис. 1. Среднее число молекул $\langle s \rangle$ в кластере (а) и зависимость «кластерной» части нелинейного показателя преломления (б). в диоксиде углерода при температуре 33.5°C

При увеличении давления, уменьшается расстояние между молекулами за счет роста плотности. В результате кластеры образуются на постоянной основе (вероятность их образования резко возрастает), и среднее число молекул в кластере стремится к 6. Следует отметить, что при этом кластеров меньшего размера все еще больше. Рост давления до достижения критической точки практически не меняет структуру вещества, приводя только к увеличению среднего размера кластера (см. Рис.1а). Моделирование показывает, что при приближении давления к критическому резко возрастают флуктуации плотности, что не дает устойчиво образовываться кластерам и наблюдается практически полное их отсутствие (см. Рис.1а). При переходе через критическое давление среднее число частиц

в кластере растет, достигая максимума в окрестности линии Видома (см. Рис.1а). При дальнейшем повышении давления значительная (до половины всех молекул) часть молекул образует несколько (1-5) очень больших кластеров (суперкластеров) размером более 500 молекул. Такие кластеры не вносят значительного вклада в нелинейный показатель преломления из-за того, что они симметричны (размеры вдоль трех осей примерно одинаковы), за счет этого параметр формы γ близок к 0.5, а, значит, такие кластеры не дают вклад в увеличение нелинейного показателя преломления. Используя формулу (6), можно рассчитать величину нелинейного показателя преломления. В данной формуле содержится два слагаемых, первое из которых отвечает за вклад некластеризованных молекул, второе – за вклад всех кластеров в нелинейный показатель преломления. На Рис.1б показана зависимость «кластерной части» нелинейного показателя преломления от давления. Как и в случае зависимости среднего числа кластеров от давления, в окрестности критического давления наблюдается резкое падение нелинейного показателя преломления, за счет уменьшения среднего числа частиц в кластере. Линии Видома соответствует максимум, отвечающий локальному максимуму среднего числа частиц в кластере (см. Рис.1а). Значительное превышение «кластерной части» нелинейного показателя преломления во втором максимуме над величиной «кластерной части» в первом максимуме (см. Рис.1б) связано со значительным ростом плотности в окрестности критического давления. Однако при давлениях выше линии Видома рост плотности компенсируется увеличением размера «суперкластеров», которые, как уже отмечалось, является относительно симметричными (параметр $\gamma \sim 0.5$). В результате чего кластерный вклад в нелинейный показатель преломления выходит на насыщение. Таким образом, максимальный вклад кластеров в нелинейный показатель преломления достигается в окрестности линии Видома, а минимальный в окрестности критической точки и малых (<30 атм.) давлениях.

Было проведено моделирование поведения молярной рефракции (функции Лоренца-Лоренца) от давления для диоксида углерода при температуре 33.5°C. Данная зависимость отражает эволюцию структуры вещества в диоксиде углерода с изменением давления, когда максимумы зависимости молярной рефракции от давления совпадает с максимумами в зависимости среднего размера кластеров от давления (см. Рис.3). Минимум в поведении молярной рефракции приходится на критическое давление, где кластеризация минимальна.

В главе 2.5 приводится описание экспериментальной установки, используемой для измерения линейного и нелинейного показателя преломления, а также флуктуации энергии лазерного импульса, прошедшего через исследуемую среду. Эксперименты проводились с использованием излучения фемтосекундной хром-форстеритовой (Cr:forsterite) лазерной системы (длины волны $\lambda = 1240$ нм, частота повторения 10 Гц, длительность импульса 200-230 фс, энергия лазерного импульса до 2мДж). Энергия лазерного импульса варьировалась полуволновой пластиной и призмой Глана. Входная энергия импульса контролировалась германиевым фотодетектором (Thorlabs PDA50B), Коллимированный лазерный пучок проходил через сверхкритическую кювету с исследуемой средой. Сверхкритическая кювета (оптический путь 11,6 см, давление до 150 атм., температура до 80 °C) сделана из нержавеющей стали с оптическими кварцевыми окнами толщиной 5 мм. Температура и давление в ячейке измерялись термпарой и датчиком давления (ОВЕН-1000) соответственно. Точность измерения температуры и

давления составляла 0,1°C и 0,1 атм. соответственно. Делитель пучка использовался для разделения исходного излучения на два канала (30:70). Лазерный импульс в первом канале распространялся через кювету, и его спектр измерялся ИК-спектрометром (Solar SDH-IV). Второй импульс генерировал вторую гармонику в кристалле ВВО и смешивался с первым импульсом в кристалле КДР, давая сигнал суммарной частоты на длине волны 413 нм, который был измерен с помощью ФЭУ (Hamamatsu). Оптический путь между каналами (увеличение давления среды увеличивает оптический путь импульса в первом канале) изменялся парой зеркал, размещенных на моторизированной подвижке. В результате разность положения максимумов сигнала суммарной частоты давала разность оптического пути в каналах (см. Рис. 2), что позволяло измерить показатель преломления среды.

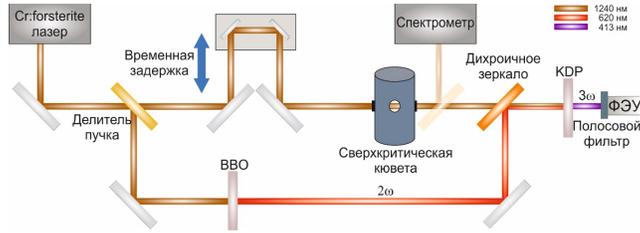


Рис. 2. Схема экспериментальной установки.

Для измерения нелинейного показателя преломления (n_2) был использован метод, основанный на измерение спектрального уширения импульсов, прошедших через среду с Керровской нелинейностью. После

прохождения нелинейных сред с известным Керровским откликом спектр лазерных импульсов уширяется за счет фазовой самомодуляции. Уширения спектра для Гауссова спектрально ограниченного импульса определяется как:

$$\frac{\Delta\omega_{out}}{\Delta\omega_{in}} = \left(1 + \frac{4}{3\sqrt{3}}\right) \bar{\varphi}_{max}^2 \quad (9)$$

где $\Delta\omega_{out}$ и $\Delta\omega_{in}$ - среднеквадратичная спектральная ширина выходного и входного импульсов; $\bar{\varphi}_{max}$ - фазовый сдвиг импульса после прохождения нелинейной среды, выраженный формулой:

$$\varphi_{max} = -L \frac{\omega_0}{c} \frac{\bar{n}_2}{n_0} I_0 - \frac{\omega_0}{c} \frac{I_0}{n_0} \int_0^L \delta n_2(z) dz = \bar{\varphi}_{max} + \delta\varphi_{max} \quad (10)$$

где $\bar{\varphi}_{max}$ - среднее значение фазового набег, $\delta\varphi_{max}$ - случайные флуктуации фазы, ω_0 - частота лазерного импульса, c - скорость света, L - длина среды. Поэтому, измеряя спектр исходного лазерного импульса и спектр лазерного импульса, прошедшего через нелинейную среду в слабо нелинейном режиме при известной интенсивности лазерного излучения, можно определить нелинейный показатель преломления n_2 . Стоит отметить, что все измерения производились при фиксированной энергии; при малых давлениях уширение импульса было не слишком велико, что вносило большие погрешности в измерения, проведенные до 10 атм. Также измерения спектрального уширения осложнены в окрестности критического давления из-за резкого увеличения рассеяния.

В главе 2.6 приводятся результаты измерения флуктуаций энергии фемтосекундного лазерного импульса, прошедшего через кювету с исследуемым газом (CO_2 , Xe). Проведённые эксперименты показали, что в зависимости флуктуаций энергии лазерного импульса от давления наблюдается два максимума. Первый максимум отвечает

критическому давлению, при котором происходит фазовый переход в сверхкритическое состояние вещества. Второй максимум отвечает линии Видома, в которой наблюдается максимум кластеризации среды. С ростом температуры среды максимум, отвечающий линии Видома смещается в сторону больших давлений. В областях, где флуктуации максимальны, возрастает рассеяние, что, как показали измерения, приводит к уменьшению интенсивности лазерного импульса, прошедшего через среду и, возможно, к уменьшению пространственной когерентности лазерного пучка. В совокупности это и ведет к уменьшению сигнала суммарной частоты (см. Рис.2).

В главе 2.7 приводится экспериментально измеренная зависимость показателя преломления n от давления в ксеноне, аргоне и диоксиде углерода. Показано, что экспериментальные зависимости хорошо аппроксимируются функцией $n \sim \rho$ (p). За счет того, что показатель преломления крайне слабо зависит от структуры вещества, то в окрестности линии Видома экстремумов не возникает.

В главе 2.8 приводится экспериментально измеренная зависимость молярной рефракции ксенона, диоксида углерода и аргона от давления и производится сравнение с результатами компьютерного моделирования. В зависимости молярной рефракции от давления можно выделить два максимума и минимум (см. Рис.3). Минимум соответствует критической точке, а второй максимум линии Видома. Первый максимум соответствует давлениям порядка 65 атм. для диоксида углерода. Экстремумы молярной рефракции соответствуют преобразованиям структуры вещества. Первый экстремум, как было показано в результате компьютерного моделирования, основанном на МД, вызван локальным максимумом среднего количества молекул в кластере.

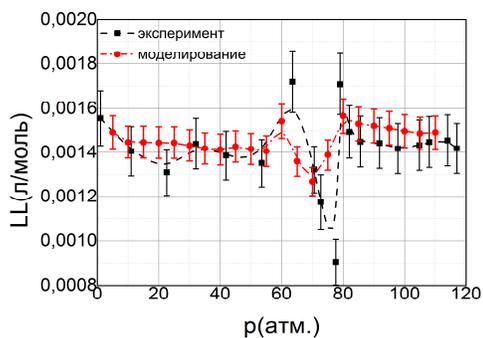


Рис. 3. Экспериментальная и полученная в результате компьютерного моделирования зависимость функции Лоренца-Лоренца от давления в диоксиде углерода при температуре 33.5°C.

С ростом разницы между текущей температурой и критической температурой скачок молярной рефракции при переходе (по давлению) через линию Видома сглаживается, и в случае аргона ($\Delta T > 100^\circ\text{C}$) уже практически незаметен. Это связано с тем, что с ростом температуры СКФ становится все ближе к газу по своей структуре, а линия Видома сдвигается в область высоких давлений, не достижимых в проводимых экспериментах. За счет этого переход газ \Rightarrow СКФ практически не меняет структуры вещества, и молярная рефракция не «чувствует» этого изменения. Наиболее ярко же скачок молярной рефракции наблюдается вблизи критической температуры.

В главе 2.9 приводится экспериментально измеренная зависимость нелинейного показателя преломления ксенона, диоксида углерода и аргона от давления и производится сравнение с результатами компьютерного моделирования. Как и предсказывалось теоретической моделью, в окрестности линии Видома наблюдается резкий рост нелинейного показателя преломления. Это связано с достижением максимума кластеризации. Рост n_2 больше для температур, близких к критической точке: кластеризация СКФ максимальна, когда линия Видома близка к критическому давлению, и $N_2/N^* < s >$ в формуле (3) имеет максимальное значение. С увеличением давления пик в

зависимости n_2 от давления становится шире, а его амплитуда падает. Различие между газо-подобным и жидкостно-подобным состоянием СКФ становится менее выраженным. При этом число кластеров уменьшается [4]. Поскольку средний размер кластеров и их число в молекулярной среде больше (см. Главу 2.4), зависимость n_2 от давления проявляется сильнее (см. Рис. 4). Уширение спектра импульса в CO_2 в окрестности линии Видома неоднородно. Стоксова часть спектра шире, что может быть связано с увеличением молекулярной (рамановской) части нелинейного показателя преломления. Это подтверждается и тем фактом, что спектр лазерного импульса для атомного Хе даже вблизи линии Видома более симметричен, чем в случае CO_2 . Изменение значения n_2 в окрестности линии Видома больше для молекулярного CO_2 по сравнению с атомарным Хе. Это возникает из-за того, что зависимость плотности аргона от давления в диапазоне комнатных температур является линейной.

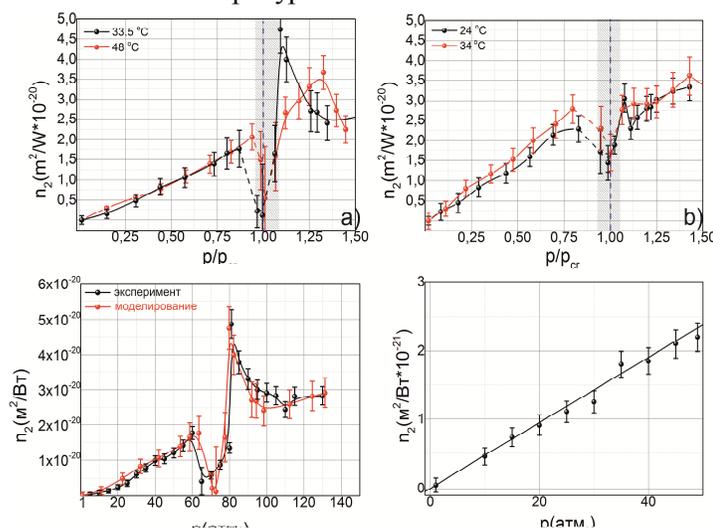


Рис. 4. Зависимость нелинейного показателя преломления (n_2) от давления для (а) CO_2 , (б) Хе и (г) Аг при разных температурах. Вертикальная синяя линия показывает критическое давление. На вставках показан измеренный спектр 230-фс лазерного импульса, прошедшего через ячейку при различных давлениях (в). Первая точка соответствует $n_2 = 3,4 \pm 0,6 \cdot 10^{-22} \text{ м}^2/\text{Вт}$ в CO_2 и $n_2 = 6,2 \pm 1,6 \cdot 10^{-22} \text{ м}^2/\text{Вт}$ в Хе при атмосферном давлении. Заштрихованная область отвечает области, где измерение n_2 затруднено за счет высоких флуктуаций.

исследованию генерации суперконтинуума в плотных газах и сверхкритических флюидах в режиме филаментации. Также в рамках данной главы обсуждается оптимизация рабочих параметров среды для достижения максимально эффективной генерации суперконтинуума.

В главе 3.1 описывается экспериментальная установка для исследования процесса генерации суперконтинуума. Параметры лазерной системы эквивалентны указанным в главе 2.5. Однако, для генерации суперконтинуума лазерный пучок фокусировался в «сверхкритическую» кювету (длина 11.6 см) с помощью фокусирующей линзы с фокусным расстоянием 20см (см.Рис.5). Предварительные эксперименты показали, что именно при такой фокусировке достигается наиболее эффективная генерация

Поэтому никаких особенностей в зависимости нелинейного показателя от давления не наблюдается.

Теоретическая модель хорошо описывает поведение нелинейного показателя преломления. Таким образом, можно утверждать, что максимум значения n_2 в диоксиде углерода достигается именно в окрестности линии Видома, где кластеризация среды максимальна. Сравнение с точками, где кластеризация среды выражена менее ярко, позволяет утверждать, что в диоксиде углерода при температуре 33.5°C вклад кластеров в нелинейный показатель преломления составляет 40%.

Третья глава посвящена

суперконтинуума. Фокусировка производилась в центр кюветы. Диаметр лазерного пучка (по уровню $1 / e^2$) на входном окне равнялся 3 мм. В экспериментальных условиях В-интеграл для входного окна был значительно меньше единицы. Размер пучка на выходном окне, при используемых в экспериментах условиях составлял порядка 1.5 мм, что дает оценку интенсивности на уровне 10^{11} Вт/см². Такие значения интенсивности дают право утверждать, что вкладом выходного окна на свойства лазерного импульса, прошедшего через кювету можно пренебречь. После прохождения через сверхкритическую кювету лазерный пучок коллимировался фокусирующей линзой с фокусным расстоянием 7 см. Затем лазерный импульс направлялся на спектрометр (SL40-100A для видимой области длин волн, SDH-IV для ИК диапазона) или монохроматор, оснащенный калиброванными фотодетекторами (Thorlabs PDA-100A, PDA-20H, PDA-30G или PD-50B). Монохроматор укомплектован сменными решетками и детекторами для регистрации широкополосных спектров СК (от 300 нм до 2 мкм). Флуктуации спектров СК измерялись как среднеквадратичные значения во всем спектральном диапазоне. (Среднеквадратичные отклонения энергии возбужденного лазерного импульса находились в пределах 5%).

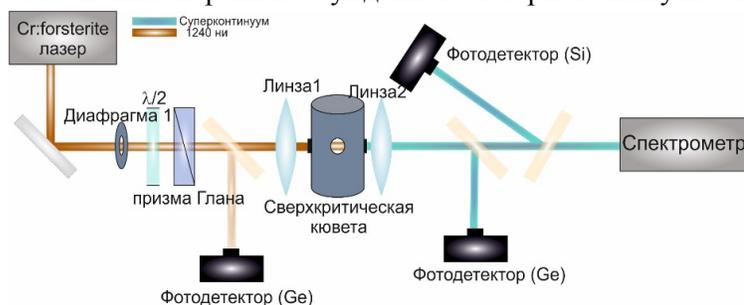


Рис. 5. Экспериментальная схема для исследования спектра суперконтинуума.

Кроме регистрации спектра прошедшего излучения, также необходимо было регистрировать эффективность генерации суперконтинуума. Для этого использовались три фотодетектора с наборами полосовых фильтров. Кремниевый фотодетектор использовался для

регистрации энергии суперконтинуума в спектральной полосе 300-1100 нм, первый из германиевых фотодетекторов использовался для измерения энергии на длине волны 1240 ± 10 нм (выделялось диэлектрическим зеркалом), второй германиевый фотодетектор регистрировал энергию суперконтинуума в диапазоне длин волн от 1260 до 1800 нм.

В главе 3.2 производится сравнение эффективности генерации суперконтинуума в благородных газах: Хе и Аг. За счет почти на порядок большего нелинейного показателя преломления в ксеноне, спектр генерируемого суперконтинуума в нем много шире.

В главе 3.3 описывается влияние давления флюида (диоксида углерода или ксенона) на спектр генерируемого в режиме филаментации суперконтинуума. В газовой фазе, как в CO_2 , так и в Хе, нелинейный показатель преломления довольно низок (см. Главу 2); пиковая мощность в таком режиме чуть выше критической мощности самофокусировки (P_{cr}), а спектр лазерного импульса уширяется симметрично, в основном за счет фазовой самомодуляции (см. рис. 6). Значительный вклад других процессов, сопровождающих филаментацию, на модуляцию спектра можно наблюдать только при давлениях выше 30 атм. (для энергии импульса 40 мкДж), когда пиковая мощность лазерного импульса составляет около 2–5 P_{cr} , и в среде достигается режим монофиламентации (см. рис. 6). Разница между генерацией СК в Хе и CO_2 в режиме филаментации начинает проявляться только при давлениях выше 30 атм., поскольку

молекулярные колебания диоксида углерода начинают играть существенную роль в распространении лазерного импульса, а в спектре наблюдается компонента, вызванная ВКР (вынужденным комбинационным рассеянием), сдвинутая на 1388 см^{-1} . Инфракрасная часть спектра СК в CO_2 становится асимметричной из-за увеличения молекулярной части нелинейного показателя преломления, и происходит значительное преобразование энергии в красное крыло спектра СК. Филаментация сопровождается каскадными стоксовыми сдвигами на молекулярных колебаниях и сгенерированное красное крыло спектра лазерного импульса последовательно смещается с ростом давления в ИК диапазон (см. Рис. 6 (б)). Для Хе особенности генерации СК при различных давлениях существенно отличаются от наблюдаемых в CO_2 . Из-за атомарной структуры Хе, в нем отсутствует молекулярный вклад в нелинейный показатель преломления. Это приводит к тому, что спектр СК в Хе является квазисимметричным.

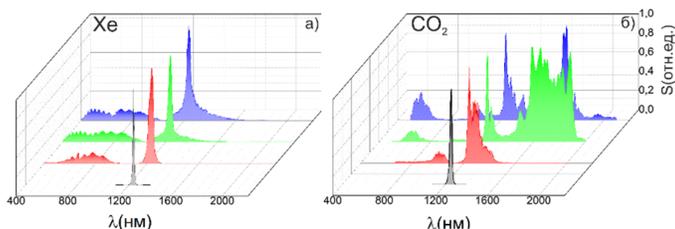


Рис. 6. Зависимость наблюдаемых в дальней зоне спектров в ксеноне (а) и диоксиде углерода (б). Энергия лазерного импульса 40мкДж, диаметр лазерного пучка 3мм.

имеется изолированное крыло, которое, однако имеет разную механизм генерации. В CO_2 видимая часть спектра СК когерентно излучению на фундаментальной частоте (дает сигнал суммарной гармонике в нелинейном кристалле), в то время как в Хе такого процесса не происходит. В диоксиде углерода широкий провал между основным спектром суперконтинуума и его крылом в видимом диапазоне, вероятно, является результатом деструктивной интерференции между компонентами СК [2].

В главе 3.4 приводится более подробное описание структуры ИК крыла суперконтинуума, генерируемого в диоксиде углерода. Наиболее широкий (и интенсивный) спектр СК в ИК диапазоне наблюдается при давлении в 66 атм., что соответствует максимальному нелинейному показателю преломления в субкритической области давлений. В окрестности критической точки, закономерно (за счет относительного низкого n_2 и высоких флуктуаций) генерации СК в этом диапазоне практически не происходит. В СКФ спектр СК имеет вид относительно узкого ($\sim 150\text{ нм}$) пика, ширина которого уменьшается с ростом давления, а положение центра смещается в сторону увеличения длины волны. Так как в ксеноне ИК крыло отсутствует, то логично предположить, что это результат проявления молекулярной структуры диоксида углерода. Однако, высокая эффективность процесса ($>50\%$), дает возможность предположить, что это результат влияния ВКР либо на молекулярных колебаниях, либо на колебаниях молекул в кластерах - за счет наличия большего числа разнообразных кластеров их спектр

Дальнейшее увеличение давления ведет к тому, что нелинейный показатель преломления Хе и CO_2 становится сравнимым со значениями, характерными для твердотельной среды. Спектр СК в CO_2 в субкритической области ($p \sim 60\text{ бар}$) испытывает сильное красное смещение из-за наличия молекулярной части нелинейного показателя преломления. Как в атомарных, так и в молекулярных газах в видимой части спектра СК

колебаний должен быть уширен. Косвенно это подтверждает изменение формы пика в ИК спектре с ростом давления.

В главе 3.5 приводится зависимость эффективности генерации КАРС сигнала на Ферми диаде. За счет наличия широкого спектра суперконтинуума в окрестности 1240 нм при фемтосекундной филаментации в диоксиде углерода становится возможным возбуждения молекулярных колебаний, в том числе и когерентным образом. В случае более острой фокусировки ($f=10\text{см}$) и больших лазерных энергий ($>100\text{мкДж}$) в видимом диапазоне длин волн (400-460 нм) были зарегистрированы два пика, положения которых изменялось с ростом давления, амплитуда которых квадратично зависела от энергии лазерного импульса. Появление пиков может быть связано с четырехволновым смещением ($\omega_{as}=\omega_{sc}-\omega_1+\omega_{sc2}$), когда квант из суперконтинуума и квант основного излучения участвует в возбуждении молекулярного колебания, а еще один квант суперконтинуума (более высокоэнергетичный) выступает в качестве пробного (схема КАРС). Как хорошо известно, в диоксиде углерода имеется Ферми диада ($\nu_1/2\nu_2$) с частотами 1388 см^{-1} и 1285 см^{-1} . Которые в результате четырехволнового смещения в диапазоне длин волн 410-450 (в зависимости от давления) давали антистоксовый сигнал.

В главе 3.6 приведена зависимость энергии суперконтинуума, генерируемого в диоксиде углерода от давления. Показано, что наиболее эффективная генерация СК достигается в CO_2 при давлении ~ 65 атм. благодаря значительному увеличению n_2 при давлении, близкому к критическим. В окрестности критического давления эффективность генерации суперконтинуума резко падает за счет резкого возрастания флуктуаций при приближении к критическому давлению и резкому уменьшению нелинейного показателя преломления за счет уменьшения числа кластеров в окрестности критической точки. С ростом давления достигается второй максимум энергии суперконтинуума – он находится на линии Видома, где кластеризация максимальна.

В главе 3.7 описываются особенности генерации суперконтинуума в ксеноне в режиме монофиламентации. Наибольшая эффективность генерации суперконтинуума достигается в диапазоне докритических давлений ($\sim 0,8-0,9 p_{cr}$), но широчайший СК наблюдается в сверхкритическом состоянии Хе. Проведенные измерения показали, что порядка 60% энергии лазерного импульса может быть передано в суперконтинуум. Как и в случае диоксида углерода в зависимости эффективности генерации СК от энергии присутствует экстремумы соответствующими $0,9p_{cr}$, сверхкритическому давлению и линии Видома. Однако, за счет того, что кластеризация в ксеноне гораздо менее ярко выражена (по сравнению с диоксидом углерода), пик, соответствующий линии Видома выражен слабо.

В главе 3.8 описано влияние структуры вещества на спектр суперконтинуума, генерируемого в режиме монофиламентации. Показано, что фазовые переходы в зоне критического давления и в окрестности линии Видома приводят к образованию двух областей, в которых происходит наиболее эффективная генерация суперконтинуума (см. Рис.7). А именно, область субкритических давлений ($p\sim 0,9p_{cr}$) и окрестность линии Видома рост нелинейного показателя с давлением должен приводить к увеличению эффективности генерации суперконтинуума. Однако, в окрестности критической точки или линии Видома флуктуации резко возрастают, что деструктивно влияет на процесс фемтосекундной филаментации [2]. В результате, в окрестности критической точки, флуктуации плотности резко уменьшают эффективность генерации суперконтинуума.

Дальнейшее увеличение нелинейного показателя преломления в окрестности линии Видома приводит к восстановлению эффективной генерации суперконтинуума. Однако, после прохождения локального максимума в зависимости n_2 от давления (за счет по-прежнему практически неизменному уровню флуктуации и слабо зависящему от давления n_2) энергоэффективность генерации суперконтинуума стабилизируется.

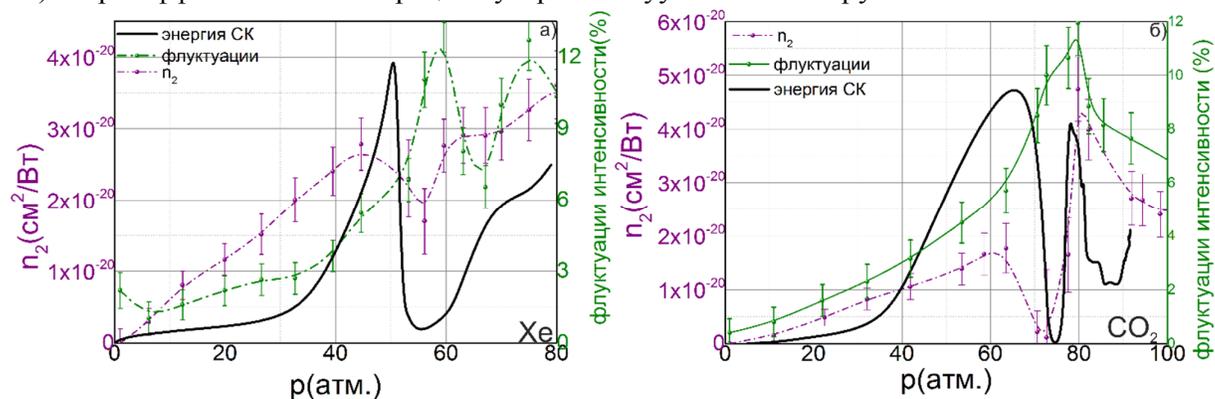


Рис.7. Зависимость энергии СК в ИК части спектра (1260-1800нм) от давления – сплошная черная линия в ксеноне (а) и диоксиде углерода (б). Зависимость нелинейного показателя преломления от давления – зеленая линия. Зависимость флуктуаций интенсивности от давления – фиолетовая штрихпунктирная линия.

В главе 3.8 приводится новый метод увеличения эффективности генерации суперконтинуума в средах с синтезированной нелинейностью, которые получаются за счет смешения атомарного (ксенон) и молекулярного (диоксид углерода) газов. Такие среды сочетают высокий нелинейный показатель преломления ксенона с высокой молекулярной частью нелинейного показателя преломления диоксида углерода. В результате ширина спектра суперконтинуума увеличивается.

В главе 3.9 описывается лазерный эффект, возникающий в ксеноне, находящемся при высоком давлении (в том числе и в СКФ) в режиме фемтосекундной филаментации, который может управляться давлением и энергией лазерного импульса. Показывается, что максимум индуцированной филаментом усиленной спонтанной эмиссии достигается на линии 466нм с погонным коэффициентом усиления 0.5см^{-1} . Расходимость эмиссионного излучения составляет порядка 15мрад, время жизни $\sim 8\text{нс}$. Данное явление аналогично недавно зарегистрированному эффекту усиленной спонтанной эмиссии, которая проявляется в режиме фемтосекундной филаментации в Ar при давлении около 9атм. [7].

Четвертая глава посвящена исследованию самокомпрессии фемтосекундных лазерных импульсов в плотных благородных газах (Xe, Ar) в режиме филаментации. Также в рамках данной главы обсуждается оптимизация рабочих параметров среды для достижения максимально эффективной самокомпрессии.

В главе 4.1 приводится описание экспериментальной установки для изучения процессов самокомпрессии в плотных благородных газах. По сравнению с экспериментальной схемой, описанной в главе 3.1, установка дополнена схема оптического стробирования с разрешением по частоте («frequency resolved optical gating (FROG)»), см. Рис.8. Временной профиль импульса измерялись самодельной SH FROG (ширина полосы кристалла поддерживает измерения импульсов ~ 80 фс). Также небольшое количество энергии было преобразовано во вторую гармонику (ВГ) в

кристалле ВВО. Энергия ВГ измерялась Si-фотоприемником (Thorlabs PDA100), а входная и выходная энергия основной гармоники контролировалась Ge-фотоприемником (Thorlabs PDA50B). Диаметр выходного пучка регулировался с помощью Диафрагмы.

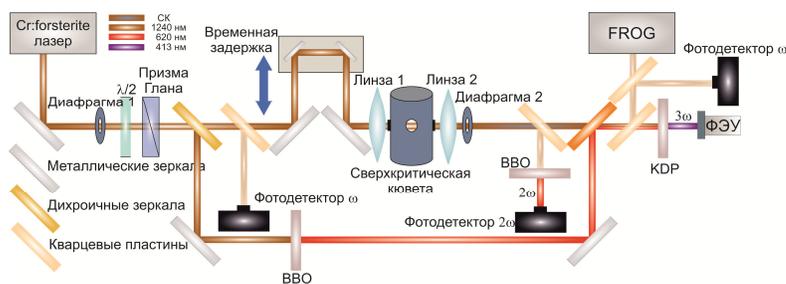


Рис. 8. Экспериментальная схема для исследования спектра суперконтинуума.

Входной пучок был разделен делителем пучка на два канала с соотношением 30:70. Частота реплики (во втором канале) была удвоена в кристалле ВВО и смешана с основным импульсом в кристалле KDP, что дало сигнал суммарной частоты (СЧ) на длине волны 413 нм,

который был измерен с помощью ФЭУ (Hamamatsu). Оптический путь между каналами (увеличение давления газа увеличивает оптический путь в первом канале) изменялся с помощью пары моторизованных зеркал.

В главе 4.1 приводится зависимость длительности фемтосекундного лазерного импульса, распространяющегося в плотном ксеноне в режиме монофиламентации, от давления при фиксированной энергии 40 мкДж. Импульс имеет наименьшую длительность 75 фс (по полувысоте) при давлении ксенона 23 бар. Дальнейшее увеличение давления приводит к увеличению длительности импульса, после чего лазерный импульс коллапсирует (было получено несколько перекрывающихся импульсов). При увеличении давления происходит разрушение монофиламента, что приводит к множественной филаментации и останавливает процесс самокомпрессии лазерного импульса.

В главе 4.2 приводится зависимость длительности фемтосекундного лазерного импульса, распространяющегося в плотном аргоне в режиме монофиламентации, от давления при фиксированной энергии 300 мкДж. Изначально (при 1 атм.) импульс является спектрально ограниченным, однако с ростом давления в нем появляется небольшой кубичный чирп. Однако, при этом длительность импульса существенным образом сокращается, достигая 100 фс. С увеличением давления или энергии в профиле лазерного импульса выделяются пред- и пост-импульсы. Данный процесс аналогичен механизму самокомпрессии, предложенному в [8]. В фокальной плоскости лазерный импульс расщепляется на два субимпульса за счет одновременного воздействия процессов самофокусировки и ионизации (задний фронт импульса, «чувствует» плазму, создаваемую на фронте переднего импульса, в результате возникает пост-импульс). В этом случае центральная часть импульса начинает распространяться в режиме самоканалирования, а субимпульсы дефокусируются. Этот механизм дополнительно подтверждается и тем фактом, что в конической эмиссии наблюдаются две составляющие (слабо и сильно расходящаяся). Длительность импульса основного компонента составляет около половины начальной длительности импульса [8]. При этом минимальная длительность импульса составляет 90 фс или около 40% от начальной длительности импульса. Верхний

уровень области эффективной самокомпрессии может быть определен по изолинии $pE = const$ (произведение давления на энергию лазерного импульса)

Этот член эквивалентен: $P/P_{cr} = const$ ($P_{cr} = 3.72\lambda_0^2 / 8\pi n_0 n_2$), где только n_2 является функцией давления. Тем самым, изолинии определяют переход в режим множественной филаментации. В экспериментальных условиях это происходит при $P/P_{cr} \sim 20$.

В главе 4.3 приводится зависимость длительности фемтосекундного лазерного импульса, распространяющегося в плотном ксеноне в режиме монофиламентации, от давления при фиксированной энергии 40 мкДж. Как и в случае самокомпрессии в аргоне, длительность прошедшего через кювету лазерного импульса была оценена с помощью методики FROG.

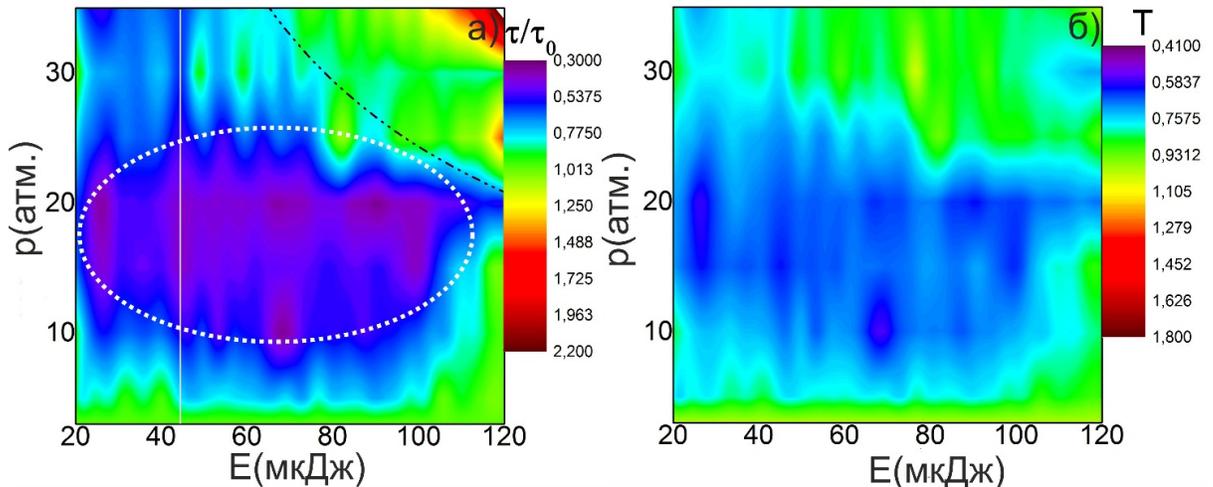


Рис. 9. «Тепловые» карты нормированной (на τ_0) длительности импульса (а) и пропускания (б) в Хе. Зеленые области (а, б) показывают отсутствие самокомпрессии и поглощения. Пунктирная линия показывает область максимальной самокомпрессии, пунктирная линия показывает изолинию $p \cdot E$.

Максимальное поглощение достигает 40% и сосредоточено в области 10 атм. $\langle p \rangle < 30$ атм. и $20 \text{ мкДж} < E < 80 \text{ мкДж}$ (см.Рис.9). Минимальная длительность импульса составляет около 75 фс, что соответствуют фактору самокомпрессии ~ 3.5 .

ВЫВОДЫ

1. Впервые измерен нелинейный показатель преломления Ar, Хе, CO₂ в широком диапазоне давлений, включая сверхкритическое состояние вещества.
2. Экспериментально и с помощью численного моделирования установлено, что кластеризация сверхкритического флюида вносит существенный (до 40% вклад в нелинейный показатель преломления диоксида углерода), что ведет к аномальному поведению нелинейного показателя преломления в окрестности линии Видома.
3. Установлено, что генерация суперконтинуума в ксеноне и диоксиде углерода в режиме монофиламентации зависит от структуры вещества, причем:
 - а. Максимальная энергетическая эффективность генерации суперконтинуума в ксеноне и диоксиде углерода достигается при субкритическом давлении ($\sim 0.9P_{cr}$), соответствующему локальному максимуму нелинейного показателя преломления;

- b. в окрестности критического давления из-за сильных флуктуаций (~15%) плотности, а также уменьшении роли процесса кластеризации генерация суперконтинуума подавляется;
 - c. в условиях сверхкритического состояния вещества в окрестности линии Видома, достигается локальный максимум эффективности генерации суперконтинуума, вызванным ростом n_2 за счет кластеризации среды, что и обеспечивает реализацию максимальной ширины суперконтинуума
4. Обнаружено, что суперконтинуум, генерируемый в ксеноне (при давлении 50 атм.) в режиме фемтосекундной монофиламентации, может достигать ширины в 3.5 октавы (от 350 до 2500нм) с эффективностью порядка 60%.
 5. Продемонстрировано, что в диоксиде углерода (при давлении 60 атм.) происходит эффективное (порядка 65%) преобразованию энергии в красное крыло суперконтинуума.
 6. Обнаружено, что при фемтосекундной монофиламентации в плотном (5-80 атм.) ксеноне имеет место лазерный эффект (усиленная спонтанная эмиссия), спектр линий которого может управляться давлением и энергией лазерного импульса. Наибольшая эффективность генерации характерна для линии 466 нм (около 0,5%, погонный коэффициент усиления 0.5см^{-1} при энергии накачки 200мкДж).
 7. Обнаружено явление самокомпрессии фс лазерного импульса в режиме филаментации в благородных газах (аргон, ксенон) при высоких давлениях (диапазон 10-50 атм.). Путем подстройки давления газа и энергии лазерного импульса можно добиться точной подстройки эффекта самокомпрессии. Продемонстрировано, что фемтосекундный лазерный импульс (энергия порядка 40мкДж, длительность порядка 230 фс) может сокращаться в Хе в режиме филаментации в 3.5 раза с энергетической эффективностью порядка 60%.

Список работ, опубликованных по теме диссертации

Публикации по теме диссертации в журналах Scopus и WoS

- [1] Generation of an adjustable multi-octave supercontinuum under near-IR filamentation in gaseous, supercritical, and liquid carbon dioxide/ **Evgenii Mareev**, Viktor Bagratashvili, Nikita Minaev, Fedor Potemkin, Vyacheslav Gordienko// Optics Letters. 2016. – Vol. 41. –No 24 – P. 5760-5763. IF 3.589
- [2] Supercontinuum generation under filamentation driven by intense femtosecond pulses in supercritical xenon and carbon dioxide/ Bagratashvili V.N., Gordienko V.M., **Mareev E.I.**, Minaev N.V., Ragulskaya A.V., Potemkin F.V. // Russian Journal of Physical Chemistry B. – 2016. – Vol. 10. –No 8 - P. 1211-1215. IF 0.58
- [3] Femtosecond supercontinuum generation and superfilamentation in liquids and supercritical fluids/ Gordienko V.M., **Mareev E.I.**, Minaev N.V., Potemkin F.V., Ragulskaya A.V., Bagratashvili V.N. // IEEE Xplore, – 2016 – P. R8-19. IF 0.0186
- [4] Anomalous behavior of nonlinear refractive indexes of CO₂ and Xe in supercritical states / **Evgenii Mareev**, Victor Aleshkevich, Fedor Potemkin, Victor Bagratashvili, Nikita Minaev, Vyacheslav Gordienko // Optics Express. 2018. – Vol. 26 –No 10– P. 13229–13238. IF 3.356
- [5] Controlled nonlinearity and lasing effect under femtosecond filamentation in dense and supercritical Xe/ **E.I. Mareev**, F.V. Potemkin, E.A. Migal, N.V. Minaev, V.M. Gordienko // Laser Physics Letters – 2019. – Vol. 16 – P. 035401 IF 2.240

Публикации по теме диссертации в журналах RSCI а также

в Перечне изданий МГУ

[6] Генерация суперконтинуума в режиме филаментации мощными фемтосекундными лазерными импульсами в сверхкритическом ксеноне и диоксиде углерода / Баграташвили В.Н., Гордиенко В.М., **Мареев Е.И.**, Минаев Н.В., Рагульская А.В., Потемкин Ф.В. // Сверхкритические флюиды: теория и практика – 2016. – Том. 10. – №4. – Стр. 67–72. Импакт-фактор РИНЦ 0.597

[7] Молекулярная рефракция и нелинейный показатель преломления сверхкритического диоксида углерода в условиях кластеризации/ **Е.И. Мареев**, В.А. Алешкевич, Ф.В. Потемкин, Н.В. Минаев, В.М. Гордиенко // Сверхкритические флюиды: теория и практика – 2019. – Том. 14. – №1. – Стр. 88–93. Импакт-фактор РИНЦ 0.597

В других изданиях:

[8] Генерация суперконтинуума фемтосекундными лазерными импульсами при филаментации в сверхкритическом CO₂ в окрестности линии Видома/ **Мареев Е.И.**, Алешкевич В.А., Потемкин Ф.В., Минаев Н.В., Гордиенко В.М. Backward terahertz emission from two-color laser induced plasma spark // V Международная конференция "Лазерные, плазменные исследования и технологии" ЛаПлаз-2019: Сборник научных трудов, – 2019. –С. 354-355.

[9] Nonlinear optical properties of CO₂ and Xe in sub- and supercritical states: anomalous behavior of nonlinear refraction index and supercontinuum generation/ **Mareev E.I.**, Aleshkevich V.A., Potemkin F.V., Bagratashvili V.N., Minaev N.V., Gordienko V.M. // International Conference on Ultrafast Optical Science (UltrafastLight-2018) – 2018. –С. 161-162.

[10] Femtosecond supercontinuum generation and superfilamentation in liquids and supercritical fluids / Gordienko V.M., **Mareev E.I.**, Minaev N.V., Potemkin F.V., Ragulskaya A.V., Bagratashvili V.N. // 17th International Conference «Laser Optics 2016» – 2016. –С. 432-432.

[11] Генерация суперконтинуум в режиме филаментации мощными фемтосекундными лазерными импульсами в сверхкритическом ксеноне и диоксиде углерода/ Рагульская А.В., **Мареев Е.И.**, Потёмкин Ф.В., Гордиенко В.М., Минаев Н.В., Баграташвили // 5 международной молодёжной научной школы-конференции «Современные проблемы физики и технологий» – 2016. –С. 327-329

[12] Генерация суперконтинуум в режиме филаментации мощными фемтосекундными лазерными импульсами в сверхкритическом ксеноне и диоксиде углерода / Рагульская А.В., **Мареев Е.И.** // ЛОМОНОСОВ 2016. XXIII международная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных – 2016. –том 2 - С. 327-329

Список цитированной литературы

1. Ахманов С.А., Высолюх В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. Москва: Наука, 1988.
2. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // Phys. Rep. 2007. Vol. 441, № 2–4. P. 47–189.
3. Dubietis A. et al. Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media (Invited Review) // Lith. J. Phys. 2017. Vol. 57 (3), № 3. P. 113.
4. Simeoni G.G. et al. The Widom line as the crossover between liquid-like and gas-like behaviour in supercritical fluids // Nat. Phys. Nature Publishing Group, 2010. Vol. 6, № 7. P. 503–507.
5. Chekalin S. V., Kandidov V.P. From self-focusing light beams to femtosecond laser pulse

- filamentation // Uspekhi Fiz. Nauk. 2013. Vol. 183, № 2. P. 133–152.
6. Potoff J.J., Siepmann J.I. Vapor-liquid equilibria of mixtures containing alkanes, carbon dioxide, and nitrogen // AIChE J. 2001. Vol. 47, № 7. P. 1676–1682.
 7. Matthews M. et al. Amplification of intense light fields by nearly free electrons // Nat. Phys. Springer US, 2018. Vol. 14, № 7. P. 695–700.
 8. Hatayama M. et al. Spatiotemporal dynamics of high-intensity femtosecond laser pulses propagating in argon // J. Opt. Soc. Am. B. 2003. Vol. 20, № 3. P. 603.