

ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ИНТЕНСИВНЫХ ПИКОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ В ИЗЛУЧЕНИЕ С ПРОТЯЖЕННЫМ КВАЗИВРАЩАТЕЛЬНЫМ СПЕКТРОМ ПРИ САМОФОКУСИРОВКЕ В ВОДОРОДЕ ВЫСОКОГО ДАВЛЕНИЯ

В. Б. Морозов, А. Н. Оленин, В. Г. Тункин*

*Международный учебно-научный лазерный центр,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 25 июня 1998 г.

При самофокусировке импульсов длительностью 30 пс с длиной волны 1.06 мкм в водороде при давлении до 120 атм генерировалось излучение со спектром, являющимся дискретным аналогом протяженного спектра, наблюдаемого при генерации в газах суперконтинуума. Изучаемый спектр содержал линии с близкими интенсивностями, со средним частотным интервалом между ними примерно равным частоте вращательного перехода в водороде (587 см^{-1}) и гладким пространственным профилем. Линии состояли из нескольких колебательно-вращательных компонент. При увеличении давления спектральные линии трансформировались таким образом, что при давлении выше 60 атм в спектре каждой линии оставались одна или две компоненты, образующиеся за счет меньшего числа каскадных (вращательных и колебательных) процессов. Самофокусировка проявляла себя в виде светящегося канала длиной до 12 см. Образование канала такой длины связывается в основном с изменением показателя преломления при колебательном возбуждении молекул водорода электронами, разогреваемыми в поле волны накачки.

1. ВВЕДЕНИЕ

Когерентное оптическое излучение со спектром, состоящим из эквидистантных или квазиэквидистантных спектральных линий, в целом ряде работ [1–18] генерировалось за счет колебательного и/или вращательного вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) и резонансных параметрических процессов, в частности, в газообразном водороде. Каскадные колебательные линии в стоксовой и антистоксовой областях наблюдались при линейно поляризованной накачке, так как в этом случае колебательное комбинационное усиление максимально [1–4]. При циркулярно поляризованной накачке изотропное рассеяние исключается, колебательное комбинационное усиление уменьшается и вращательное ВКР становится доминирующим. При использовании циркулярно поляризованной накачки наблюдались каскадные вращательные линии [5]. Каскадные колебательные линии с вращательными линиями по обеим сторонам от колебательных [6–9], а также каскадные вращательные линии [10, 11] были зарегистрированы, когда водород накачивался эллиптически поляризованной волной [6, 10] или когда использовалась линейно поляризованная бигармоническая накачка с разностью частот, равной частоте (587 см^{-1}) вращательного перехода $S_0(1)$ водорода [7, 8, 11]. В [7] для этой цели использовалось излучение двух лазеров на красителях. В [8, 11] смещенное по

*E-mail: tunkin@sr.phys.msu.su

частоте излучение генерировалось в дополнительной кювете, в которой в силу циркулярной поляризации волны накачки возбуждалось только вращательное ВКР. В некоторых из перечисленных работ реализовывалось стационарное, а в других — нестационарное ВКР. В [12] при реализации нестационарного ВКР в водороде при давлении до 40 атм и накачке импульсами длительностью 30 пс с длиной волны 1.06 мкм и энергией 90 мДж эффективно генерировались первая и вторая стоксовы колебательные компоненты; для фокусировки излучения накачки в кювету с водородом использовались линзы с фокусным расстоянием не короче 1 м, чтобы избежать оптического пробоя. Максимальное давление водорода в работах [1–12] составляло 40 атм.

Если в последовательности колебательно-вращательных линий, простирающихся во многих случаях от ИК до УФ диапазона, нет выделенных по интенсивности участков, то эти последовательности можно рассматривать как дискретный аналог протяженного спектра, наблюдаемого при генерации в газах суперконтинуума. Генерация суперконтинуума в газах детально исследовалась в работах [13–18], где было показано, что она тесно связана с самофокусировкой излучения накачки. В работах по генерации суперконтинуума [13–15] существенное уширение частотного спектра сопровождалось небольшим изменением пространственного спектра: расходимость луча после кюветы с газом была почти равна его сходимости в кювету.

Ранее [19] мы сообщали о том, что при самофокусировке линейно поляризованных пикосекундных импульсов с длиной волны 1.06 мкм, энергией до 40 мДж в водороде высокого давления (до 120 атм) наблюдалась генерация излучения с протяженным спектром, состоящим из последовательности однокомпонентных или двухкомпонентных колебательно-вращательных линий с близкими в пределах видимого диапазона интенсивностями, со средним частотным интервалом между линиями (593 см^{-1}), примерно равным частоте вращательного перехода в водороде (587 см^{-1}), и гладким пространственным профилем.

В данной работе мы приводим результаты экспериментального исследования особенностей формирования спектральной и пространственной структур спектра излучения, генерируемого в результате вращательного и колебательного ВКР и параметрических каскадных процессов в условиях самофокусировки интенсивных пикосекундных импульсов в водороде при давлении вплоть до 120 атм.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И ОПТИЧЕСКАЯ СХЕМА

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Задающий Nd : YAG-генератор с пассивной синхронизацией мод и отрицательной обратной связью генерировал пуг из 10–12 импульсов длительностью 30 пс. Одиночный импульс выделялся из центральной части пуга. Для увеличения контраста выделенного импульса относительно фона использовались два последовательно стоящих электрооптических модулятора на LiTaO_3 . Одиночный импульс усиливался в системе усилителей до энергии ≤ 40 мДж. Контраст усиленного одиночного импульса по отношению к фону был по интенсивности не хуже $2 \cdot 10^3$, а по энергии — не хуже 10^2 . Этот импульс с линейной поляризацией фокусировался в кювету длиной 25 см с водородом высокого давления. Диаметр пучка накачки на фокусирующей линзе составлял 4.4 мм. Давление водорода менялось от 0 до 120 атм. Выходящее из кюветы излучение разлагалось в спектр дифракционными решетками, а распределение энергии по спектральным линиям измерялось с

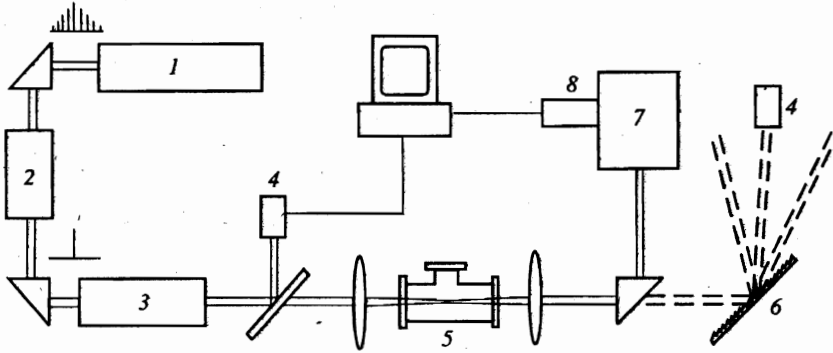


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — пикосекундный генератор на Nd : YAG с пассивной синхронизацией мод и отрицательной обратной связью ($\lambda_p = 1.06$ мкм, $\tau_p = 30$ пс), 2 — электрооптический модулятор; 3 — усилители; 4 — пьезоэлектрический детектор; 5 — кювета с водородом; 6 — дифракционная решетка; 7 — дифракционный монохроматор; 8 — оптический многоканальный анализатор

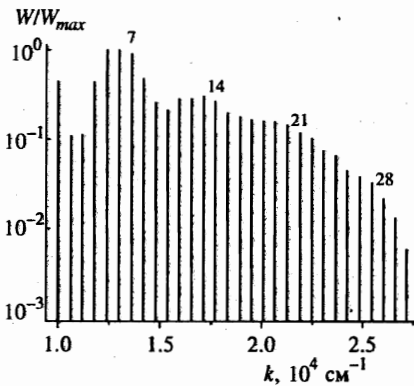


Рис. 2. Энергия линий квазिवращательного спектра при давлении водорода 100 атм и энергии накачки 30 мДж. Номера линий отсчитываются от накачки. Линии 1–10 регистрировались с помощью решетки 600 штр./мм, линии 10–30 — с помощью решетки 1200 штр./мм. Энергия каждой линии в зеленой области составляла ≈ 10 мкДж (W_{max} — энергия самой интенсивной линии)

помощью пьезоэлектрического детектора. Детальная структура спектра изучалась с помощью дифракционного монохроматора и (в зависимости от спектрального диапазона) оптического многоканального анализатора или ФЭУ. В кювете имелось боковое окно, через которое можно было наблюдать светящийся канал, возникающий в результате самофокусировки импульсов накачки. Путем проектирования изображения канала на щель дифракционного монохроматора с помощью оптического многоканального анализатора регистрировался спектр бокового свечения этого канала.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

При достаточно больших давлениях p водорода и энергии W_p накачки выходящее из кюветы излучение представляло почти белый луч с расходимостью $1.5\text{--}2^\circ$, превышающей расходимость после кюветы луча накачки (0.9°). Это излучение разлагалось в спектр с помощью решетки 600 штр./мм для регистрации в ИК области или с помощью

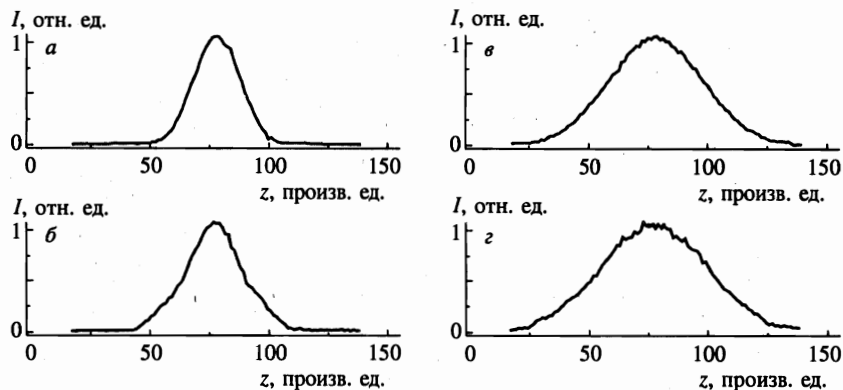


Рис. 3. Пространственные профили пучков для различных давлений водорода, измеренные при проектировании на оптический многоканальный анализатор их изображений в дальней зоне на матовом стекле: *a* — накачка 1.06 мкм при $p = 0$ атм; *б* — накачка при $p = 100$ атм; *в* — красная линия ($i = 10$, $\lambda = 0.65$ мкм) при $p = 100$ атм; *г* — зеленая линия ($i = 16$, $\lambda = 0.53$ мкм) при 100 атм (z — поперечная координата)

решетки 1200 штр./мм для регистрации в видимой и УФ областях. Полученная с помощью пироэлектрического детектора спектральная зависимость представлена на рис. 2, на котором указаны номера линий i , отсчитываемые от накачки. При энергии накачки 30 мДж энергия каждой линии в зеленой области составляла примерно 10 мкДж. Сшивка спектральных зависимостей, полученных с помощью решеток 600 штр./мм и 1200 штр./мм, проводилась на линии $i = 10$ в предположении, что коэффициент отражения обеих решеток в этой спектральной области одинаков. Спектр, представленный на рис. 2, по своей протяженности и форме огибающей сходен со спектром генерации в газах суперконтинуума [13–18] и является его дискретным аналогом. Как будет показано ниже, при давлении водорода > 60 атм и достаточно большой энергии накачки каждая линия в исследуемом спектре состоит из одной или двух компонент со средним расстоянием между линиями примерно равным частоте вращательного перехода в водороде (587 см^{-1}). Колебательные линии по энергии не выделялись. При увеличении энергии накачки и давления водорода происходило общее увеличение энергий линий без изменения их соотношения. Такую последовательность спектральных линий назовем квазивращательным спектром.

Профили пучков в дальней зоне и, следовательно, их расходимости определялись с помощью оптического многоканального анализатора. Профили пучков различных линий были достаточно гладкими (рис. 3). Расходимость пучка накачки для откаченной кюветы составляла 0.75° , а расходимости пучков накачки, красной ($i = 10$, $\lambda = 0.65$ мкм) и зеленой ($i = 16$, $\lambda = 0.53$ мкм) линий для $p = 100$ атм составляли соответственно 0.9 , 1.5 и 1.7° .

Квазивращательный спектр наблюдался при фокусировке излучения накачки в кювету с водородом линзами с фокусным расстоянием $F = 25\text{--}35$ см. Когда использовались линзы с $F \geq 50$ см, характер выходного излучения кардинально менялся: излучение приобретало форму колец, соответствовавших генерации последовательности колебательных линий. Чтобы избежать пробоя окон кюветы при проведении экспериментов с линзами с $F \geq 50$ см, кювета удлинялась с помощью специальных насадок.

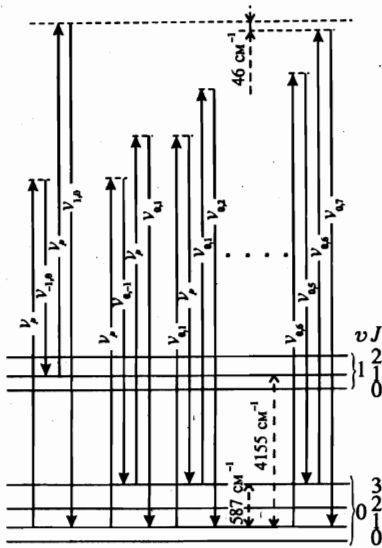


Рис. 4. Квантовая диаграмма процессов генерации первых стоксовых колебательной $\nu_{-1,0}$ и вращательной $\nu_{0,-1}$ компонент ВКР, а также компонент $\nu_{1,0}, \nu_{0,1}, \nu_{0,2} \dots \nu_{0,7}$ за счет четырехфотонных параметрических процессов

Квазивращательный спектр не наблюдался при ухудшении качества пространственного профиля излучения накачки в результате разъюстировки экспериментальной установки, пробоя поверхности активного элемента или каких-либо иных причин. Получению качественного пространственного профиля излучения накачки уделялось существенное внимание при создании экспериментальной установки; в частности, для этой цели в канале усилителей были использованы пространственные фильтры.

Существенную роль при формировании последовательности колебательно-вращательных линий играет каскадное размножение стоксовых компонент вращательного и колебательного ВКР за счет четырехфотонных параметрических процессов. Квантовая диаграмма процессов генерации первых стоксовых вращательной и колебательной компонент ВКР и ряда компонент в антистоксовой области относительно накачки представлена на рис. 4.

Начальным этапом формирования всего спектра является генерация первых стоксовых вращательной и колебательной компонент. Экспериментально измеренные зависимости их энергии от давления водорода при различных энергиях накачки представлены соответственно на рис. 5 и рис. 6. При некотором давлении p_{sat} энергия достигала своего максимального значения (на данных рисунках энергии компонент нормированы на их значения при насыщении). Для вращательного ВКР давление p_{sat} при увеличении W_p уменьшалось; при этом произведение $p_{sat}W_p$ почти не менялось (рис. 7).

Иная ситуация имела место в случае первой стоксовой колебательной компоненты (рис. 6). При $W_p = 14$ мДж ее энергия выходила на насыщение при достижимых в нашей кювете давлениях водорода, а именно при $p_{sat} = 110$ атм. Для этой компоненты p_{sat} при дальнейшем увеличении W_p не менялось.

При давлении водорода большем, чем p_{sat} для вращательного ВКР, наблюдались каскадные вращательные компоненты, интенсивность которых уменьшалась при удалении от линии накачки, простиравшиеся вплоть до желтой области спектра. При дальнейшем повышении давления появлялись каскадные колебательные компоненты с кас-

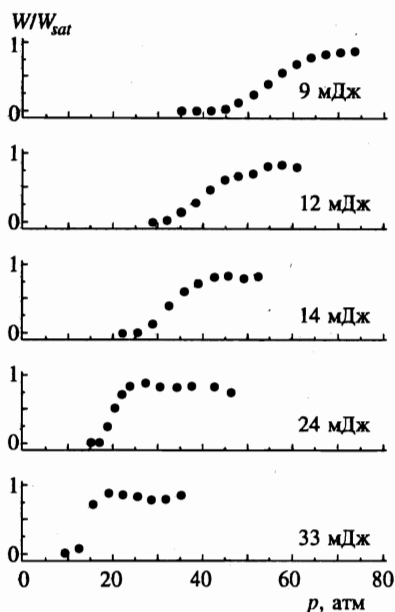


Рис. 5

Рис. 5. Зависимости энергии первой стоксовой чисто вращательной компоненты ($\lambda = 1.13$ мкм) от давления водорода при различных энергиях накачки. На каждой зависимости энергия стоксовой вращательной компоненты нормирована на ее максимальное значение (W_{sat} — энергия компоненты при p_{sat})

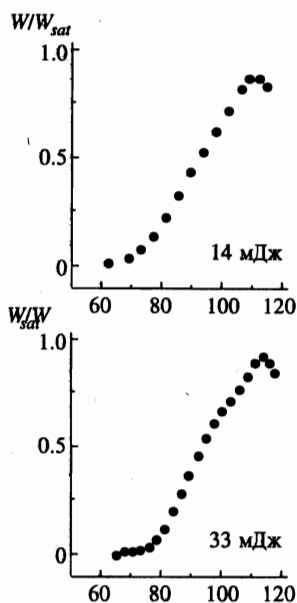


Рис. 6

Рис. 6. То же, что на рис. 5, для первой стоксовой колебательной компоненты ($\lambda = 1.91$ мкм)

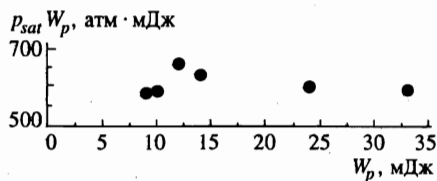


Рис. 7. Зависимость $p_{sat}W_p$ от энергии накачки W_p

кадными вращательными компонентами по обеим сторонам от колебательных. Различные колебательно-вращательные компоненты группировались в линии. При исследовании детальной структуры спектра этих линий в широкой области давлений выяснилось, что частоты всех наблюдавшихся компонент описываются следующим соотношением:

$$\nu_{n,m} = 9397 \text{ см}^{-1} + n \cdot 4155 \text{ см}^{-1} + m \cdot 587 \text{ см}^{-1}, \quad (1)$$

где 4155 см^{-1} и 587 см^{-1} — частоты соответственно колебательного и вращательного переходов в водороде, n и m — соответственно порядки колебательных и вращательных каскадных процессов (могут быть и положительными, и отрицательными). Будем обозначать различные компоненты, указывая порядки соответствующих каскадных про-

цессов (n, m).

Особенностью молекулы водорода является то, что частота колебательного перехода (4155 см^{-1}) на 46 см^{-1} превышает умноженную на семь частоту вращательного перехода (587 см^{-1}). При изменении давления компонентный состав линий трансформировался, но расстояние между соседними компонентами составляло всегда 46 см^{-1} . Линия i содержит компоненты (n, m), где i, n и m связаны соотношением $i = 7n + m$. На рис. 8а показана трансформация спектральной линии $i = 13$, на рис. 8б — линии $i = 14$ и на рис. 8в — линии $i = 17$. Все спектры на этих рисунках нормированы на их значения в максимуме. На рис. 8а компонента (0,13) является 13-й чисто вращательной каскадной компонентой. Вначале при повышении давления она становилась интенсивнее других компонент, затем при повышении давления она, а также компоненты (1,6) и (3,-8) подавлялись и оставалась только компонента (2,-1). Компонента (0,14) на рис. 8б является 14-й чисто вращательной каскадной компонентой. При повышении давления структура линии трансформировалась таким образом, что компоненты (0,14), (1,7) и (3,-7) подавлялись и оставалась только компонента (2,0). Ситуация с линиями $i = 13, 14, 17$ типична: при давлении выше 60 атм и не слишком малой энергии накачки трансформация структуры спектров прекращалась и спектральные линии становились практически однокомпонентными или двухкомпонентными (формировался квазивращательный спектр). В области давлений выше 60 атм энергии различных линий в видимой и ультрафиолетовой областях спектра росли с увеличением давления так же, как энергия первой стоксовой колебательной компоненты.

Квазивращательный спектр формировался в условиях самофокусировки накачки, следствием которой являлось образование светящегося канала самофокусировки, наблюдавшегося через боковое окно кюветы. Спектр бокового свечения этого канала в области спектральной чувствительности анализатора повторял квазивращательный спектр, регистрируемый на выходе из кюветы. Боковое свечение канала воспринималось как белый свет. Речь идет, таким образом, о рассеянии излучения, которое генерировалось внутри канала самофокусировки. Природа подобного рассеяния изучалась в одной из ранних работ по лазерной искре [20], в которой было установлено, что оно обусловлено френелевскими отражениями на границах раздела областей с различной плотностью электронов. Чем больше энергия квазивращательного спектра на выходе кюветы, тем ярче свечение канала. Как правило, наиболее яркой является центральная часть канала; при приближении к концу или началу яркость канала уменьшалась.

При увеличении давления и энергии накачки конец канала практически не смещался и совпадал с положением линейного фокуса. Начало же канала при увеличении энергии накачки и давления смещалось в сторону фокусирующей линзы. При $W_p = 25 \text{ мДж}$ и $p = 100 \text{ атм}$ длина канала составляла $\approx 12 \text{ см}$, поэтому для определения положения начала канала приходилось смещать фокусирующую линзу вдоль оси пучка.

Диаметр канала измерялся путем проектирования на оптический многоканальный анализатор его изображения, увеличенного с помощью линзы, так, чтобы изображение было перпендикулярно светочувствительной линейке. При $W_p = 25 \text{ мДж}$ и $p = 100 \text{ атм}$ диаметр канала в самой широкой его центральной части составлял около 200 мкм. При удалении от центра диаметр канала уменьшался и вблизи линейного фокуса составлял 80 мкм.

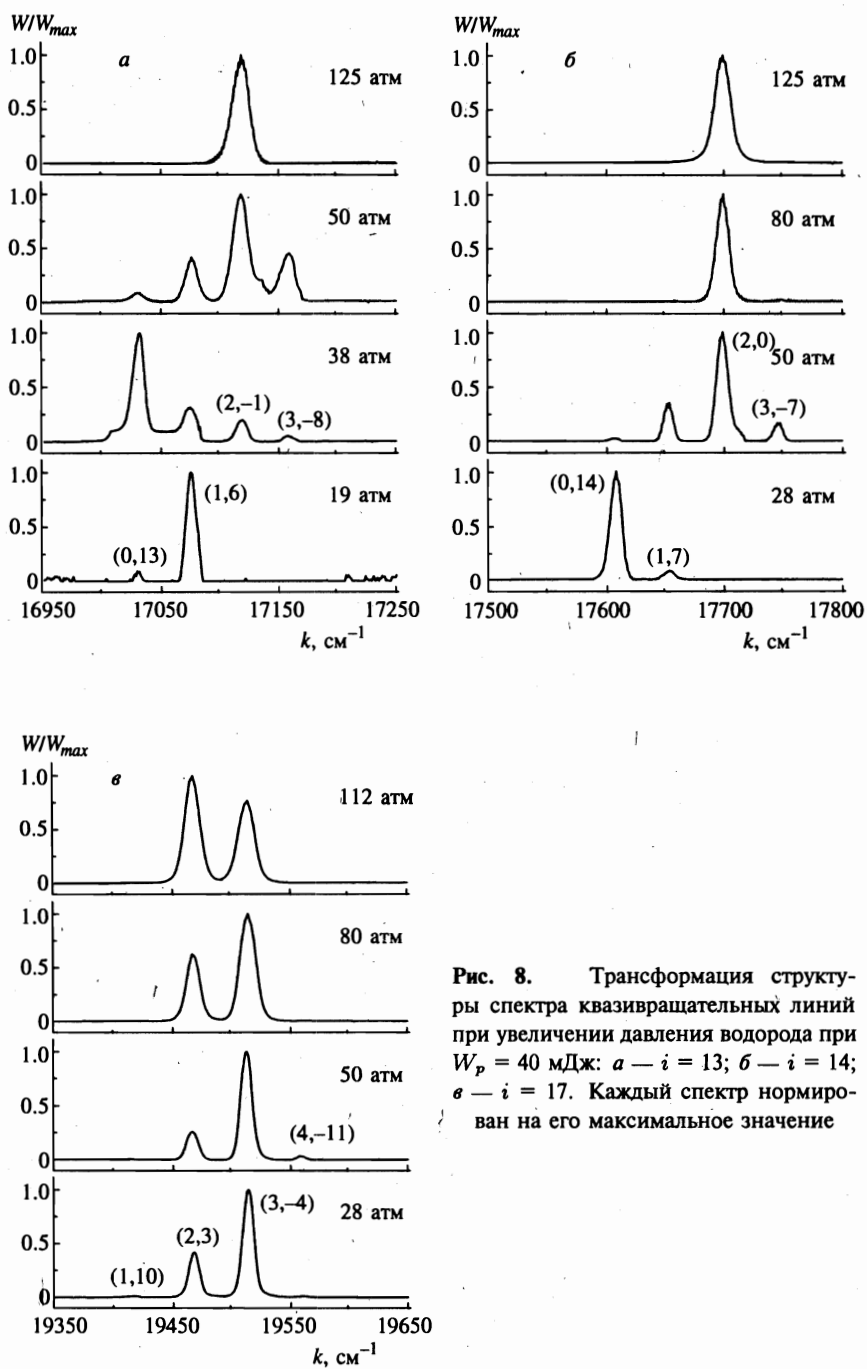


Рис. 8. Трансформация структуры спектра квазिवращательных линий при увеличении давления водорода при $W_p = 40$ мДж: $a - i = 13$; $б - i = 14$; $в - i = 17$. Каждый спектр нормирован на его максимальное значение

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Начальным этапом формирования квазивращательного спектра является вынужденное комбинационное рассеяние на вращательном ($v = 0, J = 1 \rightarrow v = 0, J = 3$) и колебательном ($v = 0, J = 1 \rightarrow v = 1, J = 1$) переходах водорода. Преобразование в квазивращательный спектр происходит внутри канала, образованного при самофокусировке излучения накачки. На условия самофокусировки оказывает существенное влияние возбуждение молекул водорода электронами, разогреваемыми в интенсивном лазерном поле.

4.1. Особенности вращательного и колебательного ВКР

Наблюдавшееся в данной работе ВКР являлось нестационарным. Во-первых, длительность импульса накачки даже при $p = 100$ атм не превышала время дефазировки T_2 , составлявшее при этом давлении 32 пс для вращательного перехода и 62 пс для колебательного [21, 22]. Во-вторых, ниже пойдет речь о том, что образование канала самофокусировки было обусловлено бегущим фокусом, а при наличии бегущего фокуса время взаимодействия молекул с полем становится меньше длительности импульса. В случае нестационарного ВКР пиковая интенсивность I_s^{max} стоксовой компоненты на выходе из нелинейной среды длиной L определяется следующим выражением [23, 24]:

$$I_s^{max} = I_0 \exp \left[\left(A \omega_s |M_{ij}|^2 LN \int I_p dt \right)^{1/2} \right], \quad (2)$$

где A — константа, ω_s — частота стоксовой волны, M_{ij} — матричный элемент для процесса комбинационного рассеяния на переходе $i \rightarrow j$, N — плотность молекул водорода, I_p — интенсивность накачки. Из выражения (2) следует, что пиковая интенсивность I_s^{max} определяется произведением

$$N \int I_p dt = N \bar{I}_p \tau_p \sim NW_p.$$

Если принять, что I_s^{max} при увеличении давления или энергии накачки должна вырасти от начального уровня I_0 (например, уровня шумов) до некоторого фиксированного значения, определяемого насыщением, то в соответствии с (2) произведение давления p_{sat} , при котором I_s^{max} насыщается, на энергию накачки W_p не должно зависеть от W_p , что и имеет место в случае вращательного ВКР (рис. 7).

Насыщение вращательного рассеяния при большой энергии накачки, очевидно, обусловлено переводом большей части молекул в объеме взаимодействия в когерентное вращение. Интенсивное излучение накачки и стоксовой волны способны когерентно возбудить в объеме взаимодействия большую часть молекул, находящихся на первом вращательном уровне. Следуя [25], запишем выражение для частоты двухфотонных резонансных нутаций Раби:

$$\Omega_R^2 = \frac{16\pi^2 c^2}{\hbar^2 \omega_s^4} I_p I_s \frac{d\sigma}{d\Omega}. \quad (3)$$

Здесь $d\sigma/d\Omega$ — сечение комбинационного рассеяния перехода. Основываясь на знании сечения вращательного перехода $1 \rightarrow 3$ водорода для длины волны лазера

488 нм [26], получим для нашего случая $d\sigma/d\Omega = 6.1 \cdot 10^{-29}$ см²/ср. Пусть интенсивность накачки с учетом «размазывания» по бегущему фокусу равна $I_p = 10^{10}$ Вт/см², а интенсивность вращательной стоксовой волны $I_s = 10^9$ Вт/см², тогда для периода нутаций получим $T_R = 1$ пс. Данная оценка достаточно груба, но она характеризует эффективность вращательного возбуждения молекул в объеме взаимодействия.

Энергия колебательной стоксовой компоненты насыщается в области давлений, где энергия вращательного рассеяния уже вышла на насыщение и самофокусировка, сопровождающаяся увеличением длины канала самофокусировки с давлением, проявляется максимальным образом. При наличии бегущего фокуса каждая группа молекул в районе канала самофокусировки взаимодействует не со всем импульсом накачки, а только с его частью. Таким образом, при увеличении энергии накачки происходит уменьшение времени взаимодействия τ_{int} по сравнению с длительностью импульса τ_p , в результате чего эффективная плотность энергии накачки $I_p \tau_{int}$ слабо зависит от ее интегральной энергии W_p . Поэтому насыщение колебательного ВКР наступает примерно при одинаковых давлениях независимо от энергии накачки.

Хотя поляризация накачки линейная, для вращательного ВКР порог по энергии и давлению был значительно меньше, чем для колебательного. Этому способствовало то обстоятельство, что при накачке импульсами с длиной волны 1.06 мкм частота стоксового излучения для вращательного перехода в 1.7 раза превосходит эту частоту для колебательного; постоянная усиления, согласно выражению (2), пропорциональна корню квадратному из частоты стоксовой волны. В то же время при накачке, скажем, импульсами с длиной волны 0.53 мкм частота стоксового излучения для вращательного перехода всего в 1.25 раза превосходит эту частоту для колебательного перехода, и в этом случае при линейной поляризации накачки, как показывает эксперимент, генерируется преимущественно колебательное ВКР.

4.2. Условия самофокусировки

Пространственная структура излучения на выходе из кюветы не испытывала таких кардинальных изменений, как его спектральный состав. Расходимость пучка накачки после кюветы при давлении водорода 100 атм и энергии накачки 24 мДж (0.9°) лишь незначительно превышала расходимость пучка накачки в кювету (0.75°). Данная ситуация очень близка к той, которая имела место в работах Коркума с сотрудниками [13–15], когда расходимость пучка почти равнялась его расходимости в кювету с газом. Авторы рассматривали это как самое драматичное и важное наблюдение. Данный факт может быть объяснен тем обстоятельством, что самофокусировка не сопровождалась сжатием пучка до размеров, существенно меньших, чем диаметр перетяжки в случае линейного фокуса. В наших экспериментах это подтверждается и прямым наблюдением диаметра канала самофокусировки, который превышал диаметр линейной перетяжки (110 мкм) или был близок к нему.

Соответствовала ли наблюдавшаяся в эксперименте длина канала тому смещению фокуса, которое должно иметь место при самофокусировке за счет оптического эффекта Керра? В нашем случае фокусирующая линза находилась вне нелинейной среды (рис. 9), и положение f' фокуса с учетом самофокусировки может быть найдено с по-

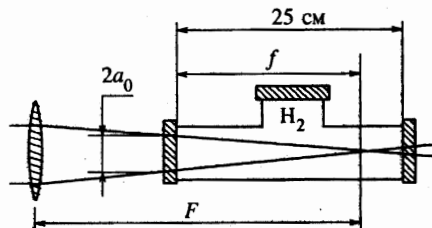


Рис. 9. Оптическая схема фокусировки излучения накачки в кювету с водородом при определении положения начала канала самофокусировки

мощью следующих соотношений [27]:

$$\frac{1}{f'} = \frac{1}{f} + \frac{1}{z_f}, \quad z_f = \frac{ka_0^2}{\sqrt{2(P/P_{cr} - 1)}}, \quad (4)$$

$$P_{cr} = 1.2 \cdot 10^{-2} \lambda^2 c / n_2,$$

где f — положение линейного фокуса (f' и f отсчитываются от начала нелинейной среды), z_f — длина, на которой происходит самофокусировка параллельного пучка с радиусом a_0 на входе в нелинейную среду, P — мощность пучка накачки, P_{cr} — критическая мощность самофокусировки, n_2 — нелинейный показатель преломления. Радиус пучка на фокусирующей линзе был измерен и оказался равным 2.2 мм. В литературе отсутствует значение n_2 для водорода; мы его оценили исходя из значений n_2 для CO_2 [28] и N_2 [29]: $n_2 = (2-2.5 \cdot 10^{-17} \text{ см}^3 \cdot \text{эрг}^{-1} \cdot \text{атм}^{-1})$. Отсюда при $p = 100$ атм получаем $P_{cr} = 200$ МВт, а смещение фокуса при $P = 1$ ГВт должно составить всего 0.9 см. Даже если предположить, что мы занизили значение n_2 и взять значение n_2 в семь раз превышающее указанное выше, то смещение фокуса составит лишь 2.6 см.

Существенная разница между наблюдавшейся длиной канала и рассчитанным выше сдвигом фокуса заставляет предположить, что эффективный нелинейный показатель преломления был существенно выше, что может иметь место при учете возбуждения среды [30]. Смещение фокуса определяется искажением волнового фронта волны накачки из-за самофокусировки, которое начинает действовать уже при входе в нелинейную среду. В области от входа в нелинейную среду до начала светящегося канала единственным источником возбуждения молекул водорода могут быть столкновения с электронами, разогреваемыми в поле волны накачки. Колебательное возбуждение молекул водорода начинается при достижении электроном энергии 0.5 эВ. Сечение этого процесса достигает максимума при энергии ≈ 2 эВ, при этом эффективная частота столкновений, приводящих к колебательному возбуждению молекул водорода, достигает $\nu_v = 10^{13} \text{ с}^{-1}$ ($p = 100$ атм) [31]. В интервале энергий от 0.5 до 8.7 эВ, т. е. до энергии первого электронного возбужденного уровня молекулы водорода, электрон может тратить накопленную энергию в основном на колебательное возбуждение молекул. При этом для оценок можно принять, что указанная выше эффективная частота столкновений в этом интервале энергий постоянна. Электрон начнет эффективно возбуждать электронные уровни, когда время набора энергии 8.7 эВ сравняется с эффективным временем колебательного возбуждения, равным $1/\nu_v = 100$ фс. Среднее время между столкновениями электрона с молекулами водорода составляет $1/\nu_m = 2$ фс при $p = 100$ атм [31]. Итак, если энергия 8.7 эВ достигается за 50 столкновений, то вероятность электронного возбуждения будет близка к вероятности колебательного, т. е. если энергия $\Delta \epsilon_E$, приобретаемая электроном в одном столкновении, составит 0.18 эВ. В соответствии с [32] в поле с

плотностью мощности I и частотой $\nu = c/\lambda$

$$\Delta\epsilon_E [\text{эВ}] = 6.3 \cdot 10^{17} I [\text{Вт/см}^2] / (4\pi^2\nu^2 + \nu_m^2),$$

так что для $\lambda = 1.06$ мкм и $\nu \gg \nu_m$ получаем $\Delta\epsilon_E [\text{эВ}] = 2 \cdot 10^{-13} I [\text{Вт/см}^2]$. Требуемое условие выполняется при $I = 9 \cdot 10^{11}$ Вт/см², что при мощности накачки 1 ГВт, линзе с $F = 35$ см и радиусе пучка на линзе 2.2 мм достигается на расстоянии ≈ 3 см от центра линейной перетяжки. Таким образом, в нашем случае в области от входа в нелинейную среду и почти до линейного фокуса колебательное возбуждение превалирует над электронным.

Но может ли колебательное возбуждение заметным образом изменить показатель преломления? Здесь следует сделать некоторое уточнение. Если принять, что за время длительности импульса (30 пс) количество колебательно возбужденных молекул растет по интегральному закону, то зависимость показателя преломления от времени может быть представлена в нашем случае в виде

$$n(t) = n_0 + \Delta n_1 \left(\int_{-\infty}^t E^2(\tau) d\tau \right) + n_2 \left(\int_{-\infty}^t E^2(\tau) d\tau \right) E^2(t). \quad (5)$$

Второму члену в формуле (5) соответствует нестационарная самофокусировка, при которой спад импульса фокусируется ближе всего к линзе. Третьему члену соответствует оптический эффект Керра при учете возбуждения среды; в этом случае, так же как в случае квазистационарной самофокусировки, и фронт, и спад импульса фокусируются вблизи линейного фокуса.

Величина второго члена в выражении (4) может быть довольно просто рассчитана. В работе [33] приведены величины изменения поляризуемости для нескольких молекул в случае колебательного возбуждения и оптического эффекта Керра: молекула водорода занимает здесь особое место. Для нее оптический эффект Керра весьма мал в силу малой анизотропии этой молекулы, но она обладает самым большим изменением поляризуемости (19%) из-за колебательного возбуждения. Показатель преломления водорода при $p = 100$ атм равен 1.014, соответственно при относительной концентрации возбужденных молекул N^*/N изменение показателя преломления Δn_1 составит $3 \cdot 10^{-3} N^*/N$ [33].

В начальной части нелинейной среды, где превалирует колебательное возбуждение электронами молекул водорода, источником электронов может быть только ионизация легкоионизируемых примесей. Рассчитаем связь между относительной концентрацией возбужденных молекул N^*/N и относительной концентрацией электронов N_e/N . Энергию 1.5 эВ, при которой уже эффективно идет колебательное возбуждение молекул водорода, электрон набирает за $1.5/\Delta\epsilon_E [\text{эВ}]$ столкновений, т.е. при давлении 100 атм за время $2 \cdot 1.5/\Delta\epsilon_E [\text{эВ}]$ фс. За время взаимодействия молекул с полем, примерно равное в этой области нелинейной среды длительности импульса 30 пс, один электрон возбудит $10^4 \Delta\epsilon_E [\text{эВ}] = 2 \cdot 10^{-9} I [\text{Вт/см}^2]$ молекул. Следовательно, $N^*/N = 2 \cdot 10^{-9} I [\text{Вт/см}^2] N_e/N$, а $\Delta n_1 = 6 \cdot 10^{-12} I [\text{Вт/см}^2] N_e/N$. При давлении 100 атм изменение показателя преломления за счет оптического эффекта Керра в случае невозбужденных молекул $\Delta n = n_2 I/c = 0.8 \cdot 10^{-18} I [\text{Вт/см}^2]$, и если $N_e/N > 1.3 \cdot 10^{-7}$, то Δn_1 превзойдет Δn . Последнее означает, что при $N_e/N > 1.3 \cdot 10^{-7}$ оптическая сила линзы, обусловленной изменением показателя преломления за счет колебательного

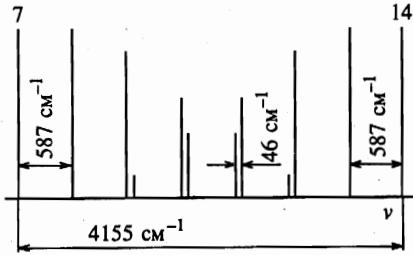


Рис. 10. Структура квазивращательного спектра в интервале линий с $i = 7-14$. Аналогичная структура спектра наблюдалась в интервалах $i = 14-21$ и $i = 21-28$

возбуждения молекул водорода, превысит (а при достаточной плотности электронов и значительно) оптическую силу линзы, обусловленной действием оптического эффекта Керра в случае невозбужденных молекул.

Непосредственно в фокальной области эффективно идет ионизация молекул [34]. Образующаяся плазма за счет дефокусирующего действия электронов оказывает стабилизирующее действие на размер перетяжки. Соответствующая добавка к показателю преломления $\Delta n_{el} = -\omega_{pl}^2/\omega^2$. Каких-либо оценок плазменной частоты ω_{pl} мы не делаем, так как получить оценки концентрации электронов не представлялось возможным. Но тот факт, что эта добавка обратно пропорциональна квадрату частоты, может объяснить увеличение расходимости пучков при увеличении частоты линий квазивращательного спектра. С увеличением частоты уменьшается добавка Δn_{el} , соответственно уменьшается дефокусирующее действие электронной плазмы, пучки излучений с большей частотой сжимаются до меньшего диаметра и сильнее расходятся в дальней зоне.

Отсутствие смещения конца канала является аргументом в пользу того, что самоканалирования не было и образование канала самофокусировки было обусловлено эффектом бегущего фокуса.

4.3. Структура спектральных линий

Детальная структура спектральных линий, образующаяся при давлении выше 60 атм в антистоксовой области, схематично представлена на примере линий $i = 7-14$ (рис. 10). Линии $i = 7, 14$, как и все линии $i = 7n$, являются однокомпонентными, и их частоты определяются соотношением (1) при $m = 0$, т.е. равны частоте n -й колебательной антистоксовой компоненты. По этой причине среднее расстояние между линиями определяется одной седьмой частью от частоты колебательного перехода, т.е. равняется примерно 593 см^{-1} . Линии 8 и 13 являются также практически однокомпонентными. Линии $i = 7 + m$ ($2 \leq m \leq 5$) состоят из компонент (1, m) и (2, $m - 7$). На рис. 9 интенсивности компонент нормированы таким образом, чтобы сумма интенсивностей компонент, составляющих одну линию, не зависела от m . Это соответствует малой зависимости интегральной интенсивности линий в видимой области спектра от их номера (см. рис. 2).

Если ввести понятие общего порядка каскадного процесса, равного $|n| + |m|$, то может быть отмечена следующая закономерность: преимущество получает одна компонента или две компоненты с наименьшим общим порядком. В области давлений, где квазивращательный спектр уже сформировался (> 60 атм), не были отмечены какие-либо проявления фазового синхронизма, характерные для параметрических процессов: квазивращательный спектр при увеличении давления вел себя как единое целое, и энергии линий возрастали одинаковым образом. Если фазовый синхронизм не существует, то

отмеченная выше закономерность совершенно естественна: преимущество получают те компоненты, которые образуются в результате меньшего числа каскадных процессов.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Интенсивное излучение накачки в водороде высокого давления преобразуется в излучение, спектр которого состоит из последовательности линий близкой интенсивности, простирающийся от ИК до УФ диапазона. Линии спектра имеют гладкий пространственный профиль и разделены спектральными интервалами, примерно равными величине вращательного перехода. В фокальной области действует ряд факторов, определяющих ход лучей в этой области: самофокусировка за счет колебательного и электронного возбуждений молекул водорода, дефокусировка за счет электронной плазмы. Учет действия всех этих факторов весьма сложен. Как отмечали Ахманов, Сухоруков и Хохлов в работе [35], даже если режим самоканалирования и не возникает, реальный ход лучей в фокусированном лазерном пучке существенно отличается от вычисляемого в линейном приближении. Речь может идти при этом о волноводном характере распространения накачки и генерируемого излучения, что может обусловить генерацию квазивращательных линий с гладким пространственным профилем излучения. Возможно, что при использовании фокусирующих линз с $F \geq 50$ см этот режим распространения нарушался и спектр и пространственный профиль выходного излучения кардинально изменялись.

В ряде работ было продемонстрировано волноводное распространение световых пучков по ионизованному каналу, создаваемому, например, путем фокусировки в газовую среду другого импульса с помощью конической линзы [36–38]. В работе [39] было рассмотрено так называемое волноводное ВКР, при котором стоково излучение распространялось по волноводу, создаваемому за счет увеличения показателя преломления при колебательном возбуждении молекул водорода. Модовой структурой излучения, распространяющегося по волноводу, объяснялось наличие в стоковом излучении наряду с осевой и конусной составляющей.

Авторы выражают благодарность Н. И. Коротееву, А. В. Андрееву, В. Т. Платоненко, К. Н. Драбовичу, В. П. Кандидову, А. М. Желтикову, О. Г. Косаревой и С. Ю. Никитину за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 95-02-05259-а) и Государственной научно-технической программы «Фундаментальная спектроскопия» (020/2, проект 4.4).

Литература

1. V. Wilke and W. Schmidt, *Appl. Phys.* **18**, 177 (1979).
2. G. B. Jarvis, S. Mathew, and J. E. Kenny, *Appl. Opt.* **33**, 4938 (1994).
3. K. G. H. Baldwin, J. P. Harangos, and D. D. Burgess, *Opt. Comm.* **52**, 351 (1985).
4. А. З. Грасюк, И. Г. Зубарев, А. В. Котов, С. И. Михайлов, В. Г. Смирнов, *КЭЗ*, 1062 (1984).
5. Н. В. Кравцов, Н. Н. Наумкин, *Вестн. Моск. ун-та, сер. 3, физика, астрономия* **36**, вып. 5, 84 (1995).
6. Y. Irie and T. Imasaka, *Opt. Lett.* **20**, 2072 (1995).

7. S. Kawasaki, T. Imasaka, and N. Ishibashi, *J. Opt. Soc. Amer. B* **8**, 1461 (1991).
8. S. Ohtake, S. Yoshikawa, and T. Imasaka, *Appl. Opt.* **34**, 4337 (1995).
9. В. Г. Беспалов, Д. И. Стаселько, *Опт. и спектр.* **65**, 1061 (1988).
10. C. W. Wilkerson Jr., E. Sekreta, and J. P. Reilly, *Appl. Opt.* **30**, 3855 (1991).
11. Л. Л. Лосев, А. П. Луценко, С. Н. Сазонов, *КЭ* **17**, 960 (1990).
12. А. З. Грасюк, Л. Л. Лосев, Д. Н. Никогосян, А. А. Ораевский, *КЭ* **11**, 1872 (1984).
13. P. B. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2268 (1986).
14. P. B. Corkum and C. Rolland, *IEEE J. Quant. Electron.* **25**, 2634 (1989).
15. D. Strickland and P. B. Corkum, *J. Opt. Soc. Amer. B* **11**, 492 (1994).
16. T. R. Gosnell, A. J. Taylor, and D. P. Greene, *Opt. Lett.* **15**, 130 (1990).
17. F. A. Ikov, L. Sh. Ikova, and S. L. Chin, *Opt. Lett.* **18**, 681 (1993).
18. K. Ueda, H. Nishioka, W. Odajima, and H. Takuma, *Laser Phys.* **6**, 260 (1996).
19. В. Б. Морозов, А. Н. Оленин, В. Г. Тункин, *КЭ* **25**, 293 (1998).
20. R. G. Tomlinson, *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-5**, 591 (1969).
21. W. K. Bischel and M. J. Dyer, *Phys. Rev. A* **33**, 3113 (1986).
22. R. A. J. Keijsers, J. R. Lombardi, K. D. Van den Hout, B. C. Sanctuary, and H. F. P. Knaap, *Physica* **76**, 585 (1974).
23. С. А. Ахманов, К. Н. Драбович, А. П. Сухоруков, А. С. Чиркин, *ЖЭТФ* **59**, 485 (1970).
24. R. Carman, F. Shimizu, C. Wang, and N. Bloembergen, *Phys. Rev. A* **2**, 60 (1970).
25. С. А. Ахманов, Н. И. Коротеев, *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света*, Наука, Москва (1981), с. 232.
26. H. A. Nyatt, J. M. Sberlow, W. R. Fenner, and S. P. S. Porto, *J. Opt. Soc. Amer.* **63**, 73 (1973).
27. С. А. Ахманов, А. С. Сухоруков, Р. В. Хохлов, *УФН* **93**, 19 (1967).
28. R. H. Lehberg, C. J. Pawley, A. V. Deniz, M. Klapisch, and Y. Leng, *Opt. Comm.* **121**, 78 (1995).
29. A. J. Alcock, C. DeMichelis, and M. C. Richardson, *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-6**, 622 (1970).
30. Г. А. Аскарьян, *Письма в ЖЭТФ* **4**, 400 (1966).
31. И. Мак-Даниель, *Процессы столкновений в ионизованных газах*, Наука, Москва (1967), с. 262.
32. Ю. П. Райзер, *Физика газового разряда*, Наука, Москва (1992), с. 526.
33. Б. Вильгельми, Э. Гойман, *Ж. прикл. спектр.* **19**, 550 (1973).
34. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, *ЖЭТФ* **17**, 1150 (1964).
35. С. А. Ахманов, А. В. Сухоруков, Р. В. Хохлов, *ЖЭТФ* **50**, 1537 (1966).
36. C. G. Durfee and H. M. Milchberg, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2409 (1993).
37. C. G. Durfee, J. Lynch, and H. M. Milchberg, *Opt. Lett.* **19**, 1937 (1994).
38. T. R. Clark and H. M. Milchberg, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2373 (1997).
39. Ю. А. Ильинский, Г. М. Михеев, *ЖЭТФ* **101**, 1445 (1992).