

Характеристики второй гармоники, генерируемой при филаментации лазерных импульсов в воздухе

Т.А. Дик^{1,2}, Г.Э. Ризаев¹, И.А. Николаева^{1,3}, Д.Е. Шипило^{1,3}, А.В. Корибут^{1,2},
Д.В. Пушкарев¹, М.В. Левусь^{1,3}, Я.В. Грудцын¹, Н.Р. Врублевская^{1,3},
Н.А. Панов^{1,3}, О.Г. Косарева^{1,3}, Л.В. Селезнев¹

¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН
119991, Москва, Россия, Ленинский пр., 53

² Московский физико-технический институт

141701, Долгопрудный, Россия, Институтский переулок, 9, dik.ta@phystech.edu

³ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова
119991, Москва, Россия, Ленинские горы, 1

В данной работе изучается генерация второй гармоники при филаментации фемтосекундных лазерных импульсов в воздухе. Анализируя пространственные и спектральные характеристики второй гармоники, мы выявляем ключевые факторы, влияющие на ее генерацию, включая энергию лазерного импульса, условия фокусировки и давление воздуха. Численное моделирование подтверждает экспериментальные наблюдения, показывая эффективность генерации второй гармоники $\sim 10^{-10}$.

Ключевые слова: филаментация, генерация второй гармоники, пространственное распределение, спектральные характеристики; filamentation, second harmonic generation, spatial distribution, spectral characteristics.

Введение

В режиме филаментации ультракороткие лазерные импульсы могут распространяться на большие расстояния в прозрачных средах, например, в воздухе, что приводит к образованию протяженных плазменных каналов [1, 2]. За прошедшие годы появилось множество предложений по применению филаментации в различных областях, особенно там, где требуется доставка лазерного излучения высокой интенсивности на большие расстояния, например, в молниезащите [3], для удаленного поджига разряда [4], воспламенения горючих смесей [5], а также в атмосферном зондировании, где лазерные филаменты являются источником широкополосного излучения, и в системах LIDAR, где филаментация обеспечивает высокое пространственное разрешение и дальность зондирования [6]. При филаментации происходит множество нелинейных явлений, таких как генерация суперконтинуума [7], третьей гармоники [8], а также генерация терагерцового излучения из лазерно-индуцированной плазмы [9]. Генерация второй гармоники (ГВГ) обычно запрещена в изотропных средах из соображений симметрии. Однако ситуация становится более сложной, когда разделение зарядов и индуцированные электрические поля могут создавать предпочтительное направление для нелинейной поляризации. В работе 1981 года [10] были описаны различные механизмы, которые при определенных условиях приводят к генерации второй гармоники в изотропных средах. Позднее во многих экспериментальных исследованиях сообщалось о генерации нерезонансной второй гармоники в различных газах и парах металлов. Например, в парах натрия была продемонстрирована ГВГ, имеющая два максимума в пространственном распределении, ориентированных вдоль оси линейной поляризации лазерного излучения, и кольцевую структуру при использовании круговой поляризации [11, 12]. ГВГ наблюдалась в различных газах при низком давлении, таких как ксенон [13], водород [14, 15] и аргон [16], где ГВГ изучалась в зависимости от давления и энергии лазерного импульса. В 1996 году явление ГВГ было впервые продемонстрировано в воздухе при атмосферном давлении для фокусированных фемтосекундных лазерных импульсов [17]. В более поздних исследованиях изучалось пространственное распределение второй гармоники, генерируемой в воздушной плазме с жесткой фокусировкой ($NA > 0,2$) лазерного пучка [18, 19]. Несмотря на многочисленные исследования, генерация ГВГ при филаментации в воздухе остается плохо изученной. В настоящей статье мы сосредоточились на экспериментальном исследовании генерации второй гармоники во время филаментации фемтосекундных лазерных импульсов в воздухе. Проводится анализ зависимости ГВГ от различных параметров, таких как давление воздуха, энергия импульса и условия фокусировки.

Эксперимент и результаты

Эксперименты проводились с использованием титан-сапфировой лазерной системы с центральной длиной волны 940 нм. Длительность импульса составляла 90 фс, а энергия импульса достигала 5 мДж. Энергия импульса регулировалась при помощи дифракционного ослабителя. Лазерный пучок диаметром 9 мм на уровне $1/e^2$ фокусировался линзой. Использовались линзы с фокусным расстоянием от 8 до 100 см. В ре-

зультате самофокусировки филаментация происходила до геометрического фокуса, формируя протяженный плазменный канал. После геометрического фокуса, излучение второй гармоники, возникающее в процессе филаментации, двумя последовательно расположенными плоскими дихроичными зеркалами (высокоотражающими для второй гармоники и прозрачными для основной длины волны) направлялось на линзу с фокусным расстоянием 5 см, которая фокусировала его на входную щель спектрометра. Перед входной щелью спектрометра основное излучение дополнительно подавлялось с помощью светофильтра BG38.

На рис. 1, *а* представлен типичный спектр сгенерированной второй гармоники вблизи 470 нм. В длинноволновой области чётко различим край суперконтинуума, формирующегося в процессе филаментации. Для получения пространственного распределения второй гармоники использовалась аналогичная оптическая схема, при этом линза с фокусным расстоянием 5 см формировала изображение перетяжки пучка на ПЗС-матрице. Следует отметить, что угловая расходимость второй гармоники оказалась значительно меньше, чем суперконтинуума. Полученное распределение второй гармоники при энергии лазерного импульса 3 мДж и фокусировке линзой с фокусным расстоянием 1 м показано на рис. 1, *б*. Распределение характеризуется наличием двух максимумов, расположенных вдоль направления поляризации лазерного излучения. Подобные структуры наблюдались и ранее в ряде работ [12, 13, 18, 19], где генерация второй гармоники исследовалась в условиях жёсткой фокусировки. Таким образом, была продемонстрирована возможность ГВГ в процессе филаментации лазерного импульса в воздухе. Далее рассматривается влияние экспериментальных параметров на энергетические характеристики второй гармоники. Однако следует отметить, что исследование этих характеристик методом регистрации изображений с помощью ПЗС-матрицы в широком диапазоне экспериментальных условий сопряжено с определёнными трудностями. Так, по мере увеличения энергии лазерного импульса и числовой апертуры, коротковолновое крыло суперконтинуума начинает перекрываться со второй гармоникой. В результате, использование узкополосных фильтров не позволяет полностью отделить излучение второй гармоники, возникающее в плазме, от суперконтинуума, что приводит к значительным погрешностям. Тем не менее, спектральная форма суперконтинуума является относительно гладкой, в то время как спектр второй гармоники характеризуется выраженным максимумом, что позволяет идентифицировать её на фоне суперконтинуума. Для оценки энергии второй гармоники можно проинтегрировать спектральный пик и вычесть вклад фона от суперконтинуума. Такой подход обеспечивает возможность количественной оценки энергии второй гармоники даже в условиях относительно жёсткой фокусировки и высокой энергии импульса.

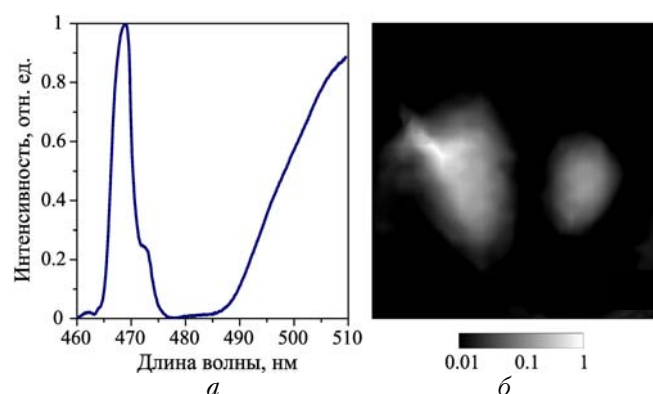


Рис. 1. Спектр второй гармоники и суперконтинуума (*а*); пространственное распределение второй гармоники (*б*)

Как показано в предыдущих исследованиях [20], условия фокусировки существенно влияют на характеристики плазменного канала (размер, плотность плазмы и др.), формирующегося в процессе филаментации. В наших экспериментах использование линзы с коротким фокусным расстоянием (8 см) приводило к значительному — более, чем на порядок — увеличению сигнала второй гармоники по сравнению с длиннофокусной линзой (100 см). Это может объяснять, почему в более ранних работах по генерации второй гармоники в воздухе исследования проводились преимущественно в условиях жёсткой фокусировки [17–19]. Однако применение короткофокусной линзы также приводило к значительному увеличению угловой расходимости второй гармоники, что потребовало изменений параметров схемы регистрации. Таким образом, прямое сравнение энергетических характеристик второй гармоники, полученной при существенно различных фокусных расстояниях, было некорректно. В связи с этим на рис. 2 представлены нормированные зависимости энергии второй гармоники от энергии лазерного импульса при различных условиях фокусировки. Использовались линзы с фокусными расстояниями 8, 40 и 100 см. С увеличением фокусного расстояния возрастал минимальный уровень энергии лазерного импульса, при котором становилось возможным зарегистрировать вторую гармонику — от 0,4 до 1,5 мДж. При всех рассмотренных условиях фокусировки увеличение энергии лазерного импульса приводило к росту энергии второй гармоники.

Другим важным параметром лазерного излучения является его поляризация. Хорошо известно, что при эллиптической поляризации лазерных импульсов энергия третьей гармоники, возникающей в процессе ионизации среды, существенно снижается по сравнению со случаем линейной поляризации [21, 22]. На рис. 3, *а*

представлена зависимость энергии третьей гармоники от энергии лазерного импульса для линейно и эллиптически поляризованных импульсов (с отношением осей 0,6). В случае эллиптической поляризации минимальная энергия, при которой становилось возможным зарегистрировать третью гармонику, была почти вдвое выше и составляла порядка 1,5 мДж. В обоих случаях увеличение энергии лазерного импульса приводило к росту энергии третьей гармоники, однако при линейной поляризации значения энергии третьей гармоники были существенно выше. Иное поведение наблюдалось для энергии второй гармоники (рис. 3, б). Здесь изменение поляризации с линейной на эллиптическую практически не влияло ни на величину энергии второй гармоники, ни на характер ее зависимости от энергии лазерного импульса.

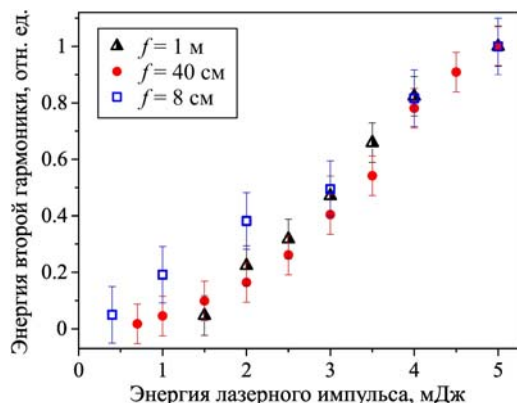


Рис. 2. Зависимость энергии второй гармоники от энергии лазерного импульса при различных фокусировках

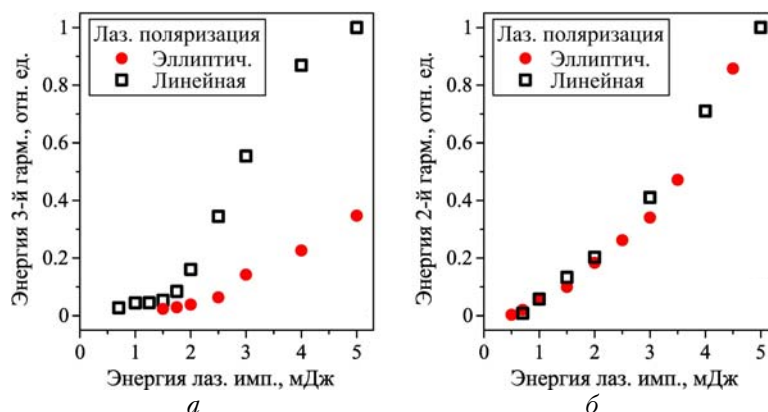


Рис. 3. Зависимость энергии третьей (а) и второй (б) гармоник от энергии лазерного импульса при различных поляризациях

В работе [23] было показано, что внешнее давление оказывает влияние на параметры плазменного канала, формирующегося в процессе филаментации лазерного импульса. На рис. 4 представлена рассчитанная зависимость пиковой электронной плотности плазмы от давления (красные маркеры). Условия расчета подробно описаны в работе [23]. В нашем эксперименте использовался лазерный импульс с энергией около 3 мДж, что примерно в пять раз превышает критическую мощность самофокусировки. Импульс фокусировался линзой с фокусным расстоянием 20 см в вакуумную камеру длиной 20 см. Камера была снабжена окнами из CaF_2 толщиной 4 мм. После выхода из камеры излучение второй гармоники направлялось в спектрометр по ранее описанной схеме. Зависимость энергии второй гармоники от давления воздуха в камере представлена на рис. 4 синими маркерами. Повышение давления приводило к увеличению энергии второй гармоники. Следует отметить, что при пониженных давлениях критическая мощность самофокусировки возрастает пропорционально давлению: $P_{\text{cr}} \sim p$. При давлениях ниже 0,2 атм мощность лазерного импульса становится меньше P_{cr} . Однако в полученных зависимостях не наблюдается резких особенностей. Характер изменения энергии второй гармоники хорошо согласуется с рассчитанной зависимостью пиковой электронной плотности от давления.

Численное моделирование генерации второй гармоники в процессе филаментации лазерного импульса в воздухе проводилось на основе модели, описанной в работе [24]. На рис. 5, а представлен спектр излучения после филаментации. Спектр лазерного импульса, уширенный за счет фазовой самомодуляции, сосредоточен вблизи 940 нм. Отчетливо выраженный спектральный пик в области около 315 нм соответствует третьей гармонике. Эффективность преобразования в третью гармонику составила порядка 10^{-4} , что хорошо согласуется с ранее опубликованными результатами [8]. Значительно меньшая эффективность $\sim 10^{-12}$ была получена для второй гармоники (470 нм). Для оценки эффективности генерации второй гармоники в эксперименте перед фокусирующей линзой был установлен кристалл KDP, а энергия генерируемой гармоники

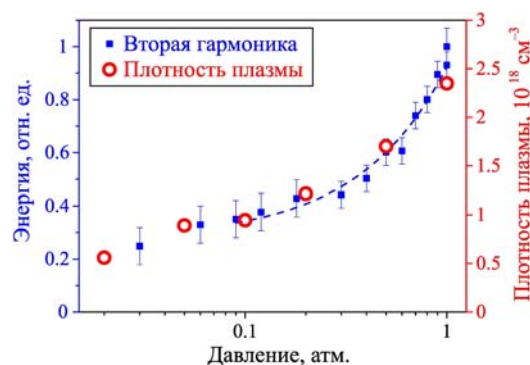


Рис. 4. Зависимость энергии второй гармоники и плотности плазмы от давления

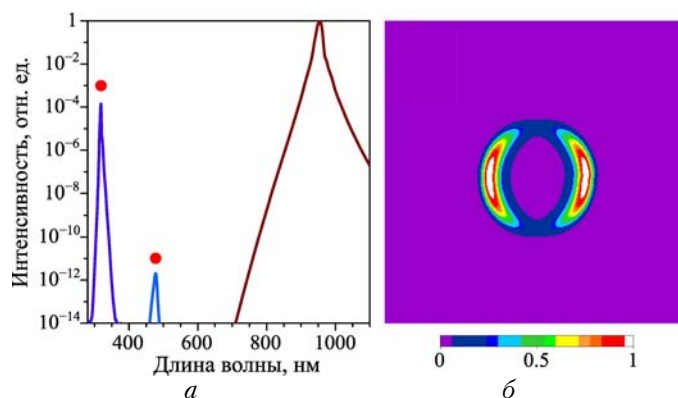


Рис. 5. Численное моделирование спектра после филаментации (а) и пространственного распределения второй гармоники (б)

измерялась с использованием калориметра. Для сопоставления уровня сигнала от кристалла с сигналом, возникающим при филаментации, применялись калиброванные ослабители. Результаты показали, что в рассматриваемых условиях энергия второй гармоники, возникающей в процессе филаментации, составляла порядка нескольких пикоджоулей. Учитывая, что энергия лазерного импульса составляла несколько миллиджоулей, эффективность преобразования во вторую гармонику оценивалась на уровне 10^{-10} , что хорошо согласуется с результатами численного моделирования. Экспериментально измеренные значения эффективности генерации второй и третьей гармоник представлены на Рис. 5а красными маркерами. На Рис.5б показано полученное в результате численных расчетов пространственное распределение второй гармоники, генерируемой в процессе филаментации. Распределение содержит два выраженных максимума вдоль направления поляризации лазерного излучения, что находится в хорошем согласии с нашими экспериментальными результатами (см. рис. 1, б).

Заключение

Таким образом, в данной работе исследованы характеристики второй гармоники, генерируемой в процессе филаментации лазерного импульса в воздухе. Как экспериментальные, так и численные результаты показали, что распределение второй гармоники представляет собой два максимума, ориентированных вдоль плоскости поляризации лазерного излучения. Эффективность преобразования лазерного излучения во вторую гармонику составляет порядка 10^{-10} .

Список литературы

1. Chin S.L. *et al.* The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media: physics, applications, and new challenges // Canadian journal of physics. 2005. Т. 83, N 9. С. 863–905.
2. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // Physics reports. 2007. Т. 441, N 2–4. С. 47–189.
3. Houard A. *et al.* Laser-guided lightning // Nature photonics. 2023. Т. 17, N 3. С. 231–235.
4. Houard A., Mysyrowicz A. Femtosecond laser filamentation and applications // Light Filaments: Structures, challenges and applications. 2021. С. 11–30.
5. Blanchard V.P. *et al.* Characterization of a Femtosecond Plasma Filament in Air by fs/ps Hybrid Coherent Anti-Stokes Raman Scattering // AIAA SCITECH 2025 Forum. 2025. С. 1392.
6. Qi P. *et al.* Sensing with femtosecond laser filamentation // Sensors. 2022. Т. 22, N 18. С. 7076.
7. Skupin S., Bergü L. Supercontinuum generation of ultrashort laser pulses in air at different central wavelengths // Optics communications. 2007. Т. 280, N 1. С. 173–182.

8. Aközbeke N. et al. Third-Harmonic Generation and Self-Channelling in Air Using High-Power Femtosecond Laser Pulses // Physical review letters. 2002. T. 89, N 14. C. 143901.
9. Sun W., Wang X., Zhang Y. Terahertz generation from laser-induced plasma // Opto-Electronic Science. 2022. T. 1, N 8. C. 220003-1-220003-27.
10. Bethune D.S. Optical second-harmonic generation in atomic vapors with focused beams // Physical Review A. 1981. T. 23, N 6. C. 3139.
11. Miyazaki K., Sato T., Kashiwagi H. Spontaneous-field-induced optical second-harmonic generation in atomic vapors // Physical Review Letters. 1979. T. 43, N 16. C. 1154.
12. Miyazaki K., Sato T., Kashiwagi H. Interaction of high-power laser pulses with atomic media. II. Optical second-harmonic generation // Physical Review A. 1981. T. 23, N 3. C. 1358.
13. Malcuit M.S. et al. Anomalies in optical harmonic generation using high-intensity laser radiation // Physical Review A. 1990. T. 41, N 7. C. 3822.
14. Marmet L., Hakuta K., Stoicheff B.P. Second-harmonic generation in atomic hydrogen induced by a charge-separation field // Journal of the Optical Society of America B. 1992. T. 9, N 7. C. 1038–1046.
15. Liu X. et al. Harmonic generation by an intense laser pulse in neutral and ionized gases // IEEE transactions on plasma science. 2002. T. 21, N 1. C. 90–94.
16. Liang Y., Watson J.M., Chin S.L. Second harmonic generation in gases with a high-intensity CO₂ laser // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. 1992. T. 25, N 11. C. 2725.
17. Fedotov A.B. et al. Generation of the second and third harmonics in a laser-produced plasma with 1-kHz 90-fs light pulses // Laser physics. 1996. T. 6, N 2. C. 427–430.
18. Bukin V.V. et al. Femtosecond laser optical gas breakdown microplasma: the ionisation and postionisation dynamics // Quantum Electronics. 2007. T. 37, N 10. C. 961.
19. Beresna M. et al. High average power second harmonic generation in air // Applied Physics Letters. 2009. T. 95, N 12.
20. Théberge F. et al. Plasma density inside a femtosecond laser filament in air: Strong dependence on external focusing // Physical Review E—Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics. 2006. T. 74, N 3. C. 036406.
21. Brunel F. Harmonic generation due to plasma effects in a gas undergoing multiphoton ionization in the high-intensity limit // Journal of the Optical Society of America B. 1990. T. 7, N 4. C. 521–526.
22. Corkum P.B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization // Physical review letters. 1993. T. 71, N 13. C. 1994.
23. Solyankin P.M. et al. THz generation from laser-induced breakdown in pressurized molecular gases: on the way to terahertz remote sensing of the atmospheres of Mars and Venus // New Journal of Physics. 2020. T. 22, N 1. C. 013039.
24. Nikolaeva I.A. et al. Terahertz beam with radial or orthogonal to laser polarization from a single-color femtosecond filament // Optics Express. 2023. T. 31, N 25. C. 41406–41419.

T.A. Dick, G.E. Rizaev, I.A. Nikolaeva, D.E. Shipilo, A.V. Koribut, D.V. Pushkarev, M.V. Levus, Ya.V. Grudtsyn, N.R. Vrublevskaya, N.A. Panov, O.G. Kosareva, L.V. Seleznev. Characteristics of the second harmonic generated during laser pulse filamentation in air.

In this paper generation of the second harmonic during filamentation of femtosecond laser pulses in air is studied. Analyzing the spatial and spectral characteristics of the second harmonic, we identify key factors affecting its generation, including the energy of the laser pulse, focusing conditions, and air pressure. Numerical investigations confirm experimental observations, showing the efficiency of second harmonic generation $\sim 10^{-10}$.