VILNIAUS UNIVERSITETAS FIZIKOS FAKULTETAS LAZERINIŲ TYRIMŲ CENTRAS

Jurgita Strakšytė

KRISTALŲ NETIESINIO LŪŽIO RODIKLIO INFRARAUDONOJOJE SRITYJE NUSTATYMAS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

LAZERINĖ FIZIKA IR OPTINĖS TECHNOLOGIJOS

Jurgita Strakšytė

2021-05-21

dr. Rytis Butkus

prof. Aidas Matijošius

Studentė:

Leista ginti:

Darbo vadovas:

LTC direktorius:

Vilnius 2021

Turinys

Įv	adas		2		
1	Teorinis įvadas		3		
	1.1	Netiesinė optika	3		
	1.2	Netiesinis lūžio rodiklis	3		
	1.3	Netiesinis Kero efektas	4		
	1.4	Netiesinio lūžio rodiklio lemiami procesai	5		
		1.4.1 Pluošto fokusavimasis	5		
		1.4.2 Daugiafotonė sugertis	6		
	1.5	Įvairios n_2 nustatymo metodikos	7		
	1.6	Klasikinis z-skenavimas	8		
2	Netiesinio lūžio rodiklio nustatymo tikslumą naudojant klasikinį z-skenavimą lemiantys				
	veiksnia	i	11		
	2.1	Erdvinių-laikinių šviesos sklidimo savybių įtaka	11		
	2.2	Impulsų trukmė ir pasikartojimo dažnis	12		
3	Literat	ūroje pateikiamos netiesinio lūžio rodiklio vertės tiriamosioms medžiagoms	14		
4	Eksper	imentas	19		
	4.1	Metodinė dalis	19		
	4.2	Tiriamieji bandiniai	20		
	4.3	Eksperimento schema	21		
	4.4	Žadinančios spinduliuotės parametrai	22		
	4.5	Matavimų rezultatai	25		
		4.5.1 Matavimų rezultatai, keičiant spinduliuotės energiją	28		
	4.6	Rezultatų aptarimas	31		
Ρε	Pagrindiniai rezultatai ir išvados				
Li	Literatūros sąrašas				
Sa	Santrauka				
Su	ımmary		42		

Įvadas

Netiesinis lūžio rodiklis (n_2) - lazerių fizikoje itin svarbus medžiagos parametras, dėl jo vykstantys įvairūs netiesiniai procesai plačiai panaudojami praktikoje. Pavyzdžiui - modų sichronizacija [1] femtosekundiniuose lazeriuose gali būti įgyvendinama pasinaudojant Kero lęšio netiesiniu efektu [2]. Tokiu būdu galima sugeneruoti itin trumpus impulsus. Taip pat, dėl medžiagos netiesinio atsako išplintantis spektras leidžia kurti plačios dažnių juostos koherentinės spinduliuotės šaltinius. Kiti netiesinių efektų pritaikymo būdai - netiesinė optinė spektroskopija, optiniai jungikliai ir kt. [3]. Kita vertus, netiesiniai procesai gali turėti ir neigiamų pasekmių - dėl netiesinės sugerties pasireiškia energijos nuostoliai, impulso trukmė ilgėja; dėl pluoštų fokusavimosi netinkamai sukalibravus lazerinę sistemą, galima sukelti optinių elementų pažeidimus.

Netiesinio lūžio rodiklio nustatymui yra sukurta daug eksperimentinių metodikų, iš kurių viena plačiausiai naudojamų dėl savo nesudėtingo eksperimentinio įgyvendinimo ir didelio jautrumo yra vadinamoji z-skenavimo metodika. Tačiau netiesinio Kero koeficiento vertės įvertinimas smarkiai priklauso nuo žadinančios šviesos lauko erdvinio ir laikinio profilio, todėl nepakankamai tikslus šviesos parametrų charakterizavimas dažnai tampa viena pagrindinių priežasčių, lemiančių empiriškai nustatomų n_2 verčių išsibarstymą.

Yra atlikta sąlyginai daug netiesinių medžiagos savybių tyrimų regimojoje bei artimojoje infraraudonosios spinduliuotės srityje, panaudojant fundamentinę kieto kūno lazerių (pvz. Ti:safyro ar Nd:YAG) spinduliuotę bei jų harmonikas. Tačiau matavimai tolimesnėje IR spektrinėje srityje tampa iššūkiu dėl patikimų spinduliuotės vaizdinimo įrenginių trūkumo bei energijos detektorių mažo jautrio. Sunku tiksliai įvertinti pluošto laikinę ir erdvinę struktūrą bei spektrą, o šie parametrai svarbūs nagrinėjant netiesinius reiškinius ir jų atsaką medžiagose. Todėl šiai dienai tyrimų infraraudonojo spektro srityje nėra atlikta daug.

Šio darbo tikslas - nustatyti magnio fluorido (MgF₂), safyro (Al₂O₃), ir cinko selenido (ZnSe) kristalų, anizotropinio BBO kristalo bei lydyto kvarco ir BK7 stiklo netiesinių lūžio rodiklių vertes, bandinius žadinant infraraudonąja spinduliuote 1700-1800 nm srityje ir jas palyginti su literatūroje pateikiamomis bei šio tyrimo pradiniame etape atliktų matavimų metu įvertintomis n_2 vertėmis.

Darbo tikslui įgyvendinti iškelti uždaviniai:

1) Surinkti klasikinio z-skenavimo schemą, skirtą netiesinio lūžio rodiklio nustatymui, naudojant optinio parametrinio stiprintuvo "He-Topas", kaupinamo femtosekundine Ti:safyro lazerine spinduliuote, šalutinę bangą.

2) Charakterizuoti spinduliuotės erdvines, laikines, spektrines ir energines charakteristikas bei įvertinti reikalingas eksperimento sąlygas korektiškam turimų bandinių netiesinio lūžio rodiklio nustatymui ir atlikti z-skenavimo matavimus.

1 Teorinis įvadas

1.1 Netiesinė optika

Tiesinėje optikoje poliarizuotumas (medžiagos tūrio vieneto dipolinis momentas) nuo spinduliuotės elektrinio lauko stiprio priklauso tiesiškai [4]:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} \tag{1}$$

čia **P** - poliarizuotumas, **E** - elektrinio lauko stipris, ε_0 - vakuumo dielektrinė skvarba, $\chi^{(1)}$ - tiesinis optinis jautris.

Netiesinės optikos reiškiniai, kai medžiaga sklindanti spinduliuotė pakeičia jos optinius parametrus, pasireiškia šviesos elektriniam laukui artėjant prie atomo vidinio elektrinio lauko stiprio (10^8 V/cm). Esant stipriam elektriniam laukui ir silpnam netiesiniam poliarizuotumo nariui, poliarizacijos vektorius gali būti išskleistas Teiloro eilute pagal E:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \varepsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 + \varepsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 \dots = \mathbf{P}_{\mathbf{T}} + \mathbf{P}_{\mathbf{NT}}$$
(2)

Čia: $\chi^{(2)}$ - kvadratinis optinis jautris, $\chi^{(3)}$ - kubinis optinis jautris.

Didėjant E laipsniui, tolimesnių eilutės dėmenų įtaka mažėja. Praktiškai, svarbiausi kvadratinis ir kubinis netiesinio poliarizuotumo nariai. Kvadratinio netiesiškumo lemiami optiniai reiškiniai: antrosios harmonikos generacija, suminio ir skirtuminio dažnio generacija, parametrinė šviesos generacija. Dėl kubinio netiesiškumo vyksta superkontinuumo generacija, pluošto fokusavimasis, fazės moduliavimasis, dvifotonė sugertis, trečiosios harmonikos generacija, priverstinė Ramano sklaida. Visos medžiagos pasižymi kubiniu netiesiškumu, o kvadratinis netiesiškumas būdingas tik dielektriniams kristalams, neturintiems simetrijos centro.

1.2 Netiesinis lūžio rodiklis

Netiesinėje optikoje atsiranda medžiagos lūžio rodiklio priklausomybė nuo kritusios spinduliuotės intensyvumo (kuris proporcingas elektrinio lauko stiprio kvadratui):

$$n = n_0 + n_2 I \tag{3}$$

 n_0 - tiesinis lūžio rodiklis, n_2 - netiesinis lūžio rodiklis, I - intensyvumas $[W/cm^2]$;

Dažnai šis efektas vadinamas optiniu Kero efektu, kuriame skirtingai nei elektrooptiniame Kero efekte turimas greitai kintantis elektrinis laukas (ne statinis), o lūžio rodiklio pokyčio atsakas gali būti momentinis arba lėtas.

Poliarizuotumo išraišką (1) taip pat galima užrašyti šitaip:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi_{eff} \mathbf{E} \tag{4}$$

Tada medžiagos lūžio rodiklis:

$$n^2 = 1 + \chi_{eff} \tag{5}$$

O tiesinė ir netiesinė lūžio rodiklio dedamosios:

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} \tag{6}$$

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2 c\varepsilon_0} \chi^3 \tag{7}$$

Iš čia matoma, kad tiesinis lūžio rodiklis n_0 susijęs su pirmos eilės optiniu jautriu, o netiesinis n_2 - su trečios eilės optiniu jautriu. Palengvinti skaičiavimams, buvo daryta prielaida, jog medžiaga izotropinė, spinduliuotė tiesiškai poliarizuota, o netiesinis kubinis jautris - skaliaras (ne tenzorius). Anizotropinių kristalų atveju, nagrinėjant kaskadinių antros eilės netiesinių procesų įtaką, tenzorinės optinio netiesinio jautrio prigimties ignoruoti nebegalima.

Netiesinio lūžio rodiklio atsiradimą gali lemti įvairūs fizikiniai reiškiniai - nerezonansinis elektroninis netiesiškumas (netiesinis Kero efektas), orientacinis netiesiškumas (būdingas medžiagoms, sudarytoms iš polinių molekulių: skysčiams ir dujoms), šiluminis netiesiškumas, netiesiškumas dėl lygmenų užpildos persiskirstymo (būdingas puslaidininkiams, pasireiškia ir dielektrikuose dėl priemaišų sugerties). Taip pat, Kero efektas gali būti indukuojamas vykstant Ramano sklaidai; efektinį kubinį netiesiškumą kuria kaskadiniai antrosios eilės netiesiniai procesai.

1.3 Netiesinis Kero efektas

Veikiant elektriniam spinduliuotės laukui molekulės (ar atomo) elektroninio apvalkalo išorinių elektronų netiesinis atsakas lemia elektroninį netiesiškumą. Jis būdingas visiems skaidriems dielektrikams nepriklausomai nuo jų simetrijos ar agregatinio būvio.

Elektroninio netiesiškumo atsiradimas gali būti paaiškinamas klasikiniu anharmoninio osciliatoriaus modeliu, papildant Lorenco atomo modelį, kuris atomą vaizduoja kaip osciliuojantį dipolį [5]. Tiesinėje optikoje, atomo elektronus veikiantis elektrinis laukas juos iš pusiausvyros padėties pastumia nedaug ir grąžinanti jėga harmoninė. Tačiau jei medžiaga veikiama intensyvaus elektrinio lauko, elektronai paslenkami toli nuo pusiausvyros padėties ir poslinkiai nebėra tiesiškai proporcingi veikiančiam išoriniam laukui. Taigi, elektrono potencialas tampa anharmoniniu (1 pav.).



1 pav. Elektrono potencinės energijos funkcija necentrosimetrinėje (a) ir centrosimetrinėje (b) medžiagose [4]

Netiesinis lūžio rodiklis, atsirandantis dėl elektroninio netiesiškumo yra teigiamas bei siekia 10^{-20} [m^2/W] ir yra mažiausias iš galimų kubinių netiesiškumų. Šio proceso netiesinis atsakas greitas ($\tau \simeq 10^{-16}$ s), kadangi sužadinimas vyksta į virtualius lygmenis, kurių gyvavimo trukmė maža.

Kaskadinis netiesiškumas priklauso nuo fazinio nederinimo ir gali būti tiek teigiamas, tiek neigiamas. Tam, kad suminis netiesiškumas būtų neigiamas (defokusuojantis), fazinis nederinimas turi būti pakankamai mažas, kad būtų tenkinama sąlyga $|n_2^{kask}| > n_2^{Kerr}$ (Kero riba). Neigiamą efektinį netiesiškumą galima panaudoti laikinių solitonų kūrimui artimojoje IR srityje [6] ar fokusavimosi įtakai sumažinti (tai leistų padidinti spinduliuotės energiją nesukeliant optinio medžiagos pramušimo). Kaskadinis netiesiškumas ne tik konkuruoja su medžiagos kubiniu netiesiškumų, bet taip pat kuria impulso fronto statėjimą [7], gali lemti aukštesnių eilių (penktos, septintos eilės ir t.t.) netiesiškumo atsiradimą [8].

1.4 Netiesinio lūžio rodiklio lemiami procesai

Trečios eilės netiesinis poliarizuotumas lemia šviesos saviveikos reiškinių atsiradimą - pluoštų fokusavimąsi, ultratrumpųjų impulsų fazės moduliavimąsi ir dėl jo stebimą spektro plitimą, superkontinuumo, šviesos gijų generaciją. Taip pat, didėjant spinduliuotės intensyvumui pasireiškia netiesinė sugertis. Z-skenavimo eksperimentas remiasi fazinio fronto iškraipymo, dėl kurio vyksta pluošto fokusavimosi reiškinys, registravimu. Kitų vykstančių procesų įtakos stengiamasi išvengti - dirbama tokioje spinduliuotės intensyvumo srityje, kai superkontinuumo generacija dar nevyksta, o daugiafotonė sugertis kaip galima mažesnė.

1.4.1 Pluošto fokusavimasis

Pluošto fokusavimusi vadinamas procesas, kai intensyvus šviesos pluoštas, turintis nevienalytį erdvinį pasiskirstymą, sklisdamas medžiaga, pakeičia jos lūžio rodiklį ir dėl to pradeda elgtis kaip lęšis [9]. Dėl terpės lūžio rodiklio pokyčio iškreipiamas pluošto fazinis frontas ir jei $n_2 > 0$, medžiaga elgsis kaip glaudžiamasis lęšis ir pluoštą fokusuos, o jei $n_2 < 0$, medžiaga elgsis kaip sklaidantysis lęšis ir pluoštas bus defokusuojamas.



2 pav. Gauso pluošto fokusavimasis

Pluošto fokusavimasis pavaizduotas 2 pav. Gauso pluošto intensyvumas didžiausias centre ir į kraštus mažėja. Iš (3) formulės matyti, kad medžiagos lūžio rodiklis n priklauso nuo spinduliuotės intensyvumo ir medžiagoje yra nevienodas - dėl to vyksta fokusavimasis/defokusavimasis. Analogiškai, impulsui sklindant optine terpe, Kero efektas sukuria fazės pokytį - labiausiai fazė atsilieka centre (kur intensyvumas maksimalus) ir mažiau kraštuose - susidaro taip vadinamas Kero lęšis. Prie labai didelių intensyvumų, vykstant pluošto fokusavimuisi, pluoštas gali kolapsuoti į šviesos giją, kur intensyvumas dar labiau išauga. Tai įvyksta, viršijus kritinę galią P_{kr} (fokusavimosi efektas kompensuoja pluošto difrakciją) [10]:

$$P_{kr} = \frac{0.148 \cdot \lambda^2}{n_0 \cdot n_2} \tag{8}$$

Pluoštų fokusavimosi atitikmuo laikinėje skalėje - impulso fazės moduliavimasis. Dėl jo spektre atsiranda naujų spektrinių komponenčių. Esant elektroniniam netiesiškumui fazės pokytis tiesiogiai proporcingas impulso intensyvumui, todėl spektras išplinta simetriškai.

1.4.2 Daugiafotonė sugertis

Didėjant lazerio spinduliuotės intensyvumui, medžiaga gali sugerti kelis fotonus vienu metu. Paprasčiausias netiesinės sugerties atvejis - dvifotonė sugertis. Jos metu, atomas sužadinamas į realų lygmenį per virtualų sugeriant du to paties arba skirtingo dažnio fotonus (3 pav. pavaizduota dviejų vienodo dažnio fotonų vienalaikė sugertis).



3 pav. Dvifotonė sugertis

Netiesinės sugerties tikimybė auga tiesiškai didėjant lazerio spinduliuotės intensyvumui (tuo tarpu tiesinė sugertis yra konstanta ir nuo intensyvumo nepriklauso).

Vykstant netiesinei sugerčiai, sumažėja medžiagos pralaidumas - atsiranda energijos nuostoliai [11]. Tai nusako diferencialinė lygtis dvifotonės sugerties atveju:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2 \tag{9}$$

Čia α - tiesinės absorbcijos koeficientas (dėl priemaišų medžiagoje), β - dvifotonės sugerties koeficientas (susijęs su trečios eilės optiniu jautriu).

Taip pat, vykstanti daugiafotonė sugertis iškraipo ultratrumpųjų (t.y. 10 ps ir trumpesnių) impulsų laikinį profilį, dėl to sumažėja spinduliuotės smailinis intensyvumas, o kartu padidėja impulso trukmė. Be to, daugiafotonės sugerties tikimybė didėja, trumpėjant bangos ilgiui.

Didėjant spinduliuotės intensyvumui, gali vykti trifotonė sugertis (susijusi su penktos eilės optiniu jautriu) ar dar aukštesnių eilių netiesinė sugertis. Bendrai, lygtis aprašanti n + 1 fotonų sugertį iš vieno optinio pluošto (t.y. kai sugeriami vienodo dažnio fotonai) atrodo taip:

$$\frac{dI}{dz} = -(\alpha + \gamma^{(n+1)}I^n)I \tag{10}$$

 $\gamma^{(n+1)}$ - n+1 eilės daugia
fotonės sugerties koeficientas, matuojamas m $^{2n-1}/W^n.$

Taip pat, ultratrumpųjų impulsų atveju, gali pasireikšti tunelinė ir daugiafotonė jonizacija.

1.5 Įvairios n_2 nustatymo metodikos

Bendrai, netiesinio lūžio rodiklio nustatymo metodikos gali būti išskirtos į vienspindulines - kai netiesinė medžiaga apšviečiama stipriu šviesos pluoštu ir už bandinio nagrinėjamas to paties pluošto pokytis arba žadinimo-zondavimo, kai medžiaga apšviečiama stipriu žadinimo ir silpnu zondavimo pluoštu. Žadinimo pluoštas modifikuoja zondavimo pluoštą ir už bandinio registruojamas zondavimo pluošto kitimas [12].

Netiesinio lūžio rodiklio nustatymui naudojami įvairūs metodai. Interferometrinis - kai n_2 dydis ir ženklas nustatomi pagal pasislinkusį dėl netiesinio lūžio rodiklio indukuoto fazės po-

kyčio interferencinį vaizdą atraminio atžvilgiu (atraminis interferencinis vaizdas gaunamas be bandinio arba su žinomo n₂ bandiniu) [13–15]. Šio metodo techninis išpildymas gana sudėtingas, be to eksperimentas neatsparus aplinkos triukšmams. Keturbangio maišymo eksperimentas n₂ vertės nustatymui remiasi χ^3 radimu iš suminio trijų bangų signalo [16–18], kurio efektyvumas priklauso nuo fazių sutapimo sąveikaujančioms bangoms. Šio metodo naudojimą komplikuoja sudėtingas pluoštų suvedimas. Dar vienas netiesinio medžiagos atsako nustatymo būdas pluošto nuokrypio [19] metodas. Žadinimo pluoštas su zondavimo pluoštu sukertamas tokiu kampu, kad indukuotas lūžio rodiklio gradientas būtų didžiausias. Dėl lūžio rodiklio gradiento zondavimo pluoštas nukreipiamas nuo pradinės sklidimo krypties. Išmatuotas nuokrypio kampas susijęs su lūžio rodiklio gradientu, kuris savo atžvilgiu susijęs su netiesiniu lūžio rodikliu. Šiuo metodu galima nustatyti netiesinio lūžio rodiklio dydį ir ženklą, o užvėlinant pluoštus vieną kito atžvilgiu, galima išskirti greito ir lėto atsako netiesiškumus. Taip pat, netiesinį lūžio rodiklį galima nustatyti išmatuojant ultratrumpųjų impulsų fazę dažnių skyros laikinės sklendės metodu (angl. FROG) [20]. Nuo intensyvumo priklausančiam medžiagos lūžio rodikliui nustatyti egzistuoja ir daugiau eksperimentinių technikų.

1.6 Klasikinis z-skenavimas

Pirmą kartą z-skenavimo metodika pristatyta 1989 m. [21]. Z-skenavimo metodas remiasi fazės pokyčio, atsiradusio dėl netiesinių procesų, matavimu. Ši metodika leidžia nesunkiai iš registruojamos pralaidumo kreivės nustatyti netiesinio lūžio rodiklio ženklą ir dydį. Taip pat, atlikus atviros apertūros z-skenavimą, eliminuoti daugiafotonės sugerties įtaką. Be standartinio vienspindulinio z-skenavimo eksperimento uždaros ir atviros apertūros pralaidumo matavimų, egzistuoja ne viena z-skenavimo variacija - EZ-skenavimas, baltos šviesos z-skenavimas, žadinimo-zondavimo z-skenavimas (laike neišskirtas ir laike išskirtas) ir kt. Z-skenavimo eksperimentinė technika dažnai pasirenkama dėl savo didelio jautrio, paprastumo ir aiškaus duomenų interpretavimo. Trūkumas - šis metodas jautrus visiems netiesiniams reiškiniams ir juos iš eksperimentinių rezultatų ne visada galima pašalinti, būtina aukšta pluošto erdvinė kokybė bei impulso forma.

Eksperimento metu, skenuojant ploną bandinį išilgai fokusuoto Gauso skirstiniu aprašomo pluošto sklidimo krypties, registruojamas (detektoriumi D2) netiesinės terpės pralaidumo kitimas T(z) tolimajame lauke už baigtinės apertūros (mažesnės už pluošto diametrą) ir normuojamas į atraminio detektoriaus (D1) signalą t.y. T(z) = $\frac{D2}{D1}$ (pav. 4).



4 pav. Principinė z-skenavimo schema. D1, D2 - detektoriai, PD - pluošto daliklis, L - fokusuojantis lešis

Tarkim, turimas skaidrus bandinys pasižymi $n_2 > 0$ ir yra plonas. Pradedama skenuoti toli nuo židinio plokštumos (-z). Registruojamas pralaidumas iš esmės pastovus - pluošto intensyvumas nedidelis ir netiesiniai efektai nežymūs. Bandiniui artėjant link židinio, intensyvumas didėja, pluoštas pradeda išsifokusuoti - pluoštas ties apertūra išplinta ir detektorius registruoja pralaidumo sumažėjimą. Toliau skenuojant link +z, perėjus pluošto židinio plokštumą, pluoštas dėl fokusavimosi kolimuojamas, ties apertūra stebimas jo susiaurėjimas, o atitinkamai detektorius registruoja pralaidumo padidėjimą. Skenavimas baigiasi, bandiniui esant toli už židinio, kai pralaidumas vėl tampa konstanta. Taigi, esant elektroniniam netiesiškumui (kai $n_2 > 0$), z-skenavimo eksperimento metu gaunama būdinga "įdubos-smailės" (angl. valley-peak) pralaidumo kreivė. Jei turėtume $n_2 < 0$, būtų atvirkščiai - pirma būtų registruojamas pralaidumo padidėjimas (smailė), o praėjus židinio plokštumą - sumažėjimas (įduba). Jei nėra netiesiškumų dėl sugerties - įdubos-smailės kreivė simetriška. Tačiau vykstant daugiafotonei sugerčiai, įduba pagilėja, o smailė sumažėja ir T(z) priklausomybė tampa nesimetrine. Kai pasiekiama sugerties sotis, smailė padidėja, o įduba sumažėja. Pašalinus apertūra, netiesinio lūžio pasireiškimo nebegalima registruoti - pluoštas pilnai praeina pro diafragmą. Tačiau z-skenavimas išlieka jautrus netiesinei sugerčiai. Todėl, papildomai atlikus atviros apertūros z-skenavimą, galima nustatyti netiesinės sugerties dydį ir pašalinti jos įtaką iš uždaros apertūros eksperimento.

Tam, kad z-skenavimo eksperimentas galiotų, turi būti tenkinamos kelios sąlygos:

1) Galioja lėtai kintančios gaubtinės aproksimacija (kelių optinių ciklų impulsams modelis nebegalios);

2) Bandinys - plonas (pokyčiai bandinio viduje dėl difrakcijos ar netiesinio lūžio yra nykstamai maži). Tam turi būti tenkinamos salygos:

2.1) Tiesinei difrakcijai turi galioti - L «
 z_0 (dažniausiai pakanka ir L
 $< z_0);$

2.2) Netiesinei difrakcijai turi galioti L « $\frac{z_0}{\Delta \varphi_0}$ t.y. bandinio ilgis turi būti mažesnis nei maksimalus fazės pokytis. Kadang
i $\Delta \varphi$ įprastai būna mažas, sąlygą galima pakeisti į L< $z_0;$

3) Aukštesnės eilės nei trečios netiesiškumai nenagrinėjami;

4) Pluoštas aprašomas Gauso skirstiniu (tiek laikinis, tiek erdvinis profilis)

. L - bandinio ilgis, $z_0 = \frac{kw_0^2}{2}$ Relėjaus (difrakcinis) ilgis, $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ - banginis vektorius, w_0 - Gauso pluošto spindulys 1/e² aukštyje, $\Delta \varphi$ - netiesinis fazės pokytis.

Pluošto erdvinės struktūros už bandinio tolimajame lauke modeliavimas remiasi Gauso dekompozicijos (GD) metodu - bendras elektrinis laukas užrašomas kaip Teiloro eilutė Gauso pluoštams.

Pralaidumo kreivės parametrai nepriklauso nuo bangos ilgio ar geometrijos, kai apertūros plokštumai galioja tolimojo lauko sąlyga (t.y. atstumas nuo židinio plokštumos iki apertūros yra gerokai didesnis už Relėjaus ilgį: d » z_0), bet smarkiai priklauso nuo apertūros tiesinio pralaidumo S (kuo didesnis S, tuo prasčiau matomi T(z) pokyčiai). Todėl, atliekant z-skenavimo eksperimentą $0,1 \leq S \leq 0,5$.

Pagrindinis matuojamas parametras - atstumas tarp pralaidumo kreivės įdubos ir smailės ΔT_{p-v} . Su fazės pokyčiu $|\Delta \varphi|$ ir apertūros tiesiniu pralaidumu S jis siejasi taip (± 3 proc. tikslumu):

$$T_{p-v} \simeq 0,406(1-S)^{0,25} |\Delta\varphi|, \text{ kai } |\Delta\varphi| \le \pi$$
(11)

Iš čia fazės pokytis:

$$|\Delta\varphi| = \frac{\sqrt{2}\Delta T_{p-v}}{0,406(1-S)^{0,25}}$$
(12)

O netiesinis lūžio rodiklis:

$$n_2 = \frac{\Delta\varphi_0}{kI_0L_{eff}} = \left(\frac{\lambda}{2\pi}\right) \frac{\Delta\varphi_0}{I_0L_{eff}} \tag{13}$$

I₀ - intensyvumo vertė ties židiniu, Leff - bandinio efektinis ilgis. Daugiklis $\sqrt{2}$ skaičiuojant fazės pokytį atsiranda dėl laikinio vidurkinimo Gauso impulsui.

$$Leff = \frac{(1 - e^{-\alpha L})}{\alpha} \tag{14}$$

L - bandinio ilgis, α - ties
inės sugerties koeficientas Skaidriems bandiniams Leff
 \approx L.

2 Netiesinio lūžio rodiklio nustatymo tikslumą naudojant klasikinį zskenavimą lemiantys veiksniai

Šiame skyriuje bus trumpai aptariami kai kurie aspektai, į kuriuos svarbu atsižvelgti, norint teisingai įvertinti netiesinio lūžio rodiklio vertės iš klasikinio z-skenavimo eksperimento apsiribojant parametrais, svarbiausiais skaidrių kondensuotų dielektrinių terpių tyrimui.

2.1 Erdvinių-laikinių šviesos sklidimo savybių įtaka

z-skenavimą aprašantis matematinis modelis remiasi prielaida, kad matavimams naudojamas idealus (pasižymintis apskritimine simetrija aplink sklidimo ašį) Gauso funkcija aprašomas pluoštas, tačiau realūs pluoštai dažnai esti eliptiniai, o kartais ir astigmatiniai, kas smarkiai apsunkina tiek eksperimentinę, tiek matematinę netiesinio medžiagų lūžio rodiklio nustatymo dalį.

1996 m. S. M. Mian [22] išplėsdamas plonojo lęšio banginės optikos modelį eliptiniams pluoštams, teoriškai ištyrė pluoštų eliptiškumo įtaką z-skenavimo kreivėms. Uždaros apertūros matavimo atveju, smailės-įdubos formos signalas, didėjant pluošto eliptiškumui, asimetriškai slopsta (5 pav.), o esant žymiam astigmatizmui, su pakankamai nutolusiais židiniais, kreivėse gali atsirasti papildomų smailių (įdubų). Pluošto eliptiškumas lemia ir atviros apertūros zskenavimo signalo iškraipymus - nežymią asimetriją, minimumo amplitudės pokytį.



5 pav. Pluošto eliptiškumo (kairėje) ir astigmatizmo (dešinėje) įtaka uždaros apertūros pralaidumo kreivėms. Adaptuota pagal [22]

Z-skenavimui naudojant eliptinius ar astigmatinius pluoštus atlikus teorinį modeliavimą,

pasiūlyta apskritiminę apertūrą pakeisti plyšiu [23]. Visgi, praktiškai dažniausiai pasirenkama arba pagerinti naudojamo pluošto parametrus optiniais metodais (pavyzdžiui, naudojant erdvinį filtravimą), z-skenavimą atlikti žinomo netiesinio lūžio rodiklio bandinio atžvilgiu [24] arba pluošto sklidimo įtaką įskaityti matematinio modeliavimo pagalba.

Taip pat, pluoštui asimetriškai sklindant, ne vien iškraipomos z-skenavimo matavimo kreivės, tačiau ir impulso smailinis intensyvumas įvertinamas netiksliai, kas savo ruožtu įtakoja klaidingą netiesinio lūžio rodiklio vertės nustatymą [25].

Svarbu paminėti, kad norint iš eksperimentinių kreivių nustatyti n₂, svarbu atsižvelgti ir į impulso laikinės gaubtinės formą. Pavyzdžiui, naudojant Gauso funkcija aprašomus impulsus, laikiniam vidurkinimui empiriškai nustatytą atstumą tarp smailės ir įdubos ΔT_{p-v} reikia padauginti iš $\sqrt{2}$ [26].

2.2 Impulsų trukmė ir pasikartojimo dažnis

Kaip minėta 1.2 poskyryje, netiesinę sąveiką gali lemti skirtingi fizikiniai mechanizmai ir, bendru atveju, eksperimentiškai nustatytas n_2 gali būti efektinis kelis procesus įskaitantis parametras. Kiekvienas netiesinis vyksmas turi savo trukmę ir yra stebimas tik kai šviesosmedžiagos sąveikos trukmė (impulso trukmė) yra palyginama su netiesinio proceso laiko konstanta. Tačiau, z-skenavimo metodika pati savaime neleidžia išskirti atskirų netiesinių procesų pagal kilmę, taigi į tai būtina atsižvelgti pasirenkant eksperimentui naudojamų impulsų trukmę.

Nanosekundinių impulsų atveju, pluošto fokusavimosi reiškinys yra įtakojamas optinio Kero efekto, elektrostrikcijos¹ bei šiluminių reiškinių [27]. Šiluminio netiesiškumo įtaka šiuo atveju mažiausia, kadangi tiesinis sugerties koeficientas nykstamai mažas, o daugiafotonei sugerčiai pasireikšti pasiekiamas impulsų intensyvumas nėra pakankamas. Pavyzdžiui, lydyto kvarco atveju, įvertinta netiesinio lūžio rodiklio vertė, lyginant su vien elektroninio netiesiškumo lemiama verte, padidėja [28]: T. Olivier atlikto z-skenavimo eksperimento su Nd:YAG lazerio spinduliuote ties fundamentiniu bangos ilgiu išmatuota n₂ vertė 20 ns trukmės impulsui buvo lygi $(4.9 \pm 0.6) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ ir $(3.9 \pm 0.5) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ kai impulso trukmė 7 ns.

Impulsams trumpėjant, šviesos ir medžiagos sąveikos laikas trumpėja, o intensyvumas didėja. Tūriniuose skaidriuose dielektrikuose esant pikosekundiniams ir trumpesniems impulsams pagrindiniai vykstantys netiesiniai procesai - optinis Kero efektas ir daugiafotonė sugertis (bei dėl jos pasireiškiantis laisvųjų krūvininkų sužadinimas). Kadangi ne elektroninių netiesiškumų įtaka impulsams trumpėjant menksta, išmatuota n_2 vertė mažėja. Reikia paminėti, jog atliekant z-skenavimo eksperimentus bandinius žadinant trumpais impulsais, svarbu atsižvelgti į spinduliuotės intensyvumą - esant didelei intensyvumo vertei laisvųjų krūvininkų indėlis dėl plazmos defokusavimo pasireiškia kaip terpės lūžio rodiklio sumažėjimas ir taip pat gali

¹Elektrostrikcija - procesas, kai intensyvus šviesos elektrinis laukas medžiagoje sukuria tankio pokyčius (akustines bangas), kurie keičia terpės lūžio rodiklį dėl fotoelastinio efekto.

iškraipyti matavimo rezultatus [29].

Ultratrumpų impulsų atveju ($\tau \leq 1$ ps), ypač kai kalbama apie kelių dešimčių femtosekundžių trukmės impulsus, gali tekti atsižvelgti ir į jų laikinę dispersiją - kuo trumpesnis impulsas, tuo platesnį spektrą jis apima ir tuo mažesnis yra dispersijos ilgis medžiagoje. Tai vėlgi sukuria impulso smailinio intensyvumo nustatymo paklaidą (kartu ir netiesinio lūžio rodiklio vertės).

Esant trumpiems impulsams, tačiau dideliam lazerio impulsų pasikartojimo dažniui (dažniausiai laikoma, kad f > 10 kHz, nors priklausomai nuo eksperimento sąlygų ir tiriamos medžiagos savybių, reikšmingas impulsų pasikartojimo dažnis gali būti ir mažesnis), gali pasireikšti kaupiamieji šiluminiai reiškiniai (pasireiškiant terpės įšilimui dėl daugiafotonės sugerties). Tai nutinka, kai laiko tarpas tarp impulsų yra mažesnis nei charakteringas šiluminės difuzijos laikas t_c [30]:

$$t_c = w_0^2 / 4D \tag{15}$$

čia w_0 - pluošto radiusas židinyje, D - šiluminės difuzijos koeficientas $[cm^2s^{-1}]$. Tokiu atveju, medžiaga tarp impulsų nespėja grįžti į pradinę temperatūrą ir pradeda formuotis kvazipastovus temperatūros erdvinis pasiskirstymas - šiluminis lęšis. Temperatūrinis netiesiškumas priklauso nuo apšvietimo geometrijos ir nėra medžiagos parametras, todėl siekiama jo įtakos išvengti.

3 Literatūroje pateikiamos netiesinio lūžio rodiklio vertės tiriamosioms medžiagoms

Šiame darbe atlikti z-skenavimo matavimai įvairioms terpėms infraraudonojoje spinduliuotės srityje, kur tyrimų atlikta nedaug. Norint susipažinti su z-skenavimo metodika ir jai svarbiais parametrais ir jų įtaka netiesinio lūžio rodiklio verčių nustatymui ankstesniuose mokslinio tyrimo etapuose atlikti matavimai naudojant 1030 nm bangos ilgio spinduliuotę. Norint įvertinti matavimų patikimumą ir bendras n₂ kitimo tendencijas skirtingiems bangoms ilgiams, rastos tyrimų publikacijose pateikiamos netiesinio lūžio rodiklio vertės nagrinėjamoms medžiagoms. 1 ir 2 lentelėse nurodytos literatūroje pateikiamos netiesinio lūžio rodiklio vertės lydytam kvarcui, BK7 stiklui, safyrui ir BBO kristalui, išmatuotos ties dažniausiai naudojamų kieto kūno lazerių fundamentiniais bangos ilgiais. 3 lentelėje nurodytos literatūroje pateikiamos netiesinio lūžio rodiklio vertės tiriamosioms medžiagoms, išmatuotos $\lambda = 1310-3900$ nm bangos ilgių intervale. Verta pastebėti, kad rastas tik vienas tyrimas, skirtas BBO kristalo netiesinio lūžio rodiklio vertės nustatymui infraraudonosios spinduliuotės srityje, tačiau tai irgi yra santykinis matavimas (gauta vertė normuota į žinomo netiesiškumo medžiagos - lydyto kvarco - vertę).

Medžiaga	$n_2 \cdot 10^{-20}, m^2/W$
FS	$3,0 \pm 0,1 \;(800 \; \mathrm{nm} \; [31])$
	2,3 (800 nm [32])
	2,65 (800 nm [33])
	$2,82 \pm 0,30 \ (804 \text{ nm, suprasil } [34])$
	$3,21 \pm 0,24$ (804 nm, herasil [34])
	$2,48 \pm 0,23 \;(804 \text{ nm } [20])$
	$2,23 \pm 0,12 \ (1030 \ \mathrm{nm} \ [35])$
	$2{,}19\pm0{,}05~(1030~{\rm nm}~[36])$
	$2{,}73\pm0{,}27~(1064~{\rm nm}~[37]$)
	$2,14 \pm 0,4 \ (1064 \ \mathrm{nm} \ [38])$
	$2,46 \ (1064 \ \mathrm{nm} \ [39])$
	$3,9 \pm 0,5 (7 \text{ ns}) \text{ ir } 4,9 \pm 0,6 (20 \text{ ns}) (1064 \text{ nm } [28])$
Al_2O_3	$3,10\pm0,7 \ (1064 \ nm \ [38])$
	$3,1 \ (800 \ \mathrm{nm} \ [40])$
	$2,5\pm0,35 \ (1064 \ nm \ [13])$
	2,75 (1030nm [41])
BK7	3,00 (780 nm [42])
	$3,75 \pm 0,30 \;(804 \; \mathrm{nm} \; [34])$
	$3,63 \pm 0,012 \;(810 \; {\rm nm} \; [43])$
	$2,42 \pm 0,27 \ (1030 \ \mathrm{nm} \ [35])$
	3,62 (1064 nm [39])
	$3,43 \pm 0,34(1064 \text{ nm } [37])$

1 lentelė. Tiriamųjų medžiagų literatūroje pateikiamos n
2 vertės, bangos ilgių intervale $\lambda=780\text{-}1064~\mathrm{nm}$

Eil. Nr.	$n_2 \cdot 10^{-20}, m^2/W$
1	$4,0\pm0,5$ (780 nm, šviesos poliarizacija išilgai X ašies t.y. $\phi=0,[44])$
2	$3,2\pm0,5$ (780 nm, šviesos poliarizacija išilgai Y ašies t.y. $\phi=90,[44])$
3	$4,5 \pm 1,0 \;(800 \text{ nm}, [45])$
4	$4,6 \pm 0,8 \;(800 \text{ nm}, [7])$
5	$4,87 \pm 0,44 \ (1032 \text{ nm}, \ [46])$
6	6,03 (1064 nm, FWM [47])
7	4,18 (1064 nm, z-scan [47])
8	$2,78 \pm 0,51 \ (1064 \ \mathrm{nm}, \ [38])$
9	$7,4 \pm 2,22 \ (1064 \ \mathrm{nm}, \ [48])$
10	$5,00 \pm 1,0 \ (1064 \text{ nm}, \ [49])$

2 lentelė. Literatūroje pateikiamos
 \mathbf{n}_2^{Kerr} vertės BBO kristalui. λ = 780-1064 nm

3 lentelė. Literatūroje pateikiamos
 n_2 vertės tiriamosioms medžiagoms bangos ilgių interval
e $\lambda=1310\text{-}3900~\mathrm{nm}$

Medžiaga	$n_2 \cdot 10^{-20}, m^2/W$
MgF ₂	$1,10 \pm 0,22 \ (2000 \ nm, \ [50])$
FS	$2,79 \pm 0,56 \ (1550 \ {\rm nm}, \ [51])$
	$2,80 \pm 0,56 \ (2000 \ nm, \ [50])$
Al_2O_3	$2,80 \pm 0,84 \ (1550 \ nm, \ E c, \ [52])$
BK7	$3,50 \pm 0,70 \ (2000 \ nm, \ [50])$
BBO	3,43 (vidutinė vertė bangos ilgių intervale nuo 460 iki 1600 nm, $[53]$)
ZnSe	120,00 (1310 nm, monokristalinis, [54])
	$110,00 \ (1550 \ nm, \ monokristalinis, \ [54])$
	118,00 (1700 nm, monokristalinis, $[55]$)
	$150,00 \pm 30 \ (2000 \text{ nm}, [50])$
	$120,00 \pm 30 \; (3900 \; \text{nm}, [50])$

Toliau pateikta trumpa informacija apie literatūroje rastų netiesinio lūžio rodiklio verčių nagrinėjamoms medžiagoms 1310-3900 nm bangos ilgių intervale tyrimus, eksperimentų para-

metrus.

[54]: Naudota z-skenavimo metodika. Spinduliuotės šaltinis - Ti:safyro lazeriu kaupinama OPA spinduliuotė (t = 1 ps, f = 1 kHz). Nustatytos netiesinio lūžio rodiklio vertės 1 mm storio ZnSe monokristaliniam bandiniui ties 1300 ir 1550 nm. Pluoštas fokusuotas į \approx 56 µm dėmę; eksperimentai atliekami naudojant 0,4-1,2 µJ energiją (atitinkamas smailinis intensyvumas I₀ = 25-75 GW/cm²). Pluošto Relėjaus ilgis buvo lygus \approx 1,9 mm. Taip pat, atliktas žadinimo-zondavimo z-skenavimas ties tiriamais bangos ilgiais ir pastebėta, jog ties 1300 nm, daugiafotonės sugerties metu generuojami laisvieji krūvininkai susilpnina efektinį kubinį netiesiškumą ir pakeičia netiesinio atsako laikinę charakteristiką, kas nepageidautina fotoninių prietaisų taikymuose; ties 1550 nm daugiafotonės sugerties įtaka buvo nykstamai maža.

[52]: 550-1550 nm srityje, naudojant klasikinio z-skenavimo metodiką, įvertintos netiesinio lūžio rodiklio vertės 1 mm storio safyro kristalui. Žadinimui naudota Ti:safyro lazeriu kaupinama optinio parametrinio stiprintuvo (OPA) spinduliuotė (t = 1 ps, f = 1 kHz). 1250-1550 nm srityje pluoštas buvo fokusuojamas į $\approx 54 \ \mu$ m dėmę (eksperimentui naudotas smailinis intensyvumas 150-300 GW/cm²).

[51]: Netiesinis lūžio rodiklis nustatomas skirtingo tipo šviesolaidžiams (tarp jų ir vienmodžiam grynos lydyto kvarco šerdies šviesolaidžiui) kryžminės fazės moduliacijos metodu, naudojant depoliarizuotą kaupinimo spinduliuotę. Zondavimui naudota 17 μ W galios lazerinio diodo spinduliuotė, o kaupinimui - 20 mW erbiu legiruotame šviesolaidiniame stiprintuve pastiprinta lazerinio diodo spinduliuotė. Tiek žadinimo, tiek zondavimo spinduliuotės bangos ilgis buvo lygus 1550 nm.

[53] : Atlikti z-skenavimo eksperimentai, žadinant OPA, kaupinamo Ti:safyro lazeriu, signaline banga intervale nuo 400 nm iki 1500 nm. Impulsų trukmė buvo lygi 150 fs, f = 1 kHz. Pluošto kokybei pagerinti naudotas erdvinis filtravimas. Kaip etaloninė medžiaga, naudotas lydyto kvarco bandinys. BBO kristalo storis buvo apytikriai lygus 1 mm. Autoriai nustatė, jog netiesinio lūžio rodiklio vertės tiriamojoje bangos ilgių srityje buvo artimos ir pateikta tik vidutinė n₂ vertė. Spinduliuotės sklidimo kampas kristalo optinės ašies atžvilgiu ar žadinančios bangos poliarizacija nenurodyta.

[50]: Atliekami z-skenavimo matavimai ties $\lambda = 2000$ nm (OPA, kaupinamo Ti:safyro lazerine sistema, šalutinė banga. f = 1 kHz, t = 90 fs) ir 3900 nm (skirtuminis dažnis tarp signalo ir šalutinės bangos iš OPA, kaupinamo Ti:safyro lazerine sistema. f = 10 Hz, t = 240 fs). Atliktas erdvinis filtravimas. Pluošto spindulys nustatomas viendimensiu peilio ašmenų skenavimu ir sąsmaukoje buvo lygus 31 μ m ($\lambda = 2000$ nm. $z_R = 1,5$ mm) ir 51 μ m ($\lambda = 3900$ nm, $z_R = 2,1$ mm). Bandinių storiai: 1 mm (BK7), 3 mm (MgF₂), 1 mm (lydytas kvarcas), 2 mm (ZnSe). Pateiktos n₂ vertės - nustatytų verčių iš matavimų su skirtingomis energijomis vidurkis.

[55]: Naudojant z-skenavimo metodiką, įvertinta netiesinio lūžio rodiklio dispersija 1 mm

storio ZnSe monokristaliniam bandiniui, bangos ilgių intervale nuo 1200 nm iki 1950 nm, žadinimui naudojant Ti:safyro lazerine sistema kaupinamo optinio parametrinio stiprintuvo spinduliuotę (t = 1 ps, E = 1 μ J). Pluošto erdvinei struktūrai pagerinti naudotas erdvinis filtras. Fokusuojama, priklausomai nuo bangos ilgio 15 cm arba 17,5 cm židinio nuotolio lęšiu į ≈ 28 μ m dėmę. Eksperimentui naudota impulsų energija E = 70-600 nJ (atitinkamas maksimalus ašinis intensyvumas I₀ = 4-40 GW/cm²).

4 Eksperimentas

4.1 Metodinė dalis

Impulso trukmės matavimui naudotas skenuojantis autokoreliatorius Geco (Light Conversion). Jo veikimo principas paremtas nekolinearia antrosios harmonikos generacija netiesiniame BBO kristale. Vėlinant vieną impulsą kito atžvilgiu, gaunamas antros eilės impulso intensyvumo autokoreliacijos signalas, kurio pusės aukščio plotis su Gauso impulso FWHM trukme susijęs taip:

$$\tau_{0.5} = \Delta T_{0.5} / \sqrt{2} \tag{16}$$

Siame eksperimente pluošto radiuso nustatymui naudojamas peilio ašmenų metodas viena ašimi [56]. Jo esmė - pluoštas pamažu uždengiamas peiliu, jį transliuojant statmena pluošto sklidimui kryptimi (6 pav.), o už peilio esantis detektorius matuoja spinduliuotės galios kitimą. Gaunama kreivė Gauso pluoštui aprašoma formule:

$$P(x) = \frac{P_T}{2} \left[1 + erf(\frac{\sqrt{2}(x - x_0)}{w_0})\right]$$
(17)

Čia w₀ - pluošto spindulys $1/e^2$ aukštyje, $P_T = \frac{\pi}{2} w_0^2 I_0$, I_0 - maksimali spinduliuotės smailinio intensyvumo vertė, x - peilio pozicija, erf(z) - Gauso klaidos funkcija².



6 pav. Pluošto spindulio nustatymas peilio ašmenų metodu

Gauta galios kitimo kreivė aproksimuojama analitine funkcija ir iš jos surandama išmatuoto pluošto spindulio vertė.

Naudojant šią metodiką, negalima tiksliai įvertinti pluošto erdvinio skirstinio, tačiau ji naudinga nesant galimybės spinduliuotės stebėti kamera ir yra paprasčiau įgyvendinama bei greitesnė nei, pavyzdžiui, pluošto erdvinio skirstinio įvertinimas skenuojant mažo diametro apertūrą ir taip sudarant dvidimensį detektoriaus registruojamo signalo verčių masyvą.

2

$$erf(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt$$
 (18)

Pluošto erdvinį intensyvumo pasiskirstymą bei diametrą taip pat galima įvertinti panaudojant kamerą. 1700 nm šviesai turima mikrobolometrinė kamera WinCamD-IR (Dataray) nėra jautri, todėl norint įvertinti pluošto kolimavimą bei diametrą, bangos ilgis buvo nuderinamas į 1900 nm. Bet kameros pikseliai yra gana gana dideli - 17x17 μ m, taigi įvertinama pluošto matmenų ir erdvinės struktūros tikslumas nėra didelis.

Spinduliuotės galia matuojama šiluminiu galios matuokliu 3A-SH-ROHS (Ophir).

Eksperimentui automatizuoti naudojama Labview programinėje aplinkoje parašyta programa. Joje nuskaitomi signalinio ir atraminio detektorių (7 pav. D1 ir D2) signalai, kuriuos galima stebėti gyvai, atliekamas jų signalų normavimas. Labview programoje vykdomas ir motorizuotų transliacinių linijų valdymas, z-skenavimas bei pluošto spindulio matavimas, galima atlikti pirminį z-skenavimo duomenų apdorojimą.

4.2 Tiriamieji bandiniai

Šiame darbe tiriami įvairūs NIR ir mid-IR (artimojoje ir viduriniojoje infraraudonosios spinduliuotės srityje) skaidrūs kristalai - MgF₂, Al₂O₃, ZnSe, BBO ($\theta_c = 32^\circ, \phi = 90^\circ$) bei stiklai - FS (lydytas kvarcas) ir BK7. Lydytas kvarcas bei BK7 stiklas yra dielektrinės izotropininės terpės, tuo tarpu safyras bei magnio fluoridas pasižymi nedideliu anizotropiškumu. BBO - antros eilės netiesiškumu pasižymintis anizotropinis kristalas, dažnai naudojamas antros harmonikos generacijai. Jame, be Kero netiesiškumo, pasireiškia ir kaskadiniai antros eilės netiesiniai reiškiniai, kurie imituoja kubinį netiesiškumą ir gali tiek padidinti, tiek sumažinti įvertinamą efektinę n_2 vertę, todėl norint išvengti jų įtakos, z-skenavimo matavimas atliekamas kristalą pastačius tokiu kampu, kad žadinančios spinduliuotės atžvilgiu, kampas su kristalo optine ašimi būtų toli nuo sinchronizmo antrosios harmonikos sąveikai taško. ZnSe bandinys - polikristalinis puslaidininkis, kuriame gali pasireikšti atsitiktinis kvazisinchronizmas (angl. Random Quasi Phase Matching), tačiau laikoma, jog šiame tyrime naudotiems intensyvumams (21 GW/cm² 2 mm storio ZnSe bandiniui ir 5 GW/cm² 5 mm storio bandiniui) antros eilės netiesinių reiškinių efektyvumas nebuvo žymus. Visi bandiniai, išskyrus ZnSe pasižymi anomalia grupinių greičių dispersija ties eksperimente naudotais bangos ilgiais. Bandinių storis ir jo santykis su eksperimentiniu pluošto Relėjaus ilgiu z_R nurodyti 2 lentelėje. Relėjaus ilgis - atstumas per kurį pluošto spindulio (diametro) vertė padidėja per $\sqrt{2}$ karto, lyginant su jo verte sąsmaukoje. z-skenavimui būtina sąlyga yra $L < z_0$, čia L - bandinio storis. Nustatyta eksperimentinė Relėjaus ilgio vertė buvo lygi $z_R = 12,4$ mm. Tuo tarpu teoriškai apskaičiuota Relėjaus ilgio vertė, pluošto radiusui sąsmaukoje esant $w_0 = 163 mum$ buvo lygi $z_R^{teor} = 49.4$ mm.

Turimų anizotropinių $AgGaS_2$ (sidabro tiogalatas, AGS) ir GaSe bandinių paviršiaus kokybė buvo nepakankamai gera, kad būtų galima atlikti z-skenavimo matavimus patikimai.

Bandinys	Storis L, mm	z_R/L
MgF_{2}	$2,\!1$	$5,\!9$
FS	$3,\!0$	4,1
BK7	$2,\!1$	$5,\!9$
Al_2O_3	4,0	$3,\!1$
BB0	0,8	$15,\!5$
ZnSe-1	2,0	6,2
ZnSe-2	$5,\!0$	2,5

4 lentelė. Tiriamieji bandiniai. Pluošto Relėjaus ilgio santykis su bandinio storiu.

4.3 Eksperimento schema

Z-skenavimo eksperimentinė schema, naudota n_2 nustatymui pavaizduota 7 pav. Žadinimui naudota šalutinė parametrinio stiprintuvo He-Topas (Light Conversion), kaupinamo Ti:safyro lazerine sistema ($\lambda = 800$ nm, t = 45 fs, f = 1 kHz, E = 7 mJ) banga. Norima spinduliuotės energija parenkama atenuatoriumi, sudaryto iš $\lambda/2$ plokštelės (nulinės eilės, pritaikyta $\lambda_0 =$ 2000 nm) ir Briusterio kampu išstatytos ZnSe plokštelės. Toliau pluoštas atvedamas į erdvinį filtrą, sudarytą iš +25 cm židinio nuotolio lęšio (L1), 200 μ m diametro metalinės apertūros (A2) ir +20 cm židinio nuotolio kolimuojančio lešio (L2). Dalis spinduliuotės pluošto dalikliu (PD) atspindima į atraminį detektorių (D1), o likusi toliau fokusuojama +25 cm židinio nuotolio lęšiu (L3). Tiriamasis bandinys (B) skenuojamas išilgai z ašies panaudojant 30 cm ilgio motorizuota transliacine linija (TS). Matuojant pluošto spindulio kitima jam sklindant išilgai z ašies, vietoj bandinio ant pagrindinės vėlinimo linijos karietėlės tvirtinama statmenai pluošto sklidimo krypčiai judantis transliacinis staliukas, ant kurio pritvirtintas peilis. Toliau pluoštas praeina pro z-skenavimo apertūrą (A2), kuri yra pastatyta per tris židinio nuotolius nuo fokusuojančio lešio (L3) (tolimojo lauko sąlyga) ir yra fokusuojamas į signalinį detektorių (D2). Signalui registruoti naudojami PbS (darbinis bangos ilgių intervalas - 1-2.9 μ m) fiksuoto stiprinimo detektoriai PDA30G-EC (Thorlabs). Krintančios į atraminį detektorių ir patenkančios į eksperimento schemą šviesos intensyvumas ribojamas ND filtrais (F1 ir F2).



7 pav. z-skenavimo eksperimentinė schema. V1-V4 - metaliniai veidrodžiai, $\lambda/2$ - pusės bangos fazinė plokštelė, L1-L4 - lęšiai, A1-A3 - apertūros, PD - pluošto daliklis, TS - transliacinis staliukas, F1, F2 - filtrai, D1, D2 - detektoriai.

4.4 Žadinančios spinduliuotės parametrai

Matavimai atlikti, žadinimui naudojant $\lambda \approx 1700$ nm ir 1800 nm spinduliuotę. Šie bangos ilgiai pasirinkti, kadangi impulso dispersinis plitimas pasireiškia silpniau, nei tolimesniems bangos ilgiams bei generuojamas antros harmonikos spektras (reikalingas impulso trukmei nustatyti) yra toliau nuo naudojamo Si detektoriaus jautrio krašto. Dauguma tiriamųjų medžiagų ties šiais bangos ilgiais pasižymi anomalia dispersija. 1700 nm šalutinė banga artėja link parametrinės sąveikos išsigimusio režimo bangos ilgio ir todėl didėja tikimybė, jog spinduliuotės energinis stabilumas bus neapakankamas. Dėl šios priežasties matavimai kai kuriems bandiniams buvo atlikti su 1800 nm spinduliuote. InGaAs spektrometru AvaSpec-NIR256-2.5 išmatuotas žadinančios spinduliuotės spektras pavaizduotas 8 pav. Jo centrinis bangos ilgis $\lambda_0 = 1680$ nm, o spektro plotis (FWHM) $\Delta \lambda = 95$ nm. Toks spektro plotis spektriškai ribotam Gauso impulsui atitiktų t = 43,7 fs trukmę.



8 pav. Žadinančios spinduliuotės spektras. Centrinis bangos ilgis $\lambda_0 = 1680$ nm

Impulso trukmė buvo išmatuota prieš z-skenavimo optinę schema bei po erdvinio filtro kolimuojančio lęšio (gautos autokoreliacinės funkcijos pavaizduotos 9 pav. Išmatuota trukmė prieš eksperimento schemą buvo lygi t = 42,1 fs, o po kolimuojančio lęšio t = 51,1 fs (naudojant 1700 nm bangos ilgi). Eksperimente yra naudojama lydyto kvarco optika - lęšiai, pluošto daliklis, kurių bendras storis yra ≈ 11 mm. Teoriškai, pagal formulę 19 įvertinta impulso trukmė atsižvelgus į optiniuose elementuose patiriamą dispersinį plitimą (laikant, kad pradinė impulso trukmė lygi spektriškai riboto impulso trukmei) buvo lygi t = 54.3 fs. Impulso trukmės taip pat išmatuotos ir į kolimuotą pluoštą įdėjus tiriamuosius bandinius. Magnio fluoridas, safyras, lydytas kvarco, BK7 stiklas ir BBO kristalas ties eksperimentui naudotais bangos ilgiais pasižymi anomalia grupinių greičių dispersija ir impulsas sklisdamas šiomis terpėmis dispersiškai plisdamas, įgyja neigiamą čirpą. Tuo tarpu, cinko selenidas šioje bangos ilgių srityje turi normalią dispersiją. Todėl, 2 mm storio ZnSe bandinyje sklindant impulsui, jo trukmė mažėja, kadangi didesnių bangos ilgių spektrinės komponentės sklinda greičiau nei mažesnių bangos ilgiu ir yra kompensuojamas prieš tai patirtas neigiamas čirpas (išmatuota impulso trukmė buvo lygi 48 fs). 5 mm storio ZnSe bandinyje impulso trukmė iš pradžių sumažėjo iki spektriškai riboto impulso trukmės, tačiau bandinio ilgis buvo pakankamai didelis, kad impulsas įgytų teigiamą čirpą ir buvo registruojamas impulso trukmė pailgėjimas iki 102 fs.

Impulso trukmė matavimams naudojant 1800 nm, išmatuota po erdvinio filtro kolimuojančio lęšio buvo lygi t = 69 fs.

$$t = t_0 \sqrt{1 + (\frac{4GGDL\ln 2}{t_0^2})}$$
(19)

Čia GGD - grupinių greičių dispersijos koeficientas, t_0 ir t - atitinkamai pradinė impulso trukmė ir trukmė, jam prasklidus tam atstumą L dispersinėje terpėje



9 pav. Normuotos autokoreliacinės intensyvumo funkcijos, išmatuotos prieš z-skenavimo schemą (kairėje) ir prieš bandinį (be fokusuojančio lęšio) 1700 nm spinduliuotei. x ašyje - laikas femtosekundėmis, y ašyje - santykinis intensyvumas

Parinkus OPA šalutinės bangos ilgį 1900 nm, buvo galima įvertinti pluošto diametrą pasinaudojant mikrobolometrine kamera. 10 pav. parodytas pluošto skirstinys, išmatuotas po erdvinio filtro kolimuojančio lęšio. Matoma, jog pluošto erdvinė struktūra yra tvarkinga, eliptiškumas yra mažas (išmatuoti pluošto diametrai $1/e^2$ aukštyje x ir y ašyse atitinkamai 3,05 ir 2,90 mm). Galima teigti, kad pluošto matmenys, ties 1700 nm irgi bus panašūs.



10 pav. Pluošto skerspjūvis po kolimuojančio lęšio. $\lambda_0=1900~\mathrm{nm}$

Peilio ašmenų metodu x ašyje išmatuotas pluošto spindulio kitimas už z-skenavimo fokusuojančio lęšio. Pluošto radiuso vertė židinyje buvo lygi $w_0 = 163 \ \mu m$, žadinant bandinius 1700 nm spinduliuote ir $w_0 = 71 \ \mu m$ esant 1800 nm bangos ilgio šviesai.



11 pav. Pluošto sklidimas už fokusuojančio ($\mathbf{f}=+25~\mathrm{cm}$) lęšio

4.5 Matavimų rezultatai

Tiriamiesiems bandiniams išmatuotos uždaros ir atviros apertūros z-skenavimo kreivės. x ašyje nurodyta transliacinės linijos padėtis milimetrais (čia z = 0 žymi linijos centrą), o y ašyje - normuotas detektuojamas z-skenavimo signalas, uždaros apertūros matavimas žymimas UA, atviros - AA, o UA/AA - padalintas signalas.

Uždaros apertūros z-skenavimo kreivė turi informaciją apie netiesinio lūžio rodiklio vertę ir ženklą bei apie netiesinę sugertį, o atviros apertūros z-skenavimo signalas nusako vien netiesinę sugertį, todėl abiejų signalų santykis nurodo registruojamo pralaidumo pokyčius vien dėl pluošto fokusavimosi (lemiamus netiesinio lūžio rodiklio).

Kubinis netiesiškumas n_2 įvertinamas iš normuoto pralaidumo signalo radus atstumą tarp įdubos ir smailės ΔT_{p-v} ir, panaudojant formules (12, 13).

BBO kristalui, norint išvengti kaskadinių antros eilės netiesinių reiškinių įtakos, matavimai atliekami taip, kad žadinimo spinduliuotės kampas su kristalo optine ašimi būtų pakankamai nutolę nuo sinchronizmo taško ir į kaskadinių procesų įtaką būtų galima neatsižvelgti.

 n_2 matavimo paklaida nustatoma įskaitant impulso trukmės ir energijos, fazės pokyčio ir pluošto spindulio sąsmaukoje įvertinimo paklaidas. Santykinė lūžio rodiklio neapibrėžtis su 95% pasikliaujamumu (2 σ) išreiškiama taip (čia Δ - standartinis nuokrypis):

$$\Delta n_2^{sant} = 2\sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2 + \left(\frac{2\Delta w_0}{w_0}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\varphi}{\varphi}\right)^2} \tag{20}$$

Tada atskiro matavimo n_2 paklaida:

$$\Delta n_2 = \Delta n_2^{sant} \cdot n_2 \tag{21}$$

Išmatuotos z-skenavimo eksperimentinės kreivės pavaizduotos 12 - 15 pav. (žadinančios spinduliuotės parametrai $\lambda \approx 1700$ nm, t = 51 fs, w₀ = 163 µm). Kaip matoma iš atviros apertūros matavimo duomenų, visuose tiriamuosiuose bandiniuose, išskyrus MgF₂ kristalą, su naudotomis impulso energijomis, pasireiškė netiesinė sugertis.



12 pav. Eksperimentinės z-skenavimo kreivės MgF₂ bandiniui, naudojant atitinkamai 4,9 μ J (atitinkamas smailinis intensyvumas I₀ = 229 GW/cm²) (kairėje) ir 8,3 μ J (I₀ = 389 GW/cm²) (dešinėje) energijas.



13 pav. Eksperimentinės z-skenavimo kreivės. Kairėje - lydyto kvarco bandiniui (E = 4,8 μ J, I₀ = 213 GW/cm²), dešinėje - BK7 stiklui (E = 4,8 μ J, I₀ = 225 GW/cm²)



14 pav. Eksperimentinės z-skenavimo kreivės. Kairėje - safyro bandiniui (E = 2,5 μ J, I₀ = 104 GW/cm²). Dešinėje - BBO kristalui (E = 4,6 μ J, I₀ = 146 GW/cm², θ = 36°).



15 pav. Eksperimentinės z-skenavimo kreivės. Kairėje - 2 mm storio ZnSe bandiniui (E = 0,5 μ J, I₀ = 22 GW/cm²), dešinėje - 5 mm storio ZnSe bandiniui (E = 0,2 μ J, I₀ = 5 GW/cm²)

Nustatant netiesinio lūžio rodiklio vertes tiriamosioms medžiagoms, įskaičiuoti nuostoliai dėl Frenelio atspindžio, bei atsižvelgta į impulso dispersinį plitimą bandinyje (skaičiuojant smailinį intensyvumą, laikyta, kad impulso trukmė bandinyje - vidurkis tarp impulso trukmės išmatuotos be bandinio ir su bandiniu).

Apskaičiuotos netiesinio lūžio rodiklio vertės buvo didesnės, negu tikimąsi ir todėl buvo sunormuotos pagal lydyto kvarco vertę, išmatuotą ties 1550 nm [51], laikant, kad n₂ dispersija tarp 1550 ir 1700 nm yra maža. Šiame darbe įvertinta n₂ vertė lydyto kvarco bandiniui buvo 1,37 karto didesnė nei nustatyta [51] (t.y. lygi $3.8 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$). 3 lentelėje pateiktos šiame darbe santykiniu tikslumu nustatytos netiesinio lūžio rodiklio vertės.

Medžiaga	$n_2 \cdot 10^{-20}, m^2/W$
MgF ₂	$1,13 \pm 0,19$
FS	$2{,}79\pm0{,}27$
Al_2O_3	$3{,}64\pm0{,}50$
BK7	$3{,}70\pm0{,}50$
ZnSe-1	$120,00 \pm 18,45$
ZnSe-2	$118,00 \pm 10,11$

5 lentelė. Šiame darbe nustatytos santykinės n_2 vertės tiriamosioms medžiagoms

4.5.1 Matavimų rezultatai, keičiant spinduliuotės energiją

Norint įvertinti ar eksperimentinio netiesinio lūžio rodiklio verčių įvertinimui naudotos impulsų energijos buvo tinkamos - t.y. ar be pluošto fokusavimosi reiškinio galimai nepasireiškė nepageidaujami procesai, tokie kaip pluošto filamentacija, ryškus spektro plitimas ir kiti reiškiniai, siejami su per didele impulso energija, buvo atlikti matavimai BBO ir lydyto kvarco bandiniams, keičiant žadinančios spinduliuotės energiją (žadinančios spinduliuotės parametrai $\lambda \approx 1800$ nm, t = 69 fs, w₀ = 171 μ m). z-skenavimo matavimai BBO kristalui atlikti, žadinimui naudojant "o" poliarizacijos šviesą, spinduliuotei sklindant statmenai bandinio paviršiui, taip, kad su kristalo optine ašimi būtų sudaromas kampas $\theta = 36^{\circ}$, šis kampas yra toli nuo sinchronizmo ($\theta_0^{1800} = 20^{\circ}$) ir kaskadinių reiškinių įtaka nėra įskaitoma. Eksperimentinės z-skenavimo kreivės pavaizduotos 16 ir 17 pav., 18 pav. - įvertintos netiesinio lūžio rodiklio vertės. Matoma, jog tiriamame energijų intervale netiesinio lūžio rodiklio vertės panašios, tačiau mažėjant impulso energijai, blogėja signalo-triukšmo santykis ir atstumą ΔT_{p-v} tampa sunku patikimai įvertinti.



16 pav. z-skenavimo signalo kitimas, keičiant energiją BBO kristalui, žadinant "o" poliarizuota šviesa. Taškai žymi normuotų uždaros ir atviros apertūros matavimų santykį, ištisinė linija - aproksimacijos kreivę.



17 pav. z-skenavimo signalo kitimas, keičiant energiją lydyto kvarco bandiniui. Taškai žymi normuotų uždaros ir atviros apertūros matavimų santykį, ištisinė linija - aproksimacijos kreivę.



18 pav. Santykinės netiesinio lūžio rodiklio vertės es
ant skirtingoms energijoms BBO ir FS bandiniams

4.6 Rezultatų aptarimas

Siame darbe apskaičiuotos netiesinio lūžio rodiklio vertės santykiniu tikslumu sunormuotos į literatūroje pateiktą n₂ vertę lydytam kvarcui išmatuotą ties 1550 nm [51] - bangos ilgiui, artimiausiam naudotam šiame eksperimente. Norint išsiaiškinti, ar įvertintų netiesinio lūžio rodiklio verčių skirtumas nuo tikėtinų buvo lemtas per didelio matavimams naudojamo intensyvumo, atliktas z-skenavimo eksperimentas BBO kristalo ir lydyto kvarco bandiniams keičiant spinduliuotės energiją, tačiau nustatomų netiesinio lūžio rodiklio verčių priklausomybė nuo energijos nebuvo pastebėta, o eksperimentuose naudojami spinduliuotės intensyvumai bandiniams buvo panašūs, kaip ir naudoti ankstesniuose tyrimuose (šiame darbe naudoti $I_0^{1700,180} = 35-390$ GW/cm², atliekant matavimus su 1030 nm žadinančia spinduliuote - $I_0^{1030} = 35-400$ GW/cm²).

Kaip minėta, vienas pagrindinių veiksnių, lemiančių eksperimento netikslumą yra smailinio intensyvumo bandinyje vertės įvertinimas. Visų pirma, naudotame žadinimo spinduliuotės bangos ilgių intervale yra sudėtinga įvertinti pluošto erdvinį intensyvumo pasiskirstymą ir jo kitimą, ypač sąsmaukoje, kur pluošto fokusavimosi kokybė yra kritiškai svarbi (tiek pluošto erdvinio skirstinio apskritimiškumas, tiek ir bangos fronto kitimas arti židinio - pavyzdžiui, aštriai fokusuojant galimas pluošto suskilimas); ir pluošto diametro įvertinimas 1D peilio ašmenų metodu gali būti nepakankamas. Intensyvumo nustatymui svarbu ir impulso trukmė. Naudojant plataus spektro femtosekundinius impulsus infraraudonosios spinduliuotės srityje tampa žymūs impulsų dispersinio plitimo efektai, tiek naudojamoje optikoje, tiek ir pačiuose tiriamuosiuose bandiniuose; medžiagos gali pasižymėti tiek normalia, tiek anomalia dispersija. Tada tampa sunku įvertinti, kokia turėtų būti reali impulso trukmė, kuriai esant patiriamas registruojamas fazės pokytis. Be to, galimas impulso trukmės pokytis dėl medžiagos netiesiškumo. Dispersinius efektus optiniuose elementuose galima sumažinti, naudojant ne pralaidumo, o atspindinčią optiką, tačiau tada susiduriama su kitomis problemomis - padidėja tokios optinės aberacijos, kaip, pavyzdžiui, astigmatizmas; reikia papildomai atsižvelgti į optinius elementus krintančios spinduliuotės intensyvumą ir pan. Norint išvengti impulso smailinio intensyvumo įvertinimo neapibrėžties dėl vykstančių dispersinių procesų matuojant medžiagų parametrus IR srityje, būtų tiksliau eksperimentą atlikti naudojant siauro spektro, didesnės trukmės impulsus.

Ankstesniuose mokslo tiriamuosiuose darbuose naudojant z-skenavimo metodiką buvo išmatuotos n_2 vertės tiriamiesiems lydyto kvarco, BK7 stiklo ir BBO kristalo bandiniams, juos žadinant $\lambda = 1030$ nm Yb:KGW lazerio fundamentine spinduliuote. Gautos vertės paklaidų ribose sutapo su literatūroje pateikiamomis vertėmis tame bangų ilgių diapazone ($\lambda = 800$ -1064 nm). BBO bandiniui taip pat buvo įvertinta kaskadinių procesų įtaka priklausomai su spinduliuotės kritimo kristalo optinės ašies atžvilgiu; matavimai atlikti tiek su "o", tiek su "e" poliarizuota šviesa. 19 pav. nurodytos įvertintos ankstesniuose tyrimuose nustatytos absoliutinės netiesinio lūžio rodiklio vertės minėtiems bandiniams ties 1030 nm bei šiame darbe nustatytos santykinės n_2 vertės ties 1700 nm ir 1800 nm.



19 pav. Šiame darbe nustatytos netiesinio lūžio rodiklio vertės lydyto kvarco, BK7 stiklo ir BBO bandiniams ties 1700 ir 1800 nm bei ankstesniuose tyrimuose nustatytos vertės ties 1030 nm.

Įdomu pastebėti, jog netiesinio lūžio rodiklio vertės lydytam kvarcui, išmatuotos ties 1030 nm yra mažesnės nei esant 1700 nm ir 1800 nm bangos ilgiams $(n_2^{exp}(1030) = (2,33 \pm 0,19) \cdot 10^{-20} m^2/W, n_2^{exp}(1700) = (2,79 \pm 0,27) \cdot 10^{-20} m^2/W, n_2^{exp}(1800) = (2,75 \pm 0,34) \cdot 10^{-20} m^2/W.$ Panaši tendencija stebima ir nagrinėjant literatūroje pateikiamas vertes - vidutinė vertė 1030 ir 1064 nm bangos ilgiams - $n_2^{lit}(1030,1064) = 2,31 \cdot 10^{-20} m^2/W$, kai 1500 nm, 2000 nm bangos ilgiams $n_2^{lit}(1550,2000) = 2,80 \cdot 10^{-20} m^2/W$, kai tuo tarpu n_2 verčių vidurkis, įvertintas ties 800 nm yra artimas nustatomai vertei IR srityje - $n_2^{lit}(800) = 2,76 \cdot 10^{-20} m^2/W$. To priežastis nėra aiški, bet viena iš galimų prielaidų būtų, kad 1030 nm ir 1064 nm yra palyginti netoli tiesinio lūžio rodiklio dispersijos nulio lydytam kvarcui $(\lambda_0^{disp} \approx 1300 nm)$. Taip pat, dalis tyrimų yra atlikti naudojant Nd:YAG ($\lambda_0 = 1064 nm$) lazerius, kurių generuojami impulsai yra pikosekundžių trukmės. Todėl, be grynojo elektroninio netiesiškumo galimai pasireiškė ir kiti mechanizmai - elektrostrikcija, šiluminis netiesiškumas, branduolių poliarizuotumo indukuotas netiesiškumas, eksitoniniai efektai, kurių įtaka nebūtinai buvo įskaitoma.

20 pav. pavaizduotos šiame darbe nustatytos n_2 vertės bei rastos literatūroje. BBO kristalui palyginimui su šiame darbe gauta verte yra pavaizduota vidutinė n_2 vertė ties $\lambda_0 = 1064$ nm. Svarbu paminėti, kad šiame tyrime, kiek žinoma, pirmą kartą buvo įvertinta netiesinio lūžio rodiklio vertė BBO kristalui ties 1800 nm. Literatūroje pavyko rasti tik vieną eksperimentą IR srityje, kur n₂ BBO kristalui buvo nustatytas (taip pat santykiniu tikslumu) $\lambda = 400$ -1500 nm spektriniame diapazone [53]. Šiai dienai, netiesinio lūžio rodiklio įvertinimo tyrimų infraraudonosios spinduliuotės srityje anizotropinėms medžiagoms atlikta mažai - pavyzdžiui GaSe kristalui, rasta tik viena publikacija, žadinimui naudojant 10000 nm žadinimo spinduliuotę [57]. Tai parodo anizotropinių medžiagų tyrimų poreikį IR srityje.



20 pav. Literatūroje pateikiamos (infraraudonosios spinduliuotės srityje nuo 1310 nm iki 3900 nm) bei šiame darbe ties 1700 nm ir 1800 nm nustatytos netiesinio lūžio rodiklio vertės tiriamosioms medžiagoms

Pagrindiniai rezultatai ir išvados

1. Santykiniu tikslumu nustatytos MgF_2 , lydyto kvarco (FS), BK7 stiklo, safyro, BBO ir ZnSe netiesinių lūžio rodiklių vertės, kaip atraminę netiesinio lūžio rodiklio vertę naudojant lydyto kvarco n₂ ties 1550 nm [51]. Netiesinio lūžio rodiklio vertę lydytam kvarcui, įvertintą atlikus matavimus, sunormavus į atraminę vertę, gautas daugiklis (1,37) panaudotas apskaičiuojant kitų tiriamųjų medžiagų n₂ vertes. Tada nustatytų n₂ verčių santykis bei jų vertės atraminės medžiagos atžvilgiu:

$$\begin{split} 1,00 &- n_2^{1700}(FS) = (2,79 \pm 0,27) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W} \\ 0,99 &- n_2^{1800}(FS) = (2,75 \pm 0,33) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W} \\ 0,40 &- n_2^{1700}(\text{MgF}_2) = (1,12 \pm 0,19) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}, \\ 1,30 &- n_2^{1700}(\text{Al}_2\text{O}_3) = (3,64 \pm 0,50) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}, \\ 1,32 &- n_2^{1700}(\text{BK7}) = (3,70 \pm 0,50) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}, \\ 2,37 &- n_2^{1800,o-pol}(\text{BBO}) = (6,60 \pm 0,95) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}, \\ 43,01 &- n_2^{1700}(\text{ZnSe-1}) = (120 \pm 18,45) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}, \\ 42,29 &- n_2^{1700}(\text{ZnSe-2}) = (118 \pm 10,11) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}. \end{split}$$

2. Kiek žinoma, šiame darbe pirmą kartą nustatyta netiesinio lūžio rodiklio vertė anizotropiniam BBO kristalui bangos ilgiui, didesniam nei 1500 nm. Atlikus literatūros apžvalgą, pastebėta, kad anizotropinėms terpėms matavimų IR spektriniame diapazone yra itin mažai - pavyzdžiui, GaSe kristalui rasta tik viena publikacija infraraudonojoje spektro srityje, ties 10000 nm. Tai parodo tyrimų IR srityje anizotropinėms medžiagoms poreikį.

3. Žadinimui naudojant plataus spektro ultratrumpuosius impulsus infaraudonojoje spinduliuotės srityje pasireiškiantys impulso dispersijos reiškiniai apsunkina impulso trukmės, o kartu ir smailinio intensyvumo bei patiriamo fazės pokyčio įvertinimą z-skenavimų metu, todėl matavimams korektiškiau būtų naudoti siauresnio spektro impulsus.

Literatūros sąrašas

- [1] R. Paschotta, Field guide to Laser Pulse Generation (SPIE Press, Bellingham, WA, 2008).
- [2] J. Herrmann, Theory of kerr-lens mode locking: role of self-focusing and radially varying gain, J. Opt. Soc. Am. B, 11(3), 498–512 (1994).
- [3] E. Garmire, Nonlinear optics in daily life, Opt. Express, **21**(25), 30532–30544 (2013).
- [4] A. Dubietis, Netiesinė optika (Vilniaus universitetas, 2011).
- [5] M. Fox, Optical properties of solids (Oxford University Press, 2001).
- [6] S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, and K. Kuroda, Soliton compression of femtosecond pulses in quadratic media, J. Opt. Soc. Am. B, 19(10), 2505–2510 (2002).
- [7] J. Moses and F. Wise, Self-steepening of ultrashort optical pulses without self-phase modulation, Phys. Rev. A, 76, 021802(R) (2007).
- [8] M. Bache, F. Eilenberger, and S. Minardi, Higher-order kerr effect and harmonic cascading in gases, Opt. Lett., 37(22), 4612–4614 (2012).
- [9] R. Chiao, T. Gustafson, and P. Kelley, Self-focusing of optical beams, Top. Appl. Phys., 114, 129–143 (1970).
- [10] P. Polynkin and M. Kolesik, Critical power for self-focusing in the case of ultrashort laser pulses, Phys. Rev. A, 87(5), 053829 (2013).
- [11] R. L. Sutherland, Handbook of Nonlinear Optics (Marcel Dekker, 2003).
- [12] R. W. Boyd, Nonlinear Optics (Academic Press, 2008).
- [13] M. J. Weber, D. Milam, and W. L. Smith, Nonlinear Refractive Index Of Glasses And Crystals, Opt. Eng., 17(5), 175463 (1978).
- [14] G. R. Olbright and N. Peyghambarian, Interferometric measurement of the nonlinear index of refraction, n_2 , of CdS_xSe_{1-x} doped glasses, Appl. Phys. Lett., **48**(18), 1184 1186 (1986).
- [15] M. Moran, C.-Y. She, and R. Carman, Interferometric measurements of the nonlinear refractive-index coefficient relative to CS₂ in laser-system-related materials, IEEE J. Quantum Electron., 11(6), 259–263 (1975).
- [16] J. Pigeon, S. Tochitsky, E. Welch, and C. Joshi, Measurements of the nonlinear refractive index of air, N₂, and O₂ at 10 μm using four-wave mixing, Opt. Lett., 41(17), 3924–3927 (2016).

- [17] G. Huang, Y. Yamamoto, M. Hirano, A. Maruta, T. Sasaki, and K. Kitayama, Straightforward method for measuring optical fiber's nonlinear coefficient based on phase mismatching FWM, Opt. Express, 21(17), 20463–20469 (2013).
- [18] M. Samoc, A. Samoc, B. Luther-Davies, Z. Bao, L. Yu, B. Hsieh, and U. Scherf, Femtosecond z-scan and degenerate four-wave mixing measurements of real and imaginary parts of the third-order nonlinearity of soluble conjugated polymers, J. Opt. Soc. Am. B, 15(2), 817–825 (1998).
- [19] M. R. Ferdinandus, H. Hu, M. Reichert, D. J. Hagan, and E. W. V. Stryland, Beam deflection measurement of time and polarization resolved ultrafast nonlinear refraction, Opt. Lett., 38(18), 3518–3521 (2013).
- [20] A. J. Taylor, G. Rodriguez, and T. S. Clement, Determination of n₂ by direct measurement of the optical phase, Opt. Lett., 21(22), 1812–1814 (1996).
- [21] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. Wei, D. J. Hagan, and E. V. Stryland, Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam, IEEE J. Quantum Electron., 26(4), 760–769 (1990).
- [22] S. M. Mian, B. Taheri, and J. P. Wicksted, Effects of beam ellipticity on z-scan measurements, J. Opt. Soc. Am. B, 13(5), 856–863 (1996).
- [23] Y.-L. Huang and C.-K. Sun, Z-scan measurement with an astigmatic gaussian beam, J. Opt. Soc. Am. B, 17(1), 43–47 (2000).
- [24] R. Bridges, G. Fischer, and R. Boyd, Z-scan measurement technique for non-gaussian beams and arbitrary sample thicknesses, Optics letters, 20, 1821 (1995).
- [25] N. Slavinskis, E. Murauskas, and A. Dement'ev, Dependence of z-scan measurements on the spatiotemporal pulse parameters, Lith. J. Phys., 51 (2011).
- [26] A. Dement'ev and A. Jovaiša, Pulse shape influence on the accuracy of z-scan measurements, Nonl. Anal. Model., 2 (2005).
- [27] A. Feldman, D. Horowitz, and R. Waxler, Mechanisms for self-focusing in optical glasses, IEEE J. Quantum Electron., 9(11), 1054–1061 (1973).
- [28] T. Olivier, F. Billard, and H. Akhouayri, Nanosecond z-scan measurements of the nonlinear refractive index of fused silica, Opt. Express, 12(7), 1377–1382 (2004).
- [29] A. M. Sommer, Ultrafast Strong Field Dynamics in Dielectric (Springer International Publishing, 2016).

- [30] R. de Nalda, R. del Coso, J. Requejo-Isidro, J. Olivares, A. Suarez-Garcia, J. Solis, and C. N. Afonso, Limits to the determination of the nonlinear refractive index by the z-scan method, J. Opt. Soc. Am. B, 19(2), 289–296 (2002).
- [31] C. Karras, D. Litzkendorf, S. Grimm, K. Schuster, W. Paa, and H. Stafast, Nonlinear refractive index study on SiO₂-Al₂O₃-La₂O₃ glasses, Opt. Mater. Express, 4(10), 2066– 2077 (2014).
- [32] M. Grehn, T. Seuthe, W.-J. Tsai, M. Hofner, A. W. Achtstein, A. Mermillod-Blondin, M. Eberstein, H. J. Eichler, and J. Bonse, Nonlinear absorption and refraction of binary and ternary alkaline and alkaline earth silicate glasses, Opt. Mater. Express, 3(12), 2132– 2140 (2013).
- [33] L. Zhang, Z. Shi, H. Ma, H. Ren, Q. Yuan, Y. Ma, X. Feng, B. Chen, and Y. Yang, Femtosecond z-scan measurements of the nonlinear refractive index of fused silica, Proc. SPIE, 10621, 106210H (2018).
- [34] E. Nibbering, M. Franco, B. Prade, G. Grillon, C. L. Blanc, and A. Mysyrowicz, Measurement of the nonlinear refractive index of transparent materials by spectral analysis after nonlinear propagation, Opt. Commun., 119(5), 479 – 484 (1995).
- [35] S. R. Flom, G. Beadie, S. S. Bayya, B. Shaw, and J. M. Auxier, Ultrafast z-scan measurements of nonlinear optical constants of window materials at 772, 1030, and 1550 nm, Appl. Opt., 54(31), F123–F128 (2015).
- [36] P. Kabaciński, T. M. Kardaś, Y. Stepanenko, and C. Radzewicz, Nonlinear refractive index measurement by spm-induced phase regression, Opt. Express, 27(8), 11018–11028 (2019).
- [37] D. Milam and M. J. Weber, Measurement of nonlinear refractive index coefficients using time resolved interferometry: Application to optical materials for high power neodymium lasers, J. Appl. Phys., 47(6), 2497–2501 (1976).
- [38] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. V. Stryland, and M. Sheik-Bahae, Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n₂ in wide bandgap solids, IEEE J. Quantum Electron., **32**(8), 1324–1333 (1996).
- [39] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, Nonlinear refractive-index measurements of glasses using three-wave frequency mixing, J. Opt. Soc. Am. B., 4(6), 875–881 (1987).
- [40] A. Major, F. Yoshino, I. Nikolakakos, J. S. Aitchison, and P. W. E. Smith, Dispersion of the nonlinear refractive index in sapphire, Opt. Lett., 29(6), 602–604 (2004).

- [41] B. Momgaudis, S. Guizard, A. Bilde, and A. Melninkaitis, Nonlinear refractive index measurements using time-resolved digital holography, Opt. Lett., 43(2), 304–307 (2018).
- [42] M. Falconieri, E. Palange, and H. L. Fragnito, Achievement of λ /4000 phase distortion sensitivity in the measurement of optical nonlinearities by using a modulated z-scan technique, J. Opt. A - Pure Appl. Opt., 4(4), 404–407 (2002).
- [43] L. Lu, Q. Liu, Z. Liu, S. Sun, P. Ding, B. Ding, and B. Hu, Measurement of nonlinear refractive index coefficient using emission spectrum of filament induced by gigawatt-femtosecond pulse in BK7 glass, Appl. Opt., 51, 2045–50 (2012).
- [44] H. Li, C. Kam, Y. Lam, and W. Ji, Femtosecond z-scan measurements of nonlinear refraction in nonlinear optical crystals, Opt. Mat., 15(4), 237 – 242 (2001).
- [45] F. Hache, A. Zéboulon, G. Gallot, and G. M. Gale, Cascaded second-order effects in the femtosecond regime in β-barium borate: self-compression in a visible femtosecond optical parametric oscillator, Opt. Lett., 20(14), 1556–1558 (1995).
- [46] M. Bache, H. Guo, B. Zhou, and X. Zeng, The anisotropic kerr nonlinear refractive index of the beta-barium borate (β-BaB₂O₄) nonlinear crystal, Opt. Mater. Express, 3(3), 357–382 (2013).
- [47] H. Tan, B. G. P., and T. A., Optical frequency mixing through cascaded second-order processes in β-barium borate, Appl. Phys. Lett., 63(18), 2472–2474 (1993).
- [48] I. A. Kulagin, R. A. Ganeev, V. A. Kim, A. I. Ryasnyansky, R. I. Tugushev, T. Usmanov, and A. V. Zinoviev, Nonlinear refractive indices and third-order susceptibilities of nonlinear optical crystals, in K. L. Schepler, D. D. Lowenthal, and J. W. Pierce, editors, Nonlinear Frequency Generation and Conversion: Materials, Devices, and Applications II, volume 4972, pages 182 – 189 (SPIE, 2003).
- [49] H. Li, F. Zhou, X. Zhang, and W. Ji, Bound electronic kerr effect and self-focusing induced damage in second-harmonic-generation crystals, Opt. Commun., 144(1), 75 – 81 (1997).
- [50] T. R. Ensley and N. K. Bambha, Ultrafast nonlinear refraction measurements of infrared transmitting materials in the mid-wave infrared, Opt. Express, 27(26), 37940–37951 (2019).
- [51] T. Kato, Y. Suetsugu, M. Takagi, E. Sasaoka, and M. Nishimura, Measurement of the nonlinear refractive index in optical fiber by the cross-phase-modulation method with depolarized pump light, Opt. Lett., 20(9), 988–990 (1995).

- [52] A. Major, F. Yoshino, I. Nikolakakos, J. S. Aitchison, and P. W. E. Smith, Dispersion of the nonlinear refractive index in sapphire, Opt. Lett., 29(6), 602–604 (2004).
- [53] S. Santos, J. Almeida, K. Paula, N. Tomazio, V. Mastelaro, and C. Mendonça, Characterization of the third-order optical nonlinearity spectrum of barium borate glasses, Opt. Mat., 73, 16 – 19 (2017).
- [54] A. Major, F. Yoshino, J. S. Aitchison, P. W. E. Smith, E. Sorokin, and I. T. Sorokina, Ultrafast nonresonant third-order optical nonlinearities in znse for photonic switching at telecom wavelengths, Appl. Phys. Lett., 85(20), 4606–4608 (2004).
- [55] A. Major, J. S. Aitchison, P. W. E. Smith, E. Sorokin, and I. T. Sorokina, Z-scan characterization of the nonlinear refractive index of single crystal znse in the 1.20-1.95 μ m wavelength range, **5971**, 101 108 (2005).
- [56] M. González-Cardel, P. Arguijo, and R. Uribe, Gaussian beam radius measurement with a knife-edge: A polynomial approximation to the inverse error function, Appl. Opt., 52(16), 3849–3855 (2013).
- [57] J. Pigeon, D. Matteo, S. Tochitsky, I. zvi, and C. Joshi, Measurements of the nonlinear refractive index of AgGaSe₂, GaSe, and ZnSe at 10 μm, J. Opt. Soc. Am. B, **37** (2020).

KRISTALŲ NETIESINIO LŪŽIO RODIKLIO INFRARAUDONOJOJE SRITYJE NUSTATYMAS Jurgita Strakšytė

Santrauka

Netiesinėje optikoje medžiagos lūžio rodiklis priklauso nuo į medžiagą krintančios spinduliuotės intensyvumo. Šios priklausomybės mastą nusakanti konstanta - netiesinis lūžio rodiklis n_2 - svarbus medžiagos parametras. Vienas iš būdų jį nustatyti - įvertinti bangos fazinio fronto kitimą, medžiagą žadinant intensyvia lazerio spinduliuote. Toks įvertinimas naudojamas, pavyzdžiui, z-skenavimo eksperimentinės metodikos.

z-skenavimas pasižymi dideliu jautrumu ir yra sąlyginai nesudėtingas savo eksperimentiniu įvykdymu ir matematine gautų duomenų analize. Tačiau ši metodika reikalauja itin geros pluoštų ir impulsų kokybės, norint teisingai įvertinti smailnio intensyvumo vertę, lemiančią patiriamą fazės pokytį pluošto fokusavimosi metu; svarbu atsižvelgti ir į galimą kitų (ne vien elektroninio) netiesiškumų sukuriamą įtaką n_2 vertei renkantis impulso trukmę, intensyvumą, pasikartojimo dažnį.

Šio darbo tikslas buvo nustatyti įvairių skaidrių optinių terpių netiesinius lūžio rodiklius infraraudonojoje spinduliuotės spektrinėje srityje naudojant femtosekundinius impulsus, kur tyrimų šiai dienai yra atlikta nedaug. Tam tikslui, surinkta klasikinio z-skenavimo sistema. Žadinimui naudojama "He-Topas" optinio parametrinio stiprintuvo, kaupinamo Ti:safyro lazerine spinduliuote, šalutinė banga. Eksperimentai buvo atliekami ties 1700 nm ir 1800 nm su 51 fs ir 69 fs trukmės impulsais atitinkamai.

Nustatytos netiesinio lūžio rodiklio vertės buvo sunormuotos į lydyto kvarco vertę, išmatuotą ties 1550 nm Kato ir kitų (https://doi.org/10.1364/OL.20.000988) ir buvo lygios: n_2^{1700} (FS) = $(2,79 \pm 0,27) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, n_2^{1800} (FS) = $(2,75 \pm 0,33) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, n_2^{1700} (MgF₂) = $(1,12 \pm 0,19) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, n_2^{1700} (Al₂O₃) = $(3,64 \pm 0,50) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, n_2^{1700} (BK7) = $(3,70 \pm 0,50) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1800,o-pol}$ (BBO) = $(6,60 \pm 0,95) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, n_2^{1700} (ZnSe-1) = $(120 \pm 18,45) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, n_2^{1700} (ZnSe-2) = $(118 \pm 10,11) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$. Kiek žinoma, šiame darbe pirmą kartą įvertinta BBO netiesinio lūžio rodiklio vertė, bangos ilgiui, didesniam nei 1500 nm.

EVALUATION OF NONLINEAR REFRACTIVE INDEX IN THE INFRARED FOR CRYSTALS Jurgita Strakšytė

Summary

In the regime of nonlinear optics, the magnitude of the refractive index of the medium changes with increasing light intensity - an effect which can be described by a constant called nonlinear refractive index or n_2 . It is a highly important property of all optical materials. One way to measure it experimentally is to analyse phase front variations which occurs when medium is excited with high intensity laser radiation. Such an evaluation method is used for example in z-scan measurements.

z-scan technique is distinguished by its high sensitivity and is relatively simple both in experimental execution and in nonlinear refractive index value determination from measured data. However both very high beam shape and pulse temporal envelope quality is required as it is crucial when determining peak axial irradiance value associated with self-focusing inflicted phase shift; it is also important to evaluate correctly other nonlinear process influence or minimize it by choosing pump radiation parameters (pulse duration, intensity, repetition rate) accordingly.

The main purpose of this work was to determine n_2 values of various transparent materials using femtosecond pulses in infrared where research analysing materials nonlinear properties are scarce. For that purpose standard z-scan system was constructed employing "He-Topas" idler wave of optical parametric amplifier (OPA) pumped by Ti:sapphire laser. Experiments were conducted at 1700 nm and 1800 nm with 51 fs and 69 fs pulse durations respectively.

Nonlinear refractive index values for measured samples were evaluated relative to fused silica value estimated by T. Kato et al. at 1550 nm (https://doi.org/10.1364/OL.20.000988). Relative refractive index values for investigated samples are thus as follows: $n_2^{1700}(FS) = (2.79 \pm 0.27) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1800}(FS) = (2.75 \pm 0.33) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1700}(MgF_2) = (1.12 \pm 0.19) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1700}(Al_2O_3) = (3.64 \pm 0.50) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1700}(BK7) = (3.70 \pm 0.50) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1800,o-pol}(BBO) = (6.60 \pm 0.95) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1700}(ZnSe-1) = (120 \pm 18.45) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, $n_2^{1700}(ZnSe-2) = (118 \pm 10.11) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$. To my knowledge this is the first time BBO nonlinear refractive index value was evaluated above 1500 nm.