

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ  
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ  
«МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ имени  
М.В.ЛОМОНОСОВА»

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

КАФЕДРА ОБЩЕЙ ФИЗИКИ

БАКАЛАВРСКАЯ РАБОТА

**«Поглощение высокоинтенсивных фемтосекундных импульсов  
инфракрасного диапазона при возбуждении вращательных и  
колебательных уровней молекул воздуха»**

Выполнил студент  
405 группы  
Ургапов Дмитрий Александрович

\_\_\_\_\_ подпись студента  
Научный руководитель  
д.ф.-м.н. проф. Косарева О. Г.

\_\_\_\_\_ подпись научного руководителя

Допущен к защите

Зав. кафедрой д.ф.-м.н. проф. Салецкий А.М.

\_\_\_\_\_ подпись зав. кафедрой

Москва 2018

## **Аннотация**

В дипломной работе проведено численное моделирование филаментации в воздухе фемтосекундного излучения с центральными длинами волн в диапазонах 1.1 – 1.6 мкм и 2.2 – 3.2 мкм, то есть в окрестностях полос поглощения атмосферы в среднем инфракрасном диапазоне 1.35 и 2.7 мкм. Помимо общепринятых при моделировании филаментации факторов, учтен резонансный линейный отклик водяного пара и углекислого газа, а также инерционный нелинейный отклик молекулярных азота и кислорода. Показано, что нелинейное окно прозрачности атмосферы сужено относительно линейного на 100 – 200 нм в высокочастотную относительно полосы поглощения область вследствие перекрытия изолированного низкочастотного крыла в суперконтинууме филамента с резонансными линиями — нелинейно усиленного линейного поглощения. При филаментации в низкочастотном крыле полосы поглощения совместное влияние линейного поглощения и генерации суперконтинуума не ведет к существенному росту потерь. Установлено, что унимодальный импульс формируется при филаментации импульса только с центральной длиной волны в полосе поглощения, вне полосы поглощения происходит его распад на субимпульсы.

## **Содержание**

<b>Введение</b>	<b>3</b>
<b>Глава 1. Модель распространения лазерного излучения</b>	<b>9</b>
<b>Глава 2. Модель отклика, обусловленного ориентационной нелинейностью двухатомных молекул азота и кислорода</b>	<b>11</b>
<b>Глава 3. Постановка задачи и выбор начальных условий</b>	<b>14</b>
<b>Глава 4. Энергетические характеристики филамента среднего инфракрасного диапазона вблизи линии поглощения</b>	<b>16</b>
<b>Глава 5. Временные формы импульса при филаментации излучения среднего инфракрасного диапазона</b>	<b>23</b>
<b>Заключение</b>	<b>25</b>
<b>Литература</b>	<b>26</b>

## Введение

Явление филаментации было известно с середины XX века, однако всплеск внимания к этому феномену произошёл в 1990-х годах, когда при распространении в воздухе мощных лазерных импульсов с центральной длиной волны 800 нм наблюдались длинные тонкие «нити» с высокой плотностью энергии [1]. Такая пространственно-временная локализация энергии сопряжена с формированием плазменных каналов, конической эмиссией, генерацией излучения суперконтинуума (с очень широким непрерывным когерентным спектром), а также усилением нелинейного оптического взаимодействия импульса со средой. Использование филаментации открывает новые возможности для использования лазерных технологий в атмосферной оптике [2]. Титан-сапфировые лазеры открывают широкий простор для экспериментов с филаментацией в ближнем инфракрасном диапазоне, для которого при типичной центральной длине волны  $\lambda_0 = 800$  нм филамент характеризуется интенсивностью порядка  $100 \text{ ТВт/см}^2$  и электронной плотностью около  $10^{16} \text{ см}^{-3}$  [3]. Как пример, в работе [4] наблюдалось явление конической эмиссии, являющееся одним из следствий взаимодействия лазерного излучения со средой. В работе [5] было впервые проведено численное моделирование филаментации и в сопоставлении с экспериментом обобщена модель движущихся фокусов [6].

Кроме ближнего инфракрасного диапазона, явление филаментации обнаруживает себя и в ультрафиолетовом диапазоне. Так, в работе [7] наблюдалось распространение излучения от эксимерного лазера на KrF с накачкой третьей гармоникой TiSa с центральными длинами волн около 248 нм и формирование филаментов. В различных режимах импульсы имели энергию менее 10 и 15 мДж при длительностях 450 фс и 5 пс. Это исследование показало, что в ультрафиолетовом диапазоне потери энергии, вызванные многофотонной ионизацией, выше, чем в инфракрасном диапазоне, и следовательно, эффект формирования плазмы более заметен [7].

В работе [8] экспериментально исследована множественная филаментация на атмосферной трассе субпикосекундного излучения с центральной длиной волны порядка 248 нм и мощностью порядка 1000 критических мощностей самофокусировки; область непрерывности плазменного канала составляла более 15 м.

Филаментация в среднем инфракрасном диапазоне изучена не настолько подробно, как в оптическом диапазоне. Одной из причин этого является пропорциональность критической мощности самофокусировки квадрату длины волны [9, 10]. Такая зависимость затрудняет экспериментальные исследования, поскольку требования к мощностным характеристикам лазерных систем существенно повышаются. Несмотря на это, на данный момент выявлены некоторые уникальные особенности филаментации в среднем инфракрасном диапазоне [11].

Так, в экспериментах [11] при распространении фемтосекундного излучения с центральной длиной волны 3.9 мкм, пиковой мощностью 200 ГВт, входной энергией 20 мДж и длительностью порядка 100 фс наблюдалась генерация гармоник нечётного порядка вплоть до девятой. Усилению данного явления способствуют слабая дисперсия и, следовательно, большая (до 1 м для генерации третьей гармоники) длина фазового синхронизма. В то же время, при филаментации в ближнем инфракрасном диапазоне гармоники порядков выше третьего не наблюдаются, поскольку соответствующие им частоты лежат за пределами окна атмосферной прозрачности [12].

В работе [13] проводилась генерация излучения с центральной длиной волны 2.1 мкм, энергией 1.7 мДж, длительностью 33 фс и мощностью 52 ГВт при критической 45 ГВт с использованием технологии оптического параметрического усиления чирпированных импульсов. При их распространении в воздухе вблизи атмосферной линии CO<sub>2</sub> также наблюдалась генерация гармоник нечётного порядка вплоть до девятой.

В работе [14] экспериментально и теоретически исследовалась филаментация в воздухе фемтосекундного лазерного излучения хром-форстеритового лазера на длине волны 1.24 мкм. Средняя мощность излучения составила 200 мВт, энергия в импульсе составляла до 5.7 мДж. Было показано, что хром-форстеритовый лазер потенциально имеет некоторые экспериментальные преимущества по сравнению с титан-сапфировым: филамент в излучении хром-форстеритового лазера образуется на большем расстоянии и содержит в себе большее количество энергии.

Помимо генерации гармоник, есть и другие особенности филаментации в среднем инфракрасном диапазоне. Одна из них состоит в формировании «световых пульс» [15] — световых сгустков с высокой пространственно-временной локализацией светового поля. Данное явление наблюдается в условиях аномальной дисперсии среды. Ранее формирование световых пульс наблюдалось в конденсированных средах, где существует протяжённые области аномальной дисперсии. Позднее это явление было предсказано для воздуха [16].

В численном моделировании показано, что возникновение световых пульс обусловлено запаздывающей керровской и плазменной нелинейностями, дефокусировкой в лазерной плазме, самоограничением импульса и образованием ударной волны на его хвосте. В работе [17] одновременно рассматривалось формирование световых пульс в плавленом кварце и во влажном воздухе. Показано, что два эти процесса имеют сходный физический механизм. Для световой пули во влажном воздухе, при входной интенсивности  $0.25 \text{ ТВт/см}^2$ , пиковой мощности 10 критических мощностей самофокусировки и энергии 100 мДж, пиковая интенсивность достигала значений  $50 \text{ ТВт/см}^2$ , в то время как плотность потока энергии в поперечном сечении была выше  $1 \text{ Дж/см}^2$ . При этом спектр световой пули был смещён как целое в красную область относительно спектра входного излучения [17]. Другие работы посвящены также исследованию световых пульс, которые обозначены как пространственно-временные солитоноподобные образования

[18, 19]. Следует оговорить, что в случае с воздухом речь в этих работах идёт о численных и теоретических предсказаниях, а не об экспериментальных фактах.

При филаментации импульсов неизбежно происходит поглощение энергии, вызванное различными линейными и нелинейными процессами. Это явление активно исследовалось на примере ближнего инфракрасного диапазона [20]. В экспериментальной работе исследовалось поглощение энергии при распространении фемтосекундных импульсов с центральной длиной волны излучения  $\sim 795$  нм и интенсивностями  $0.1 - 1$  ТВт/см<sup>2</sup>, для которых обусловленное ионизацией поглощение ещё мало. Было показано, что нелинейное поглощение значительно превышает линейное поглощение соответствующих наносекундных импульсов при такой же входной энергии. Это дало основания утверждать, что при таких интенсивностях основным механизмом поглощения являлось нелинейное возбуждение вращательных уровней молекул воздуха. В работе [21], наряду с возбуждением вращательных уровней, наблюдался обратный эффект снятия возбуждения, обусловленный столкновительными процессами, который способствовал нагреву среды. Для описания этих явлений использовалась модель, основанная на матрице плотности. Установлено, что для характерных значений интенсивности  $50$  ТВт/см<sup>2</sup> вращательный вклад в энергетические потери превалирует над ионизационным и плазменным. В то же время, для атомарных газов, последней особенности не наблюдалось.

Настоящая работа посвящена поглощению в среднем инфракрасном диапазоне. В работе [22] представлено теоретическое исследование этого вопроса. Исследовалось поглощение на специальной спектрально-селективной атмосферной трассе для различных длин волн –  $10.6$  мкм,  $3.9$  мкм и  $0.8$  мкм. Было обнаружено, что наиболее длинноволновое излучение сохраняет наиболее широкий спектральный состав в условиях сильного поглощения в атмосфере [22]. В среднем инфракрасном диапазоне, помимо ионизационного и рамановского механизмов поглощения, имеет место

механизм нелинейно усиленного линейного поглощения [23]. Он состоит в том, что уширение спектра импульса при филаментации увеличивает его перекрытие с линиями поглощения компонент атмосферы — в основном,  $\text{CO}_2$  и  $\text{H}_2\text{O}$ . В результате, происходят дополнительные потери энергии, имеющие линейный характер. Численное моделирование [23] подтвердило существование и значимость этого эффекта при рассмотрении филаментационных задач в атмосфере. Так, потери энергии вследствие нелинейно усиленного линейного поглощения составили 2.5 мДж при входном значении 80 мДж, то есть, порядка 3% (для сравнения, потери, связанные с туннельной ионизацией среды, были в два раза меньше, около 1.3%) [23]. В работе [13] наблюдалось формирование характерных «провалов» в спектре, связанное с линией поглощения углекислого газа в окрестности 2.7 мкм. В статье [24] экспериментально исследовалась филаментация импульсов с центральной длиной волны 3.9 мкм и длительностью 90 фс. Поглощение измерялось при распространении в чистом кислороде, чистом азоте и в атмосферном воздухе. Величина потерь в воздухе (~36%) почти в полтора раза превысила суммарные в чистых газах (~8% в азоте и ~13% в кислороде). Было показано, что основным механизмом потерь энергии в таких условиях является поглощение из-за рамановского смещения спектра в область низких частот и перекрытия его с атмосферной линией  $\text{CO}_2$  (приблизительно 4.3 мкм), то есть нелинейно усиленное линейное поглощение. Таким образом, было экспериментально подтверждено наличие предсказанного эффекта и его значимость.

Таким образом, можно выделить три основных механизма поглощения энергии при филаментации фемтосекундного излучения в среднем инфракрасном диапазоне: туннельная ионизация, возбуждение вращательных уровней и нелинейно усиленное линейное поглощение. В силу этого выбор оптимальной центральной длины волны генерации, при которой потери были бы наименьшими, нетривиален: в различных условиях различные механизмы могут вносить больший или меньший вклад, практически не оказывая

влияния на импульс или, наоборот, полностью подавлять распространение. Это существенно усложняет проектирование фемтосекундных лазерных систем для задач атмосферной оптики, в том числе и систем с параметрическими усилителями. Хотя в мире и существуют системы с перестройкой центральной длины волны излучения, как, например, оптический параметрический усилитель суперфлуоресценции (TOPAS—traveling-wave optical parametric amplifier of superfluorescence), способный генерировать импульсы на центральных длинах волн в диапазоне 1.2 – 2.4 мкм, при энергиях 90 – 220 мкДж [25], системы высокой пиковой мощности ~ 1 ТВт по-прежнему очень дороги и созданы в единичных количествах. Исследование вопроса оптимальной длины волны генерации для того или иного случая могло бы дать практические рекомендации для экспериментальных работ, а также найти применение в задачах доставки лазерного излучения высокой пиковой мощности на большие расстояния и в задачах зондирования.

Целью настоящей работы является исследование сужения окна прозрачности атмосферы для мощного фемтосекундного лазерного излучения среднего инфракрасного диапазона вследствие филаментации.

## Глава 1. Модель распространения лазерного излучения

Рассмотрим подробнее модель распространения лазерного излучения в атмосфере, которую мы использовали при моделировании. Пусть  $r$  — поперечная координата,  $t$  — время,  $z$  — координата распространения и  $E(r, t, z)$  — напряжённость электрического поля. Запишем преобразование Фурье для  $E(r, t, z)$ :

$$E(r, t, z) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(r, \omega, z) e^{i\omega t} d\omega, \quad (1.1)$$

где  $\omega$  — частота. Уравнение эволюции для спектральных компонент  $\tilde{E}(r, \omega, z)$  имеет вид [23]:

$$\frac{\partial \tilde{E}(r, \omega, z)}{\partial z} = -i \left( k(\omega) + \frac{\Delta_{\perp}}{2k(\omega)} \right) \tilde{E}(r, \omega, z) - \frac{2\pi}{c} \tilde{J}(r, \omega, z), \quad (1.2)$$

где  $\Delta_{\perp} = r^{-1} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial}{\partial r} \right)$  — поперечный лапласиан,  $k(\omega) = \omega n(\omega)/c$  — волновое число,  $c$  — скорость света, а показатель преломления  $n(\omega) = n'(\omega) + in''(\omega)$  определяется соотношениями Крамерса-Кронига и квадратичной зависимостью в оптическом окне:

$$n'(\omega) = 1 + A + B\omega^2 + \mathcal{F}[\text{sgn}(t)\mathcal{F}^{-1}[in''(\omega)]]. \quad (1.3)$$

Здесь  $A = 1.993 \times 10^{-4}$ ,  $B = 5.58 \times 10^{-7} \text{ фс}^2$ ,  $\mathcal{F}$  — оператор преобразования Фурье,  $n'(\omega)$  и  $n''(\omega)$  — действительная и мнимая части комплексного показателя преломления.

В формуле (1.2)  $J$  представляет собой нелинейный ток, выражение для которого имеет вид [26]:

$$J(t) = \frac{\partial P_K}{\partial t} + \frac{\partial P_{rot}}{\partial t} + J_{free} + J_{abs}. \quad (1.4)$$

Здесь  $P_K = \chi^{(3)} E^3$  — поляризация, связанная с мгновенной нелинейностью Керра ( $\chi^{(3)}$  — коэффициент мгновенной нелинейности Керра);  $J_{free}$  — ток свободных электронов, который определяется из дифференциального уравнения:  $\frac{\partial J_{free}(\tau)}{\partial \tau} = \frac{e^2}{m} N_e(\tau) E(\tau) - v_c J_{free}(\tau)$ , ( $e$  и  $m$  — электрический

заряд и масса электрона соответственно,  $\nu_c \approx 5 \text{ пс}^{-1}$  — частота столкновений свободных электронов с нейтральными молекулами);  $J_{abs}$  — ток, связанный с потерями на ионизацию среды:  $J_{abs}(\tau) = \frac{W_I}{E(\tau)} \frac{\partial N_e(\tau)}{\partial \tau}$  ( $W_I$  — потенциал ионизации,  $N_e(\tau)$  — концентрация свободных электронов, определяемая туннельной ионизацией в поле  $E(\tau)$  фемтосекундного импульса);  $P_{rot}$  описывает запаздывающую поляризацию, обусловленную возбуждением вращательных уровней молекул [27]. Методика расчета этой величины представлена в следующей главе.

Начальные условия для уравнения распространения выбраны в виде коллимированного гауссова импульса

$$E(r, t, z = 0) = E_0 \exp\left(-\frac{\tau^2}{2\tau_0^2} - \frac{r^2}{2a_0^2}\right) \cos\left(\frac{2\pi c t}{\lambda_0}\right)$$

с длительностью  $\tau_0$ , диаметром  $2a_0$ , центральной длиной волны  $\lambda_0$ ; амплитуда поля  $E_0$  определяется полной энергией импульса  $W_0$ . Выбор конкретных параметров подробно обсуждается в главе 3. Резонансный отклик описывается согласно [28].

## Глава 2. Модель отклика, обусловленного ориентационной нелинейностью двухатомных молекул азота и кислорода

Для адекватного описания фемтосекундной филаментации в воздухе импульсов ближнего и среднего ИК диапазона необходимо корректно учитывать нерезонансный нелинейный отклик вследствие нелинейного возбуждения вращательных переходов молекул. Поскольку при комнатной температуре возбуждено более 20 вращательных уровней молекул  $O_2$  и  $N_2$ , состояние системы нельзя считать чистым. Поэтому в общем виде эта задача определения ориентационной нелинейности сводится к квантово-механическому уравнению Лиувилля-фон Неймана [29] для матрицы плотности  $\hat{\rho}$ :

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}\hat{\rho}], \quad (4.1)$$

где  $\hbar$  — приведённая постоянная Планка. Гамильтониан определяется выражением  $\hat{H} = B l(l+1) - \Delta\alpha E^2(t) \cos^2 \theta$ , где  $B$  — вращательная постоянная,  $l$  — орбитальное квантовое число,  $\Delta\alpha$  — разность продольной и поперечной поляризуемостей,  $\theta$  — угол между вектором напряжённости поля и осью ориентации молекулы. Тогда нелинейная поляризация записывается в виде:

$$P_{rot} = N_0 \text{Tr}[\hat{\rho}\hat{d}], \quad (4.2)$$

где  $N_0$  — концентрация молекул воздуха,  $\hat{d}$  — оператор дипольного момента. Назовём формулы (4.1, 4.2) *Моделью 1*.

Мы провели расчёты на основе *Модели 1* для  $l = 120$  уровней по орбитальному квантовому числу и  $m = 40$  уровней по магнитному квантовому числу. Это потребовало существенных вычислительных затрат (около 12 часов на компьютере с процессором Intel Xeon E7-4870 2.4 GHz), однако расчёты на *Модели 1* основе дают наиболее точное описание отклика.

*Модель 2* основывается также на уравнениях (4.1, 4.2), однако предполагает применение к (4.1) теории возмущений [30]:

$$P_{rot} = E \frac{1}{2\pi} n_r \int_{-\infty}^t K(t-t') \langle E^2(t') \rangle dt', \quad (4.3)$$

где  $K(t) = \frac{\theta}{\hbar} \sum_l \{ n_l^0 [1 - \exp(-\hbar\omega_{l+2,l}/T)] \sin(\omega_{l+2,l}t) \}$  — ядро свертки, коэффициент  $n_r = \pi N_0 (\Delta\alpha)^2 / (15 T)$ ,  $T$  — температура в энергетических единицах,  $n_l^0 = \exp(-E_l/T)$  — начальная заселённость  $l$ -ого уровня ( $E_l$  — энергия  $l$ -ого уровня),  $\omega_{l+2,l}$  — частота перехода между уровнями  $l+2$  и  $l$ . Поскольку свертка (3.3) может быть вычислена на основе быстрого преобразования Фурье, она требует гораздо меньшего количества вычислительных ресурсов, однако пертурбативный подход налагает ограничение на плотность потока излучения, которое близко к порогу ионизации воздуха фемтосекундным излучением. Таким образом, априори неясно, применима ли эта модель к задачам филаментации.

*Модель 3* связывает функцию отклика с уравнением затухающего гармонического осциллятора [31]. Поляризация, обусловленная вращательным откликом  $P_{rot} = \Delta n E$ , где  $\Delta n$  — решение уравнения колебаний:

$$\frac{d^2 \Delta n}{dt^2} + \Gamma \frac{d \Delta n}{dt} + \Omega^2 \Delta n = \chi^{(3)} E^2(t) \quad (4.4)$$

с собственной частотой  $\Omega = 20.6 \text{ пс}^{-1}$  и декрементом  $\Gamma = 26 \text{ пс}^{-1}$ . Очевидно, *Модель 3* является наименее ресурсозатратной.

С целью выявления оптимальной модели вращательного отклика, мы провели сравнение трёх указанных подходов, численно рассчитав временную зависимость вращательного вклада в показатель преломления в рамках каждого из них по отдельности для лазерного импульса с пиковой интенсивностью  $50 \text{ ТВт/см}^2$ . График этой зависимости представлен на рис. 1. Результаты, полученные в рамках непертурбативной модели, основанной на непосредственном численном решении уравнения Лиувилля-фон Неймана для матрицы плотности, априори являются наиболее точными и использовались нами в качестве эталона. Как можно убедиться, кривые, полученные в рамках непертурбативного и пертурбативного подходов,

практически совпадают. В то же время, кривая, полученная в приближении затухающего гармонического осциллятора, заметно отличается. Тогда как непertурбативная и пертурбативная модели хорошо согласуются по точности, последняя требует гораздо меньше ресурсов для реализации. В силу этого, есть основания считать модель, основанную на применении теории возмущений к уравнению для матрицы плотности, наиболее предпочтительной моделью для описания нерезонансного возбуждения вращательных переходов молекулярных газов при моделировании филаментации, если поглощение энергии существенно.

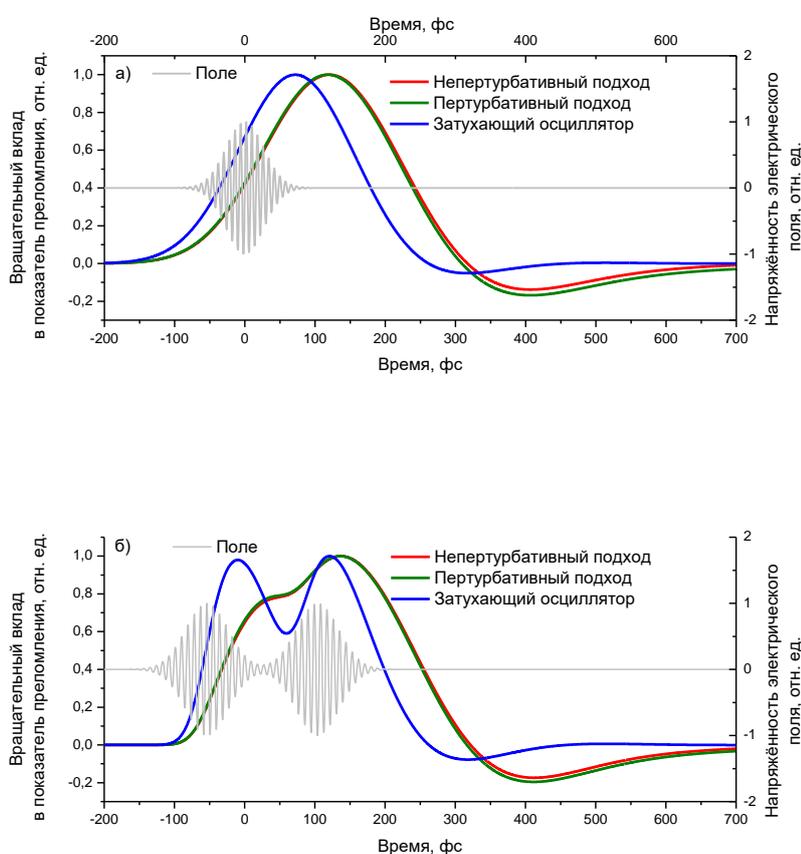


Рис. 1. Зависимость вращательного вклада в показатель преломления от времени для трёх рассматриваемых моделей: *Модели 1* (непертурбативный подход, красная кривая), *Модели 2* (пертурбативный подход, оливковая кривая) и *Модели 3* (затухающий осциллятор, синяя кривая) для различных форм импульса: гауссов импульс (сверху), суперпозиция двух гауссовых импульсов при задержке 70 фс (снизу)

### Глава 3. Постановка задачи и выбор начальных условий

В спектре поглощения атмосферного воздуха в диапазоне 1 – 4 мкм доминирует смешанная полоса водяного пара и углекислого газа на 2.7 мкм (длина поглощения около 10 м), а также полосы водяного пара на 1.3 и 1.8 мкм (длина поглощения более 100 м при нормальных условиях). В настоящей работе для исследования энергетических потерь при филаментации вблизи линий поглощения были проведены две серии численных расчётов. Для наглядности сравнения энергия, длительность и диаметр пучка везде были подобраны таким образом, что пиковая мощность излучения составляла около четырёх критических, и одиночный филамент стабильно формировался на 10-метровой атмосферной трассе.

Первая серия расчётов была проведена в диапазоне центральных длин волн 2.2 – 3.2 мкм. Была выбрана энергия импульса 34 мДж, длительность 96 фс по уровню  $1/e$ , диаметр пучка 4 мм по уровню  $1/e$ ; зависимость коэффициента поглощения от частоты [31] соответствовала реалистичным 0.04%  $\text{CO}_2$  и 10% влажности при 20°C (заметим, что в настоящее время в мире существует несколько уникальных установок с похожими мощностными характеристиками 30 мДж/80 фс на длине волны 3.9 мкм). Как показано ниже, при таких условиях даже на длине волны 2.6 мкм (в центре полосы поглощения) формируется плазменный канал филамента, однако отчетливо заметны основные закономерности филаментации вблизи линии поглощения и асимметрия поглощения в высоко- и низкочастотном крыльях линии.

Вторая серия расчётов была проведена в диапазоне 1.1 – 1.6 мкм при энергии импульса 8 мДж, длительности 96 фс по уровню  $1/e$ , и диаметре пучка 2 мм; коэффициент поглощения водяной линии соответствовал концентрации молекул водяного пара  $1.4 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$  (100% влажность при 40°C) и, соответственно, длине поглощения менее метра. В данной серии расчётов филаментация в линии поглощения полностью подавлена, и закономерности, выявленные в предыдущей серии расчетов, представлены

более ярко. Кроме того, в данном режиме влияние аномальной дисперсии в высокочастотном крыле полосы поглощения достаточно сильно, чтобы изменить не только временную динамику излучения, но и пиковую плотность плазмы филамента.

Параметры для второй серии вычислений были выбраны во многом с расчётом на возможную экспериментальную реализацию на системах типа TOPAS [25], которые имеют максимальную выходную энергию именно в диапазоне 1.2 – 1.5 мкм. Поскольку основной параметр подобия в задачах филаментации, критическая мощность самофокусировки

$$P_{cr} = \frac{3.77\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2}$$

(здесь  $n_0$  и  $n_2$  — линейный показатель преломления и коэффициент кубичной нелинейности, соответственно), обратно пропорционален концентрации, а значит, и давлению газа, то вторая серия расчётов приблизительно соответствует филаментации пучка с энергией 400 мкДж на 1.3 мкм в воздухе под давлением 20 атм.

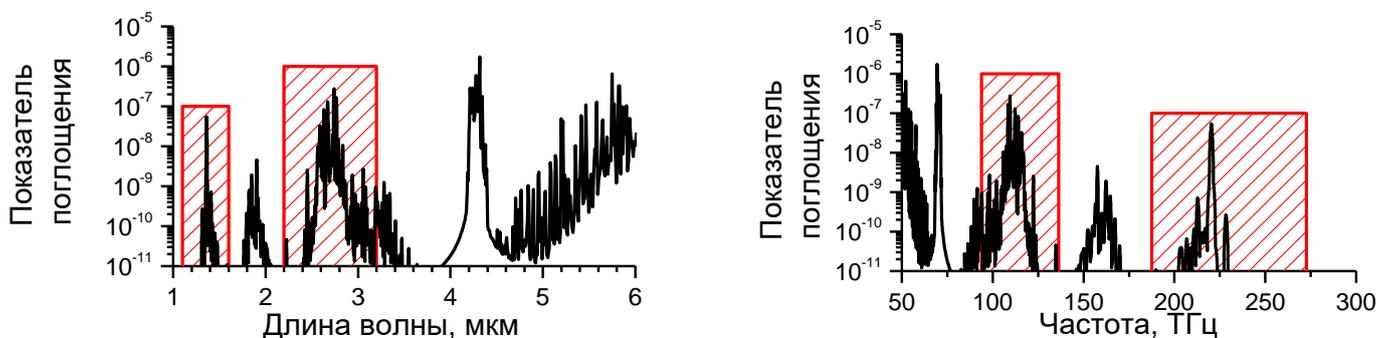


Рис. 2. Показатель поглощения атмосферного воздуха в среднем инфракрасном диапазоне в зависимости от и длины волны (слева) и от частоты (справа). Красными прямоугольниками обозначены диапазоны, обсуждаемые в настоящей работе.

## Глава 4. Энергетические характеристики филамента среднего инфракрасного диапазона вблизи линии поглощения

Для исследования влияния линии поглощения на филаментацию фемтосекундного излучения среднего инфракрасного диапазона нами проведено численное моделирование явления в диапазонах длин волн 2.2 — 3.2 и 1.1 — 1.6 мкм с шагом от 5 нм вблизи линии до 100 нм вдали от нее. Это позволило получить такие характеристики филамента, как максимальные по трассе интенсивность  $I_{\max}$  и плотность плазмы  $N_{\max}$ , а также полные потери энергии  $\delta$ , см. рис 3 и 4, соответствующие реальной линии поглощения 2.7 и модельной линии 1.35 мкм.

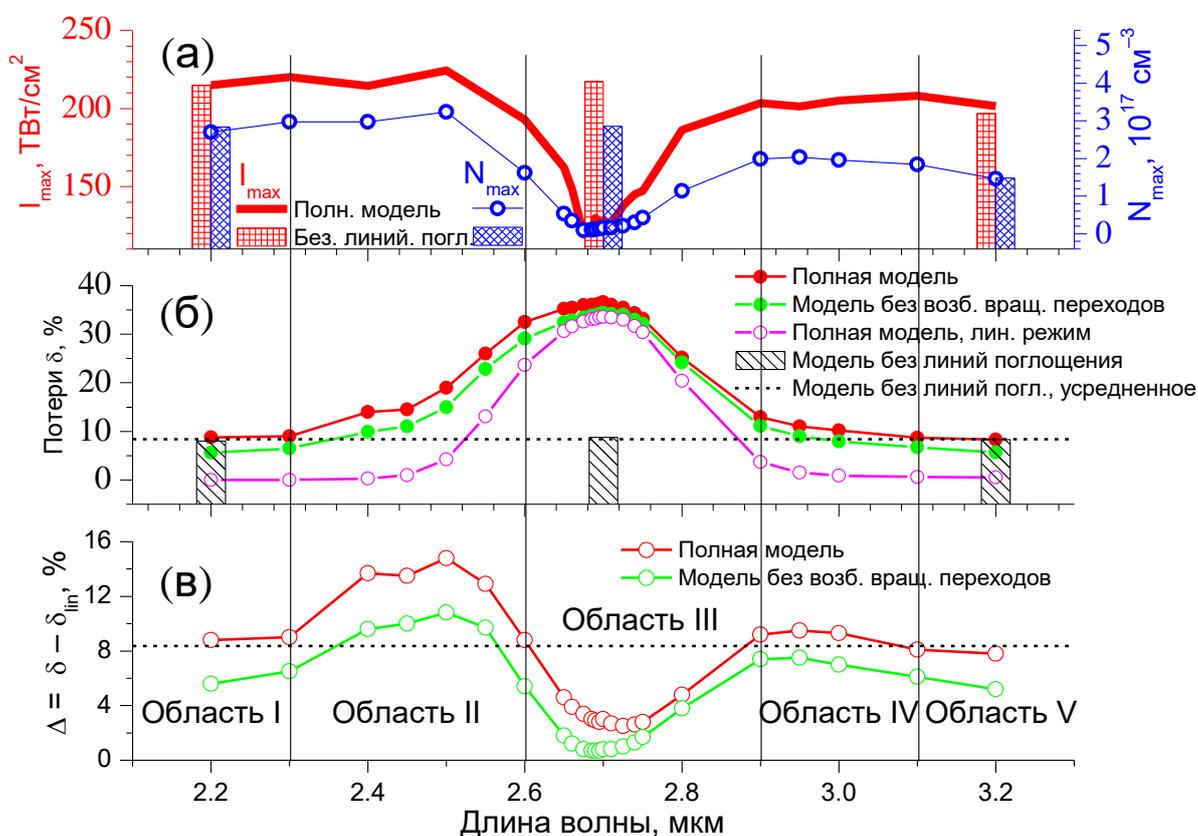


Рис. 3. Основные характеристики филаментации излучения среднего инфракрасного диапазона для различных длин волн в окрестности линии 2.7 мкм: (а) — максимальные интенсивность  $I_{\max}$  и плотность плазмы  $N_{\max}$ ; (б) — поглощение энергии  $\delta$  в нелинейном и линейном режимах; (в) разница  $\Delta$  поглощения в нелинейном и линейном режимах, характеризующая различные режимы поглощения при филаментации. График разделен на пять областей, соответствующих этим режимам: области I и V, в которых доминирует поглощение вследствие ионизации и возбуждения вращательных переходов; область II, где основным механизмом поглощения является нелинейно усиленное линейное поглощение; область III вблизи линии, где поглощение развивается практически линейно; область IV со слабым нелинейно усиленным линейным поглощением

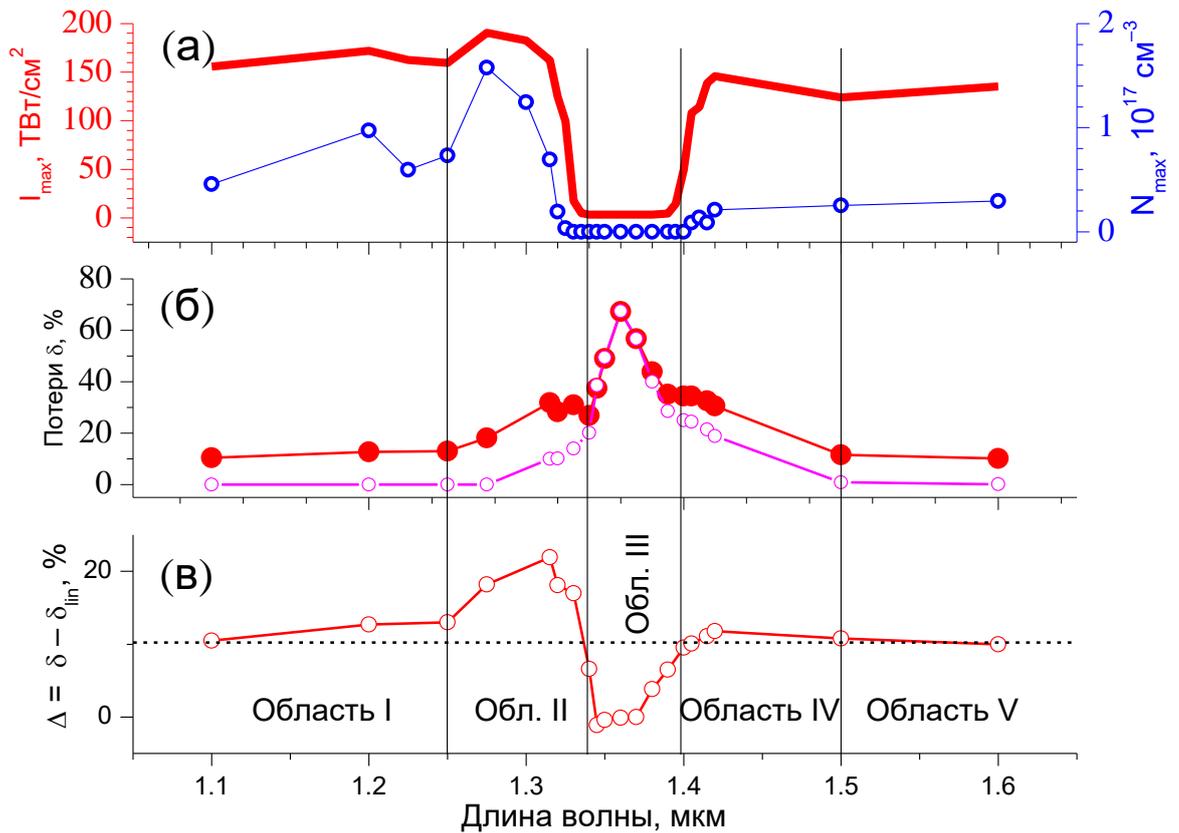


Рис. 4. То же, что и на рис. 3, для линии поглощения 1.35 мкм

Зависимости максимальной интенсивности и плотности плазмы (рис. 3а и 4а) от длины волны демонстрируют схожее поведение: с ростом длины волны они имеют некоторую тенденцию к увеличению (вплоть до  $220 \text{ ТВт/см}^2$  и  $3.2 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$  на длине волны  $\lambda_0 = 2.5 \text{ мкм}$ ), затем в окрестности линии резко падают, а с дальнейшим увеличением длины волны снова возрастают до уровня несколько ниже, чем в высокочастотном крыле линии —  $200 \text{ ТВт/см}^2$  и  $2.0 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$  на длине волны  $\lambda_0 = 2.9 \text{ мкм}$ . Следует отметить, что общая тенденция к уменьшению величин  $I_{\text{max}}$  и  $N_{\text{max}}$  с ростом длины волны не связана с поглощением и дисперсией резонансной линии, см. кривые с диаграммой, соответствующей расчету с «выключенным» поглощением на молекулярных линиях, на рис. 3а.

В самой линии поглощения плотность самонаведенной плазмы падает до  $9 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$  для длины волны  $\lambda_0 = 2.675 \text{ мкм}$  и до нуля в диапазоне длин волн  $1.33 — 1.395 \text{ мкм}$ . Тем не менее, на границах этого диапазона интенсивность существенно превышает начальную  $3 \text{ ТВт/см}^2$ , достигая

15 ТВт/см<sup>2</sup>. Это может быть интерпретировано как формирование филаментов без плазмы, которые ранее были предсказаны в условиях высокой керровской нелинейности высших порядков [32].

Будем характеризовать потери энергии импульсом величиной  $\delta$ , равной отношению энергии импульса на некотором расстоянии распространения  $z$  к начальной энергии при  $z = 0$ . На рис. 3б и 4б показана зависимость  $\delta$  ( $\lambda_0$ ) при  $z = 700$  см для различных режимов расчета: (1) на основе полной модели, (2) на основе модели без нелинейности, вызванной возбуждением вращательных переходов, (3) на основе модели без вклада, обеспечивающего линейное поглощение, (4) в линейном режиме с использованием в полной модели начальных импульсов с энергиями 100 мкДж для линии поглощения 2.7 мкм и 10 мкДж для линии 1.35 мкм (порядка 0.01 критической мощности самофокусировки).

Вдали от линии ( $\lambda_0 = 2.2$  и 3.2 мкм) поглощение обеспечивается в основном нелинейными процессами и достигает 8 — 10%, см. красную кривую с диаграммой на рис. 3б. По мере приближения к линии поглощения потери возрастают до ~50% от начальной энергии импульса, как в нелинейном, так и в линейном случаях, см. рис. 3б, 4б. Влияние нелинейного возбуждения вращательных переходов состоит в основном в аддитивной добавке ~3% к поглощению; смещение контура поглощения в длинноволновую область вследствие этого эффекта незначительно.

Для исследования основных вкладов в поглощение введем величину  $\Delta$ , равную разнице между нелинейными потерями  $\delta$  и потерями в линейном случае  $\delta_{lin}$

$$\Delta = \delta - \delta_{lin}, \quad (4.1)$$

см. рис. 3в, 4в. Вдали от линии поглощения в областях I и V линейные потери  $\delta_{lin}$  стремятся к нулю и величина  $\Delta$  равна потерям, обусловленным нелинейными механизмами  $\delta_{nlin}$ : туннельной ионизацией и возбуждением вращательных уровней (см. штриховую прямую на рис. 3б, в, 4в).

С ростом длины волны и приближении к линии зависимость  $\Delta(\lambda_0)$  возрастает до  $\sim 2\delta_{nlin}$  (область II). Это свидетельствует о развитии нелинейно усиленного линейного поглощения, поскольку потери становятся выше суммы линейных и нелинейных. Зависимость энергии импульса  $W$  от расстояния  $z$ , демонстрирующая развитие нелинейно усиленного линейного поглощения, показана на рис. 5 для длины волны  $\lambda_0 = 2.45$  мкм. Отклонение зависимости  $W(z)$  в нелинейных случаях от таковой для линейного режима в области низкой интенсивности происходит вследствие только нелинейного усиленного поглощения для расчета без возбуждения вращательных переходов и этих двух процессов при расчетах на основе полной модели. Несмотря на то, что возбуждение вращательных уровней ведёт к смещению спектра в красную область, оно не является основным эффектом, обеспечивающим формирование изолированной ИК компоненты, см. рис. 5б.

Затем в самой линии (т.е. в области III) величина  $\Delta$  падает до  $\sim 3\%$  и 0 для линий 2.7 и 1.35 мкм соответственно, т.е. до уровня потерь, связанных с нерезонансным нелинейным возбуждением вращательных переходов; в этом случае ионизация вносит в поглощение пренебрежимо малый вклад. В то же время сами потери в области III достигают  $\sim 50\%$  как в нелинейном, так и в линейном случаях. Отсюда следует, что в этой области доминирует линейное поглощение.

В длинноволновой области IV значение  $\Delta$  превышает нелинейные потери  $\delta_{nlin}$  на несколько процентов. Это свидетельствует о том, что в ней также развивается нелинейно усиленное линейное поглощение, которое, однако, выражено намного слабее, чем в коротковолновой области II.

Графики, представленные на рис. 3в и 4в, демонстрируют асимметрию поглощения в высоко- и низкочастотном крыльях линии. Отметим, что этот эффект носит универсальный характер — мы показали его для двух линий 2.7 и 1.35 мкм. Таким образом, для филаментации мощного фемтосекундного

излучения окно прозрачности сужается на 100 — 200 нм в спектральной области, соответствующей высокочастотному крылу линии поглощения.

Исследуем физическую природу асимметрии поглощения. Для этого рассмотрим рис. 6а, на котором показаны полученные при расчете на основе полной модели спектры излучения для начальных длин волн  $\lambda_0 = 2.45$  и 2.95 мкм, т.е. в высоко- и низкочастотном крыльях линии соответственно. В обоих случаях несложно видеть формирование низкочастотной компоненты, содержащей 30 — 50% энергии излучения. Формирование такой компоненты для центральной длины волны 0.8 мкм наблюдалось ранее экспериментально [33, 34] и воспроизведено численно [26].

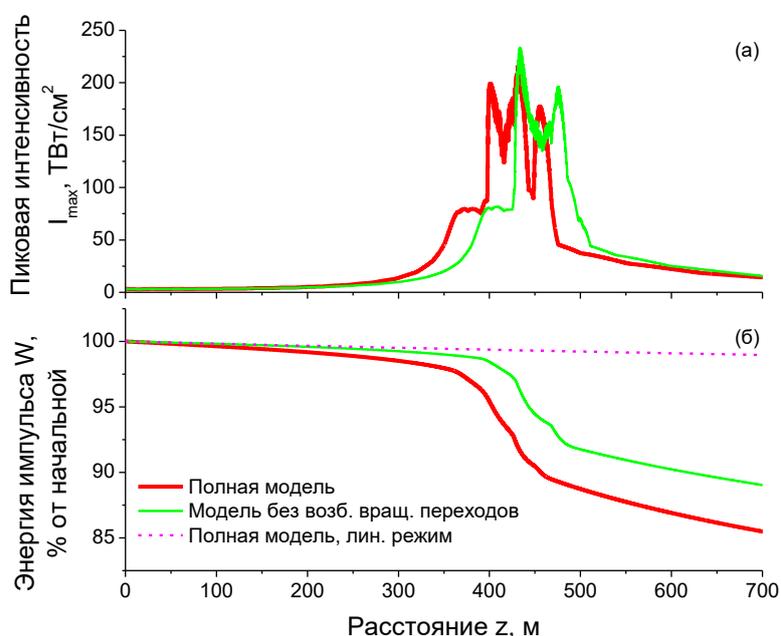


Рис. 5. Зависимости пиковой интенсивности  $I_{\max}$  (а) и потерь  $\delta$  (б) от расстояния распространения  $z$ . Отклонение поглощения в нелинейном режиме (энергия 34 мДж) от линейного режима (энергия 100 мкДж) свидетельствуют о потерях, обусловленных нелинейным усилением линейного поглощения и возбуждением вращательных уровней молекул азота и кислорода

В случае центральной длины волны излучения, меньшей линии поглощения, энергетичная низкочастотная компонента формируется в самой линии, вследствие чего эффективно поглощается — развивается нелинейно усиленное линейное поглощение, см. область II на рис. 3в, 4в. Если же центральная длина волны лежит выше линии, низкочастотная компонента оказывается вдали от линии и распространяется без поглощения;

поглощается высокочастотная часть излучения суперконтинуума, спектральная плотность мощности которого существенно ниже таковой в низкочастотной компоненте. Поэтому нелинейно усиленное линейное поглощение практически не развивается, см. область IV на рис. 3в, 4в.

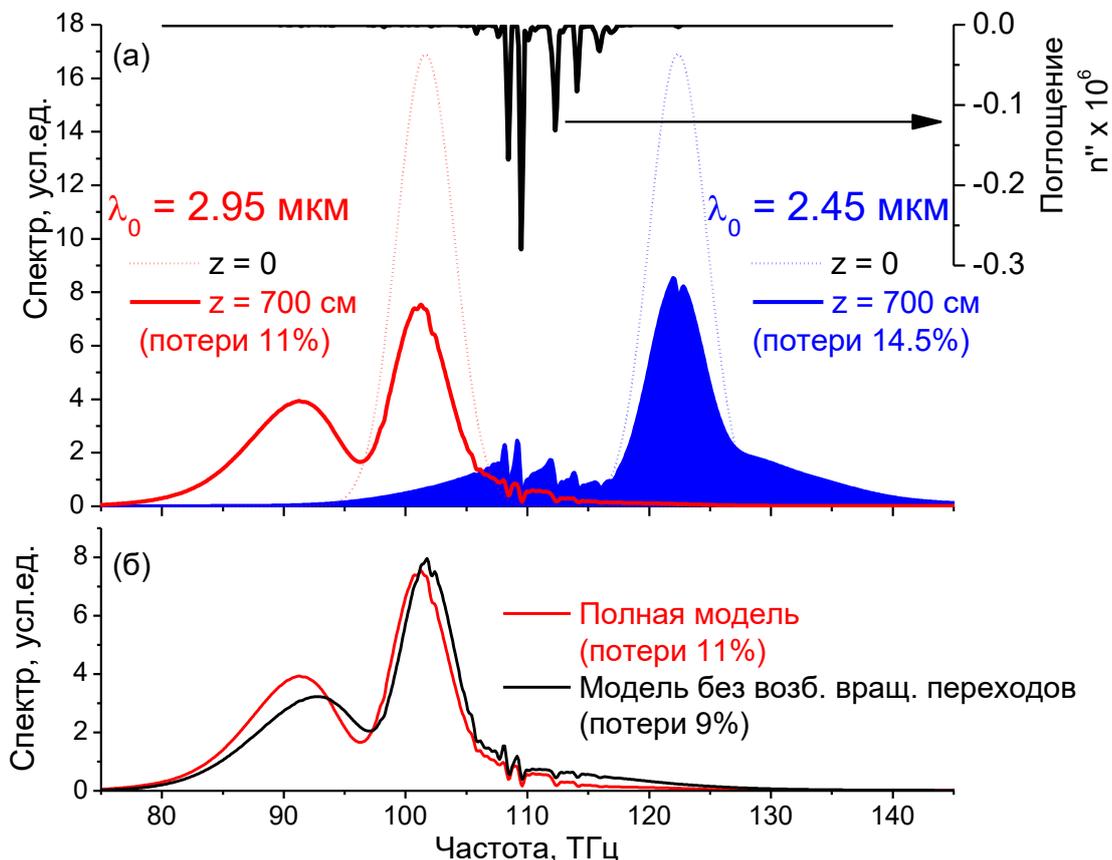


Рис. 6. Спектры суперконтинуума по окончании филаментации в окрестности линии поглощения 2.7 мкм. (а) Асимметрия нелинейно усиленного линейного поглощения при смене знака отстройки центральной частоты от резонансной, вызванная образованием изолированного низкочастотного крыла в суперконтинууме филамента. Пунктирные линии изображают начальный спектр импульса. Черная кривая изображает профиль поглощения в среде. (б) Сравнение поглощения при моделировании с учетом инерционного вращательного отклика и без него

Таким образом, нами показано асимметричное нелинейное сужение окна прозрачности на 100 — 200 нм в высокочастотном крыле линии поглощения вследствие развития нелинейно усиленного линейного поглощения. Асимметрия поглощения обусловлена формированием содержащей до 30% энергии импульса компоненты суперконтинуума в низкочастотной области относительно центральной длины волны. Для

импульса с центральной длиной волны короче, чем линия поглощения эта компонента формируется на линии, где эффективно поглощается, тогда как если центральная длина волны больше линии, она распространяется в области прозрачности атмосферы.

## **Глава 5. Временные формы импульса при филаментации излучения среднего инфракрасного диапазона**

Рассмотрим подробнее временную динамику излучения при филаментации на трёх длинах волн вблизи полосы поглощения 2.6 мкм. На длине волны 3 мкм взаимное влияние нелинейных и линейных механизмов поглощения достаточно мало (рис. 7в). Эта длина волны расположена в низкочастотном крыле линии, в области нормальной дисперсии. Как следствие этих двух факторов, эволюция временной формы импульса в филаменте достаточно типична и воспроизводит характерный для 800-нм случая распад импульса на несколько коротких субимпульсов (рис. 7в), с той лишь разницей, что для 800 нм конверсия в высокие гармоники, заметная на заднем фронте 3-мкм импульса, гораздо меньше. Однако и на 2.45 мкм, при отсутствии ярко выраженной аномальной дисперсии, наблюдается распад импульса. Для выбранных параметров линии только излучение внутри линии, при существенно подавленной интенсивности и низкой концентрации плазмы вдоль филамента, сохраняет унимодальную форму. В отличие от двух других случаев, такая «пилообразная» временная форма импульса характерна для среды с очень малой дисперсией. Кроме того, в данном случае за импульсом образуется резонансный «хвост», протяжённость которого исчисляется пикосекундами.

Таким образом, можно наблюдать, что цельная форма импульса сохраняется только при распространении на центральных длинах волн внутри полосы поглощения, в остальных случаях импульс распадается на субимпульсы.

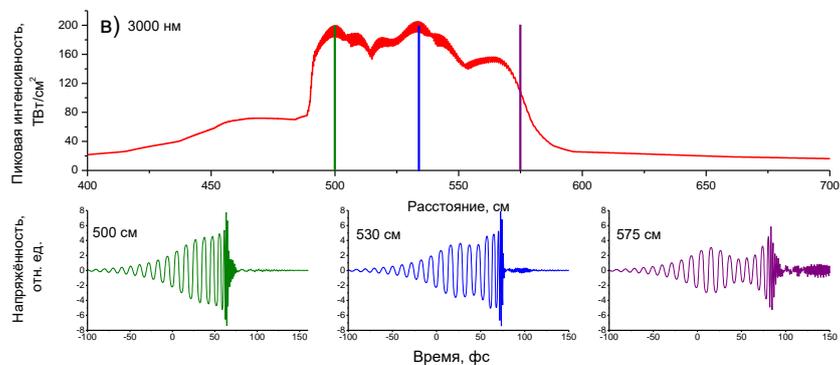
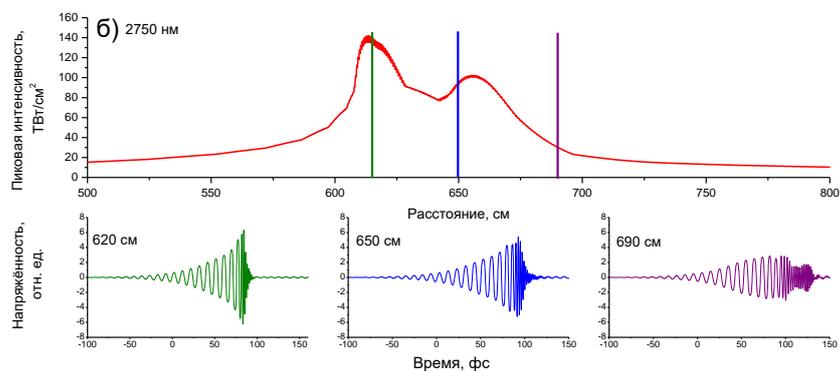
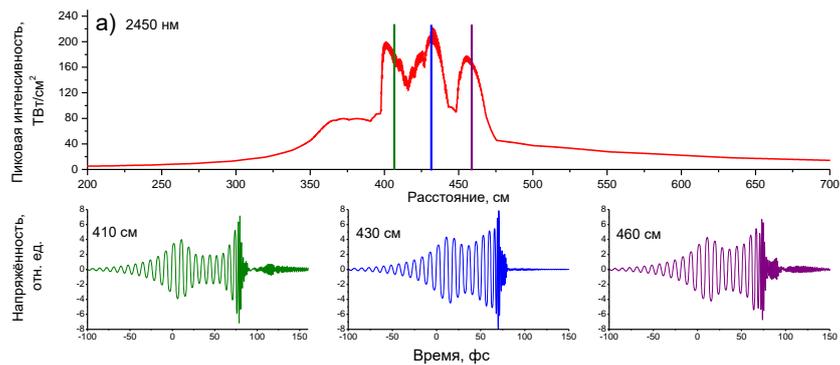


Рис. 7. Пиковая интенсивность в зависимости от пройденного расстояния (сверху) и временная динамика излучения (снизу) на различных расстояниях для различных центральных длин волн:

а) 2450 нм б) 2750 нм в) 3000 нм

## Заключение

В заключение, сформулируем основные итоги работы и выводы из полученных результатов:

- построена модель распространения лазерного излучения среднего инфракрасного диапазона в воздухе с учётом, помимо общепринятых для филаментации факторов, резонансного и нерезонансного отклика молекулярной среды;
- нелинейное окно прозрачности в среднем инфракрасном диапазоне сужается по сравнению с линейным на 100 — 200 нм в высокочастотном крыле полосы поглощения вследствие развития нелинейно усиленного линейного поглощения;
- нелинейно усиленное линейное поглощение обусловлено формированием изолированного низкочастотного крыла в спектре суперконтинуума, содержащего до 30% энергии импульса; асимметрия уширения спектра при филаментации обеспечивает асимметрию нелинейного усиленного поглощения в высоко- и низкочастотном крыльях полосы поглощения;
- как при высоко-, так и при низкочастотной отстройке центральной длины волны от полосы поглощения при филаментации происходит распад импульса на субимпульсы; данный эффект подавлен только при центральной длине волны в полосе поглощения, где формируется сжатый импульс с унимодальным временным распределением поля.

## Литература.

- [1]. A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, “Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air”. *Optics Letters* **20**, 73 (1995).
- [2]. В. П. Кандидов, С. А. Шлёнов, О. Г. Косарева, «Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения». *Квантовая электроника* **39**, 205 (2009).
- [3]. S. Tzortzakis, B. Prade, M. Franco, A. Mysyrowicz, “Time-evolution of the plasma channel at the trail of a self-guided IR femtosecond laser pulse in air”. *Optics Communications* **181**, 123-127 (2000).
- [4]. E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz, “Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air”. *Optics Letters* **21**, 62-65 (1996).
- [5]. A. Brodeur, C. Y. Chien, F. A. Ilkov, S. L. Chin, O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, “Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air”. *Optics Letters* **22**, 304-306 (1997).
- [6]. В. Н. Луговой, А. М. Прохоров, «О возможном объяснении мелкомасштабных нитей самофокусировки». *Письма в журнал экспериментальной и теоретической физики* **7**, 153 (1968).
- [7]. S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, “Nonlinear propagation of subpicosecond ultraviolet laser pulses in air”. *Optics Letters* **25**, 1270-1272 (2000).
- [8]. D. E. Shipilo, N. A. Panov, E. S. Sunchugasheva, et al., “Fifteen meter long uninterrupted filaments from sub-terawatt ultraviolet pulse in air”. *Optics Express* **25**, 25386-25391 (2017).
- [9]. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, Р. В. Хохлов, «Самофокусировка и дифракция света в нелинейной среде». *Успехи физических наук* **91**, 19 (1967).
- [10]. J. H. Marburger, “Self-focusing: theory”. *Progress in Quantum Electronics* **4**, 35 (1975).
- [11]. A. V. Mitrofanov, A. A. Voronin, D. A. Sidorov-Biryukov et al., “Mid-infrared laser filaments in the atmosphere”. *Scientific Reports* **5**, 8368 (2015).

- [12]. F. Theberge, W. Liu, Q. Luo, and S. L. Chin, “Ultrabroadband continuum generated in air (down to 230 nm) using ultrashort and intense laser pulses”. *Applied Physics B* **80**, 221 (2005).
- [13]. H. Liang, D. L. Weerawarne, P. Krogen, R. I. Grynko, C.-J. Lai, B. Shim, F. X. Kärtner, and K.-H. Hong, “Mid-infrared laser filaments in air at a kilohertz repetition rate”. *Optica* **3**, 678–681 (2016).
- [14]. М. Б. Агранат, В. П. Кандидов, П. С. Комаров, А. В. Овчинников, В. Ю. Федоров, «Филаментация фемтосекундного лазерного излучения хром-форстеритового лазера в воздухе». *Квантовая электроника* **39**, с. 552-559 (2009).
- [15]. Y. Silberberg, “Collapse of optical pulses”. *Opt. Lett.* **15**, 1282–4 (1990).
- [16]. P. Panagiotopoulos, P. Whalen, M. Kolesik, and V. Moloney, “Super high power mid-infrared femtosecond light bullet”. *Nature Photonics* **9**, 543-550 (2015).
- [17]. S.V. Chekalin, A. E. Dokukina, A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, E. O. Smetanina and, V. P. Kandidov, “Light bullets from a femtosecond filament”. *Journal of Physics B* **48**, 9 (2015).
- [18]. B. Shim, S. E. Schrauth, and A. L. Gaeta, “Filamentation in air with ultrashort mid-infrared pulses”. *Optics Express* **19**, 9118-9126 (2011).
- [19]. A. A. Voronin and A. M. Zheltikov, “Temporal solitons in air”. *Phys. Rev. A* **95**, 023826 (2017).
- [20]. D. V. Kartashov, A. V. Kirsanov, A. M. Kiselev, A. N. Stepanov, N. N. Bochkarev, Yu. N. Ponomarev, and B. A. Tikhomirov, “Nonlinear absorption of intense femtosecond laser radiation in air”. *Optics Express* **14**, 7552-7558 (2006).
- [21]. S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand and H. M. Milchberg, “Quantum Control of Molecular Gas Hydrodynamics”. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 143601 (2014).
- [22]. Y. E. Geints, and A. A. Zemlyanov, “Near- and mid-IR ultrashort laser pulse filamentation in a molecular atmosphere: a comparative analysis”. *Applied Optics* **56**, 1397-1403 (2017).

- [23]. N. A. Panov, D. E. Shipilo, V. A. Andreeva, O. G. Kosareva, A. M. Saletsky, H. Xu, and P. Polynkin, “Supercontinuum of a 3.9- $\mu\text{m}$  filament in air: Formation of a two-octave plateau and nonlinearly enhanced linear absorption”. *Phys. Rev. A* **94**, 041801 (2016).
- [24]. V. Shumakova, S. Ališauskas, P. Malevich et al., “Filamentation of mid-IR pulses in ambient air in the vicinity of molecular resonances”. *Optics Letters* **43**, 2185-2188 (2018).
- [25]. R. Danielius, A. Piskarskas, P. Di Trapani et al., “Visible pulses of 100 fs and 100  $\mu\text{J}$  from an upconverted parametric generator”. *Applied Optics* **35**, 5336-5339 (1996).
- [26]. N. A. Panov, D. E. Shipilo, V. A. Andreeva, D. S. Uryupina, A. B. Savel’ev, O. G. Kosareva, S. L. Chin, “Robust near-infrared light bullet in 800-nm femtosecond light filaments in air”. *Applied Physics B* **120**, 383-387(2015).
- [27]. M. S. Molodenskiy and O. V. Tikhonova, “Rotational dynamics of a molecular ensemble in the presence of a strong laser field”. *Laser Physics* **17**, 401 (2007).
- [28]. R. J. Mathar, “Calculated refractivity of water vapor and moist air in the atmospheric window at 10  $\mu\text{m}$ ”. *Applied Optics* **43**, 928 (2004).
- [29]. M. Kolesik and J. V. Moloney, “Nonlinear optical pulse propagation simulation: From Maxwell’s to unidirectional equations”. *Phys. Rev. E* **70**, 036604 (2004).
- [30]. P. A. Oleinikov and V. T. Platonenko, “Raman transitions between rotational levels and self-phase modulation of subpicosecond light pulses in air”. *Laser Physics* **3**, 618 (1993).
- [31]. M. Mlejnek, E. M. Wright, and J. V. Moloney “Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air”. *Optics Letters* **23**, 382 (1998).
- [32]. P. P. B ejot, J. Kasparian<sup>1</sup>, S. Henin<sup>1</sup> et al., “Higher-order kerr terms allow ionization-free filamentation in gases”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 103903 (2010)
- [33]. Y. Chen, F. Th eberge, C. Marceau et al., “Observation of filamentation-

induced continuous self-frequency down shift in air”. *Applied Physics B* **91**, 219-222 (2008).

[34]. D. Uryupina, N. Panov, M. Kurilova et al., “3D Raman bullet formed under filamentation of femtosecond laser pulses in air and nitrogen”. *Applied Physics B* **110**, 123-130 (2013).