

Vilniaus Universitetas
Fizikos fakultetas
Lazerinių tyrimų centras

Vytenis Girdauskas

NIR SUPERKONTINUUMO IMPULSŲ STIPRINIMAS IR KOMPRESIJA, TAIKANT
NENUOSTOVIAJĄ PRIVERSTINĘ RAMANO SKLAIDĄ

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinės fizikos ir optinių technologijų studijų programa

Studentas	Vytenis Girdauskas
Leista ginti	2021-05-21
Darbo vadovas	dr. Aleksėj Rodin
Instituto direktorius	prof. Aidas Matijošius

Vilnius, 2021

Turinys

Trumpiniai	4
Įvadas	5
1 Šviesos sklaida	7
1.1 Savaiminė Ramano sklaida	8
1.2 Priverstinė Ramano sklaida	9
1.3 Priverstinė Ramano sklaida nenuostoviuoju režimu	10
2 Šviesos saviveikos reiškiniai	11
2.1 Šviesos pluošto fokusavimasis	11
2.2 Impulso fazės moduliavimasis	12
2.3 Superkontinuumo generacija	14
3 Priverstinė Ramano sklaida lazerinėse sistemose	14
3.1 Priverstinės Ramano sklaidos spektrinės charakteristikos	15
3.2 Priverstinės Ramano sklaidos žadinto impulso trukmės kitimo dinamika	16
3.3 Impulso fazės moduliavimosi įtaka priverstinei Ramano sklaidai	17
3.4 Priverstinės Ramano sklaidos stiprinimas	19
4 Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprintuvo architektūra	21
4.1 Čirpuotų impulsų stiprintuvo lazerinė sistema	21
4.2 Plataus spektro užkrato formavimas – superkontinuumo žadinimas	22
4.3 Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprinimo schema	24
4.4 Kalio gadolinio volframato – KGW kristalinė terpė	25
5 Matavimų metodikos	26
5.1 Impulso energijos matavimai	26
5.2 Pluošto erdvinių skirstinių matavimai	27
5.3 Pastiprinto signalo spektrinės gaubtinės matavimai	27
5.4 Impulsų charakterizavimas SHG-FROG – dažninės skyros optinės sklendės metodu	27
6 Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos čirpuotų impulsų stiprinimas	28
6.1 TSRCPA stiprinimo geometrijos	28
6.2 Kaupinimo impulso energijos keitimo į Stokso impulsą efektyvumo tyrimai	29
6.3 Pastiprinto Stokso impulso spektrinė gaubtinė	30
6.4 Erdvinės Stokso bangos savybės	31
6.5 Impulso laikinės ir dažninės fazės charakterizavimas FROG metodu	32
7 TSRCPA stiprintuvo veikos optimizacija	34

8 Koherentinio Stokso impulso spektrinės gaubtinės sintezė dvipakopiame TSRCPA stiprintuve	36
9 Kero efekto indukuotų netiesinių procesų skaitmeninis įvertinimas	39
9.1 Pluošto fokusavimasis	39
9.2 Impulso fazės moduliavimasis	41
10 Pagrindiniai rezultatai ir išvados	44
11 Rezultatų sklaida	45
12 Literatūros sąrašas	46
Santrauka	50
Summary	51

Trumpiniai

NIR – artimoji infraraudonoji sritis (angl. *near infrared*, $\lambda = 0.75 - 1.4 \mu\text{m}$).

SWIR – trumpabangė infraraudonoji sritis (angl. *short-wave infrared*, $\lambda = 1.4 - 3.0 \mu\text{m}$).

SRS – priverstinė Ramano sklaida (angl. *stimulated Raman scattering*).

SF – pluošto fokusavimasis (angl. *self-focusing*).

SPM – fazės moduliavimasis (angl. *self-phase modulation*).

SC – superkontinuumas (angl. *supercontinuum*).

SRA – priverstinės Ramano sklaidos stiprinimas (angl. *stimulated Raman amplification*).

CPA – čirpuotų impulsų stiprinimas (angl. *chirped pulse amplification*).

Yb:YAG – itrio aliuminio granatas, legiruotas iterbio jonais (angl. *ytterbium-doped yttrium aluminum garnet*).

FWHM – pilnas plotis pusės aukštyje (angl. *full-width half-maximum*).

TBP – laiko - dažnio juostos produktas (angl. *time-bandwidth product*).

YAG – itrio aliuminio granatas (angl. *yttrium aluminum garnet*, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$).

TSRCPA – nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos čirpuotų impulsų stiprinimas (angl. *transient stimulated Raman chirped-pulse amplification*).

KGW – kalio gadolinio volframatas (angl. *potassium gadolinium tungstate*, $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$).

GVM – grupinio greičio nederinimas (angl. *group velocity mismatch*).

FROG – dažninės skyros optinės sklendės metodas (angl. *frequency-resolve optical gating*).

β -BBO – beta bario boratas (angl. *beta-barium borate*).

TLP – spektrinės juostos ribojama impulso trukmė (angl. *transform-limited pulse*).

Įvadas

Lazerinių sistemų spektrinio diapazono išplėtimas yra viena svarbiausių šių laikų mokslinių problemų. Lazeriniai šaltiniai artimosios infraraudonosios (NIR) bangos ilgių srityje ($0.75 - 1.4 \mu\text{m}$) yra puikiai išvystyti ir pasižymi didele impulso energija, aukštu pasikartojimo dažniu ir maža impulso trukme. Tačiau, spinduliuotės bangos ilgio keitimas į trumpabangę infraraudonąją (SWIR) sritį ($1.4 - 3.0 \mu\text{m}$) vis dar yra sudėtingas, neefektyvus ir reikalaujantis daug išteklių. Tokio bangos ilgio spinduliuotė pritaikoma spektroskopijoje, medicinoje, medžiagotyroje, atstumų ir cheminių elementų detekcijai.

Stipriųjų laukų fizikoje infraraudonosios srities didelės smailinės galios lazeriniai impulsai leidžia žadinti aukštesniąsias harmonikas ir pasiekti Rentgeno bangos ilgio ir sub-femtosekundžių trukmės impulsus [1]. Tai atveria naujas galimybes ypač trumpų biologinių, cheminių ir fizikinių procesų tyrimams. Tačiau, aukštesniųjų harmonikų dažnio nukirtimo sritis atvirkščiai proporcinga elektromagnetinės bangos dažnio kvadratui, todėl, siekiant trumpiausio bangos ilgio spinduliuotės, būtina didinti femtosekundinių lazerių bangos ilgį.

Šiais laikais vis daugiau dėmesio sulaukia terahercų (THz) dažnio elektromagnetinės spinduliuotės generacija ir pritaikymai. Mediena, popierius, plastikas tokio dažnio lazerinei spinduliuotei yra skaidrūs, todėl tai pritaikoma vaizdinimui, o taip pat dėl mažos fotonų energijos išvengiama bandinio pažaida. Visgi, mokslinėje srityje yra siekiama vykdyti THz lazerinės spinduliuotės netiesinių procesų tyrimus, tačiau tam reikalinga didelė energija ir maža impulsų trukmė. Daugiausiai vilčių didelės energijos ir vieno ar kelių optinių ciklų THz impulsų generacijai teikia dviejų bangos ilgių (pirma ir antra harmonikos) šviesos gijų formavimas skystoje ar dujinėje terpėje. Naujausi tyrimai atskleidė, kad naudojant ilgesnio bangos ilgio lazerinę spinduliuotę šviesos gijos formavimui, THz spinduliuotės generacijos efektyvumas išauga beveik 10 kartų [2].

Vienas iš populiariausių ir efektyviausių infraraudonosios srities spinduliuotės žadinimo metodų yra parametrinis stiprinimas. Tokiu būdu generuojami $1 - 2 \mu\text{m}$ derinamo bangos ilgio, didelės energijos ultratrumpieji impulsai. Visgi, parametrinis stiprinimas yra ribotas fazinį synchronizmą tokioje bangų srityje turinčių terpių pasirinkimu. Tuo tarpu, pritaikius Cr^{+2} ar Fe^{+2} legiruotus ZnSe arba ZnS aktyviuosius kristalus galima tiesiogiai žadinti ir stiprinti ilgesnio nei $2 \mu\text{m}$ bangos ilgio lazerinę spinduliuotę. Visgi, abu šie metodai pasižymi sudėtinga ir neekonomiška architektūra. Dėl šios priežasties $1 - 3 \mu\text{m}$ bangos ilgio lazerinių sistemų tyrimai ir plėtra yra būtini, norint sukurti efektyvius antrinės spinduliuotės šaltinius.

Iki šių dienų tyrinėjama Ramano sklaida pasižymi patraukliomis savybėmis lazerio bangos ilgio keitimui. Ilgesnių (ns eilės) impulsų bangos ilgio konversija sėkmingai realizuojama dujų, skysčio ar kieto kūno terpėse su aukštu keitimo efektyvumu. Tačiau, naudojant ultratrumpuosius impulsus (ps – fs eilės) sklaidos efektyvumas drastiškai mažėja dėl impulso ir terpės vibracinio lygmens gyvavimo trukmės panašumo. Priverstinė Ramano sklaida kyla iš kvantinių triukšmų, todėl vienu metu optimizuoti energetines, erdvines, spektrines ir laikines savybes

yra sudėtinga. To galima išvengti naudojant baltos šviesos kontinuumo užkratą priverstinės Ramano sklaidos stiprinimui.

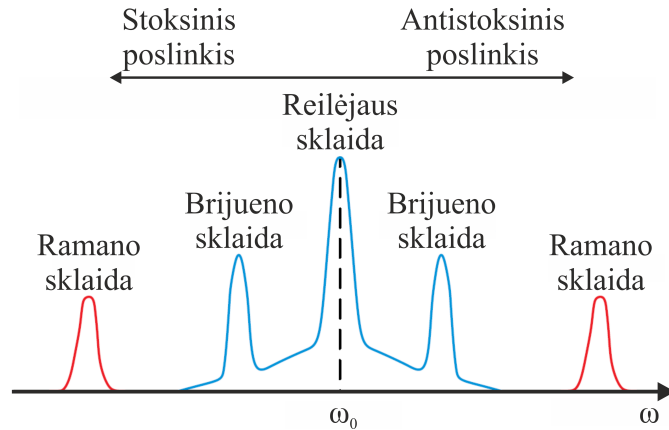
Atsižvelgiant į tai, buvo suformuotas magistrantūros studijų baigiamojo darbo tikslas – ištirti NIR spektrinės srities superkontinuumo impulsų stiprinimą ir kompresiją priverstinės Ramano sklaidos stiprintuve bei nustatyti optimalias sąlygas plačios spektrinės gaubtinės koherentinio Stokso spinduliuotės žadinimui.

Siekiant darbo tikslo, suformuluoti uždaviniai:

- pritaikius dvipakopį TSRCPA stiprintuvą, kaupinamą pikosekundės trukmės impulsais, pastiprinti superkontinuumo užkratą;
- nustatyti optimalias Ramano sklaidos stiprinimo sąlygas kolinearios ir nekolinearios geometrijos stiprintuve, siekiant didžiausio energijos keitimo efektyvumo ir plačiausios spektrinės juostos, išlaikant aukštos kokybės Stokso impulso pluoštą;
- ištirti pastiprintų Stokso impulsų spūdą, pritaikius prizmių poros kompresorių;
- ištirti koherentinio Stokso spektrinės gaubtinės sintezę ir impulso spūdą dvipakopiame TSRCPA stiprintuve;
- skaitmeniškai įvertinti optinio Kero efekto įtaką superkontinuumo impulso nenuostovios priverstinės Ramano sklaidos stiprinimui.

1 Šviesos sklaida

Savaiminė šviesos sklaida stebima įvairiose terpėse ir jos pobūdį bei savybes lemia įvairūs fizikiniai reiškiniai. Tai yra procesas, kurio metu optinės medžiagos savybės lieka nepakitusios dėl šviesos poveikio. Tačiau kritusi šviesa yra paveikiama ir jos spektras bendriausiu atveju pateiktas 1 paveiksle.



1 pav. Bendriausias savaiminės šviesos sklaidos spektras

Šviesos sklaida apima Ramano, Brijueno, Reilėjaus ir Reilėjaus sparno sklaidas. Sklaidos dažniniai komponentai, kurių dažnis yra mažesnis už kritusios šviesos dažnį, vadinami Stoksiniais (angl. *Stokes shift*), o tie, kurių didesnis už kritusios šviesos – Antistoksiniais (angl. *anti-Stokes shift*).

Šviesos bangos sąveika su molekulių virpesiais (virpesinėmis modomis) sukelia Ramano sklaidą. Ši sklaida yra lygi šviesos bangų sklaidai optiniais fononais. Ramano sklaida turi didelį dažnio poslinkį ($\approx 1000 \text{ cm}^{-1}$) ir platų sklaidos linijos plotį ($\approx 5 \text{ cm}^{-1}$), kas priklauso nuo molekulės virpesinių lygmenų struktūros.

Brijueno sklaida – tai kritusios šviesos bangos sklaida garso (slėgio ar terpės tankio pokyčio) bangomis. Tai yra ekvivalentu šviesos bangos sklaidai akustiniais fononais. Brijueno sklaida pasižymi mažu dažnio pokyčiu ($\approx 0.1 \text{ cm}^{-1}$) ir siaura sklaidos juosta, tačiau didesniu efektyvumu.

Reilėjaus sklaida vyksta šviesai sąveikaujant su nesklindančiais terpės tankio pokyčiais. Tai yra sklaida nuo entropijos svyravimų, kuri gali būti laikoma kvazitampria, dėl nestebimo dažnio pokyčio.

Šviesos sklaida dėl anizotropinių molekulių orientacijos svyravimų vadinama Reilėjaus sparno sklaida. Molekulių persiorientavimas yra momentinis procesas, todėl stebimos sklaidos plotis yra didelis ($\approx 5 \text{ cm}^{-1}$). Tačiau ši sklaida nėra stebima terpėse, kurių molekulės turi izotropinį poliarizuojamumo tenzorį.

Visos pagrindinės savaiminės šviesos sklaidos apibendrintos 1 lentelėje.

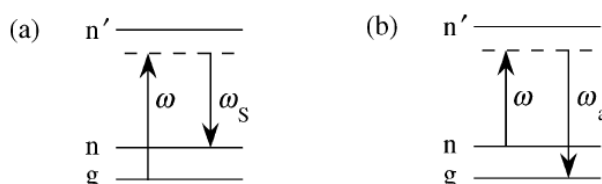
1 lentelė. Pagrindinių šviesos sklaidos tipų bendriniai parametrai [3]

Skaidos tipas	Dažnio poslinkis [cm ⁻¹]	Skaidos pusplotis [cm ⁻¹]	Relaksacijos laikas [s]	Stiprinimas [m/MW]
Ramano	1000	5	10 ⁻¹²	5 · 10 ⁻⁵
Brijueno	0.1	5 · 10 ⁻³	10 ⁻⁹	10 ⁻⁴
Reilėjaus	0	5 · 10 ⁻⁴	10 ⁻⁸	10 ⁻⁶
Reilėjaus sparno	0	5	10 ⁻¹²	10 ⁻⁵

Savaiminė šviesos sklaida kyla iš tam tikrų terpės parametrų svyravimų, sukeliamų terminių ar kvantinių efektų. Sklaidos efektyvumas yra itin mažas (sklaidos skerspjūvis 10⁻⁶ cm⁻¹) ir maždaug tik vienas fotonas iš milijono krentančios šviesos fotonų yra sklaidomas vieno centimetro ilgio terpėje. Tačiau priverstinės sklaidos atveju, stiprus elektromagnetinės spinduliuotės laukas pats sukuria ir stiprina terpės parametrų svyravimus, todėl būna išsklaidoma didelė dalis kritusios šviesos fotonų.

1.1 Savaiminė Ramano sklaida

Savaiminės Ramano sklaidos efektą įvairiose skystose terpėse su fokusuota Saulės šviesa pirmą kartą 1928 metais stebėjo C. V. Raman ir K. S. Krishnan [4]. Ramano sklaida laikoma netampria šviesos fotonų sklaida medžiagoje. Tai yra stebima kitų dažnių atsiradimu: mažesnio dažnio – Stokso ir didesnio dažnio – Antistokso poslinkių spinduliuote. Ramano sklaidos efektas gali būti aiškinamas energijos lygmenų diagrama, kuri pateikta 2 paveiksle.



2 pav. Energijų lygmenų diagrama, vaizduojanti: a – Stokso ir b – Antistokso poslinkio vibracinius šuolius [3]

Elektromagnetinės bangos – fotono sužadimas iš pagrindinio lygmens į virtualų lygmenį tarp pagrindinio lygmens g ir sužadinto lygmens n' baigiasi naujo dažnio – Stokso poslinkį įgavusio fotono išspinduliavimu ir energijos lygmens pakitimu į n vibracinį lygį. Visgi, Antistokso poslinkis turi daug mažesnę tikimybę įvykti, nes jis reikalauja populiacijos, jau sužadintos į n energijos lygmenį. Didžioji dalis populiacijos iš vibracinio lygmens n energiją perduoda kitoms molekulėms per vibracinius šuolius, taip energiją išnaudojant temperatūros pokyčiui.

Virtualus energijos lygmuo nėra apibrėžtas, todėl savaiminė Ramano sklaida gali vykti visame terpės optinio skaidrumo lange. Tačiau, šviesos sklaidos skerspjūvis, taip pat ir sklaidos

efektyvumas, yra proporcingas šviesos dažniui, todėl mažesnių dažnių spinduliuotė yra silpniau sklaidoma.

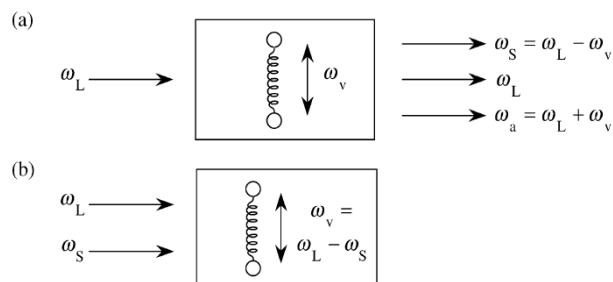
1.2 Priverstinė Ramano sklaida

Savaiminės sklaidos skerspjūvis yra 10^{-6} cm^{-1} , todėl pasiekiamas labai mažas efektyvumas, tačiau pritaikius intensyvią lazerinę spinduliuotę, sklaidos efektyvumas išauga iki dešimčių procentų. Tai yra vadinama priverstine Ramano sklaida (angl. *stimulated Raman scattering*, SRS). Kitas svarbus skirtumas tarp savaiminės ir priverstinės sklaidos yra tai, kad savaiminė sklaida vyksta dipolio spinduliavimo modeliu, t. y. nekryptingai, o priverstinė sklaida stebima siauru kūgiu ir ašine spinduliuote, kuri stebima ne tik kaupinimo bangos kryptimi, bet ir priešinga. Pirmą kartą priverstinė Ramano sklaida stebėta E. J. Woodbury ir W. K. Ng 1962 metais panaudojus tuo metu naują technologiją – rubino lazerį [5].

Ramano sklaida gali būti aiškinama klasikiniu modeliu (neatsižvelgiant į kvantinę fiziką), kur teigiame, kad elektromagnetinė banga paveikia molekulės vibracinę modą, kuri yra harmoninis osciliatorius su savuoju rezonansiniu dažniu ir slopinimo konstanta. Molekulės optinis poliarizuojamumas priklauso nuo harmoninio osciliatoriaus tarpbranduolinio atstumo kitimo (diferencialo). Paveikiant harmoninį osciliatorių periodiškai laike, jo indukuojamas lūžio rodiklio pokytis yra proporcingas poliarizuojamumo kvadratinei šakniai. Dėl šios priežasties, elektromagnetinė banga, sklisdama kintamo lūžio rodiklio terpėje įgaus dažnio pokytį, lygų harmoninio osciliatoriaus vibracijos dažniui.

Dėl stiprios elektromagnetinės bangos, t. y. lazerinės spinduliuotės, kiekviena molekulė taps poliarizuota ir indukuotas dipolinis momentas bus tiesiogiai proporcingas elektriniui laukui. Todėl, jei į terpę krenta dviejų dažnių spinduliuotė, vibracinė koordinatė patirs tų dažnių skirtumu laike kintančią jėgą.

Tai gali būti aiškinama schematiškai, kaip skirtingų dažnių sąveika (3 paveikslas).



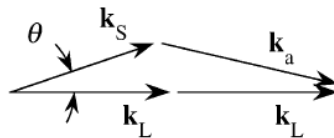
3 pav. Savaiminės Ramano sklaidos – a ir priverstinės Ramano sklaidos – b vaizdavimas harmoninio osciliatoriaus modeliu [3]

Paveikslo a dalyje pateikta savaiminė Ramano sklaida, kur molekulių vibracinės modos moduluoja terpės lūžio rodiklį vibraciniu dažniu ω_v , kas sukuria dvi naujas dažnio komponentes: mažesnio dažnio Stokso ir didesnio dažnio Antistokso. Taip pat, paveikslo b dalyje matoma kaip Stokso poslinkį įgavusi dažnio komponentė rezonuoja su kaupinama lazerine spinduliuote

ir tai moduliuoja bendrą intensyvumą kosinuso dėsnio. Atitinkamai, šis intensyvumo kitimas koherentiškai veikia harmoninį osciliatorių vibracinės modos dažniu ir taip toliau stiprina Stokso bangą. Stokso bangos amplitudė tiesiškai proporcinga „sugerties“ koeficientui, kuris suteikia eksponentinį intensyvumo augimą. Be to, Stokso poslinkį įgavusio dažnio bangos stiprinimas visada tenkina fazinio synchronizmo sąlygą, kai sklaidimo kampas sutampa su lazerinės kaupinimo bangos kampu. Stokso bangos energijai pasiekus reikiamą vertę yra stebimas antros, trečios ir kitų eilių Stokso ir Antistokso dažnio poslinkių komponentų žadinimas.

Bendrai Stoksinės ir Antistoksinės bangų amplitudės lemia Ramano stiprinimas ir keturbangis dažnių maišymas. Keturbangis dažnių maišymas tampa reikšmingas tik kai bangos vektorių nederinimas yra mažas. Paprastai fazinio synchronizmo sąlyga nebūna pilnai tenkinama, todėl tai gali būti pasiekta nekolineariu atveju, kai Stokso ir Antistokso bangos sklinda tam tikru kampu kaupinimo bangos vektorius atžvilgiu.

Stokso dažnio poslinkio komponentai sklinda ašiniu pluoštu, su nežymiai didesniu skėsties kampu, tačiau Antistokso komponentai stebimi kūgio paviršiumi aplink centrinį kaupinimo pluoštą [6]. Tai kyla iš keturbangio dažnių maišymosi nekolinearaus fazinio synchronizmo, kurio bendra forma pateikta 4 paveiksle.



4 pav. Keturbangio dažnių maišymo nekolinearus fazinis synchronizmas Stoksinėi (\mathbf{k}_s) ir Antistoksinėi (\mathbf{k}_a) bangų generacijai [3]

1.3 Priverstinė Ramano sklaida nenuostoviuoju režimu

Ramano sklaidai aktyvios terpės pasižymi skirtingomis vibracinių lygmenų relaksacijos trukmėmis, paprastai 10^{-12} s eilės (1 lentelė). Kai šviesos impulso trukmė yra didesnė už stiprinimo prieaugio ir relaksacijos laiko sandaugą $\tau_p > G_{ss} \cdot T_2$, tokį režimą vadiname nuostoviuoju (angl. *steady state*). Šiuo atveju stiprinimo prieaugis tiesiškai proporcingas kaupinimo bangos intensyvumui, terpės ilgiui ir terpės stiprinimo koeficientui. Dėl tiesinio stiprinimo prieaugio kitimo yra stebimas spektro gaubtinės siaurėjimas [7]. Nenuostoviuoju režimu (angl. *transient state*), trumpėjant šviesos impulsui galima pasiekti didesnę išsklaidytos Stokso dažnio poslinkį įgavusios šviesos energiją, dėl Ramano sklaidos stiprinimo priklausomybės nuo kaupinimo smailinės galios [8].

Kai šviesos impulso trukmė tampa mažesnė už stiprinimo prieaugio ir Ramano terpės vibracinio lygmens relaksacijos trukmės sandaugą, pereinama į nenuostovųjį režimą. Pirmą kartą toks režimas eksperimentiškai stebėtas 1967 metais Brijueno ir Ramano sklaidose [9]. Tyrimas parodė, kad nenuostoviuoju režimu sklaidos stiprinimo prieaugis yra keliomis eilėmis mažesnis, lyginant su nuostoviojo režimo rezultatais. Vėlesni teoriniai darbai parodė, kad stiprinimo prie-

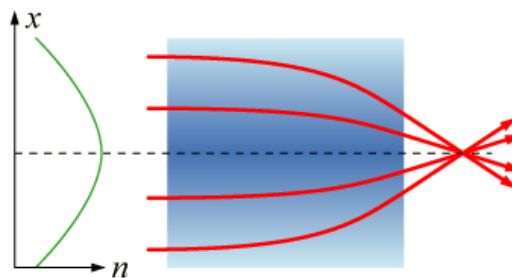
augis proporcingas šviesos impulso ir relaksacijos trukmių santykio kvadratinei šakniai. Be to, kai stiprinimas tampa didelis, prieaugis tampa proporcingas sklaidos skerspjūvio kvadratinei šakniai, bet nepriklauso nuo kaupinimo impulso trukmės ir spektrinės gaubtinės pločio [10].

2 Šviesos saviveikos reiškiniai

Didelės smailinės galios lazeriniui impulsui sklindant terpe (kietakūne, skysta ar dujine) dėl stipraus elektrinio lauko indukuojamas optinis Kero efektas (angl. *Kerr effect*), kuris erdvėlaikiškai paveikia lazerio impulsą. Pagrindiniai Kero efekto sukeliama netiesiniai procesai yra erdvinio pluošto fokusavimasis ir impulso laikinės fazės moduliavimasis.

2.1 Šviesos pluošto fokusavimasis

Šviesos pluošto fokusavimasis (angl. *self-focusing*, SF) yra reiškinys, kai intensyvus šviesos pluoštas laikinai pakeičia medžiagos savybes ir ji tampa lęšiška terpe. Šviesos pluoštas turi erdvinį intensyvumo skirstinį statmenai sklaidimo ašiai (paprastai šis skirstinys lazerio pluoštui aprašomas Gauso funkcija), todėl sukuriama atitinkama terpės lūžio rodiklio moduliacija, kuri savo ruožtu iškreipia pluošto fazinį frontą. Jei netiesinis lūžio rodiklis $n_2 > 0$, medžiaga ims veikti kaip glaudžiamasis lęšis ir stebėsime pluošto fokusavimąsi, o jei $n_2 < 0$, medžiaga veiks kaip sklaidomasis lęšis ir pluoštas bus defokusuojamas. Intensyvumas pluoštuose, turinčiuose Gauso pavidalo profilį, nėra pasiskirstęs tolygiai – centrinėje pluošto dalyje jis būna didesnis negu periferijoje. Dėl to Kero efekto kuriamas lūžio rodiklio profilis atkartos pluošto profilį ir medžiagoje suformuos glaudžiamąjį arba sklaidomąjį lęšį. Šis efektas pavaizduotas 5 paveiksle.



5 pav. Lazerinio pluošto fokusavimasis [11]

Siekiant įvertinti šviesos pluošto fokusavimąsi, reikia lyginti lazerio smailinę galią su kritine galia, kuriai esant fokusavimosi reiškinys atsveria pluošto difrakcinę skėstį. Kritinė galia yra aprašoma:

$$P_{kr.} = \frac{\pi d^2}{4} I = \frac{(0.61)^2 \pi \lambda^2}{8 n_0 n_2}, \quad (1)$$

čia d – pluošto skersmuo, I – smailinės galios tankis, λ – centrinis bangos ilgis, n_0 – lūžio rodiklis ir n_2 – netiesinis lūžio rodiklis [3].

Impulso smailinei galiai viršijus kritinę vertę, fokusavimasis bus katastrofinis, t. y. pradinis kolimuotas pluoštas tam tikrame atstume kolapsuos į tašką. Šis atstumas yra vadinamas netiesiniu židinio nuotoliu ir gali būti įvertintas:

$$z_{sf} = \frac{2n_0w_0^2}{\lambda} \frac{1}{\sqrt{\frac{P}{P_{kr}} - 1}}, \quad (2)$$

kur w_0 – Gauso pluošto spindulys [3].

Realūs pluoštai kolapsuoja į tašką, kurio skersmuo artimas spinduliuotės bangos ilgiui. Populiarėjant femtosekundiniams lazeriams, pastebėta, kad ultratrumpieji impulsai ore gali fokusuotis nebūtinai į vieną tašką, tačiau gali transformuotis į siaurą, $\approx 100 \mu\text{m}$ skersmens giją (angl. *filament*). Tinkamai parinkus pradines sąlygas, šviesa nedifragavusi gali sklisti atstumus, siekiančius metrus ar net kilometrus. Toks sklidimo būdas buvo pavadintas filamentacija, arba šviesos gijos formavimusi.

2.2 Impulso fazės moduliavimasis

Šviesos impulso fazės moduliavimosi reiškinys (angl. *self-phase modulation*, SPM) yra šviesos pluošto fokusavimosi laikinis analogas. Optinė terpe sklindantis šviesos impulsas aprašomas lygtimi:

$$\tilde{E}(z, t) = \tilde{A}(z, t)e^{i(k_0z - \omega_0t)}, \quad (3)$$

kur $\tilde{A}(z, t)$ – bangos amplitudė, k_0 – bangos skaičius, ω_0 – bangos centrinis dažnis.

Šios terpės lūžio rodiklis sudarytas iš tiesinio (n_0) ir netiesinio lūžio rodiklio (n_2), kuris priklauso nuo bangos intensyvumo ($I(t)$):

$$n(t) = n_0 + n_2I(t), \quad (4)$$

kur intensyvumas aprašomas $I(t) = 2n_0\epsilon_0c|\tilde{A}(z, t)|^2$. Čia ϵ_0 – dielektrinė skvarba.

Ultratrumpajam impulsui sklindant optinė terpe, jo laikinis profilis indukuoja fazės kitimo dėsnį:

$$\varphi_{NL}(t) = -n_2I(t)\omega_0L/c. \quad (5)$$

Fazės pokytis yra kaupiamasis efektas sklidimo krypties atžvilgiu ir priklauso nuo terpės ilgio L . Žinant, kad bangos dažnis išreiškiamas kaip laikinė fazės išvestinė, impulso fazės moduliacija lems jo dažnio moduliaciją. Laike kintančios fazės rezultatas – spektro plitimas. Jis aprašomas pritaikius momentinį dažnį $\omega(t)$, kuris yra:

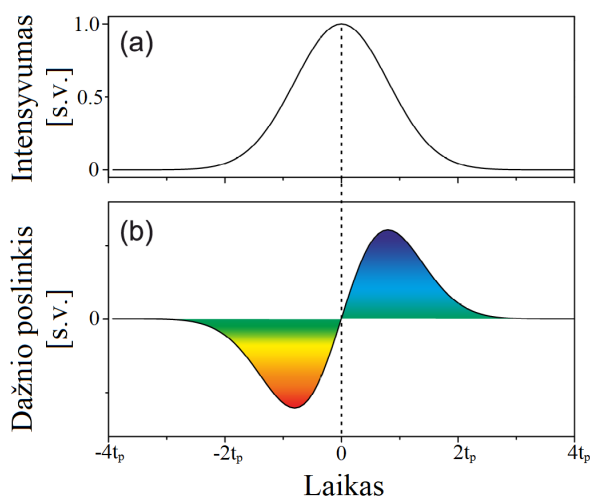
$$\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t), \quad (6)$$

kur

$$\delta\omega(t) = \frac{d}{dt}\varphi_{NL}(t) \quad (7)$$

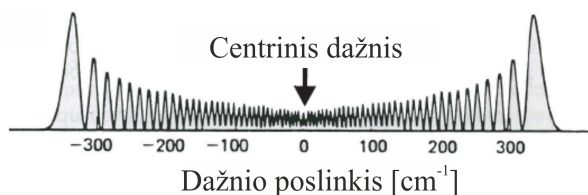
yra momentinio dažnio kitimas [3].

Intensyvumo kitimas laike lemia fazės pokytį, o laikinė fazės išvestinė duoda dažnį, todėl impulso fazės moduliacija lemia dažnio moduliaciją. Normaliosios grupinių greičių dispersijos atveju, sklindant impulsui priekinis jo frontas ($-t$) įgauna neigiamą dažnio poslinkį ir tampa ilgabangis, o galinis frontas ($+t$), įgaudamas teigiamą dažnio poslinkį, tampa trumpabangis (6 paveikslas). Toks šviesos impulsas yra vadinamas faziškai moduliotu – čirpuotu impulsu (angl. *chirped pulse*).



6 pav. Lazerinio impulso fazės moduliavimas: a – Gauso skirstinio impulsas ir b – fazės moduliacija, kur t_p – impulso trukmė [11]

Faziškai modulioto impulso spektras pateiktas 7 paveiksle. Matoma, kad spektrinė gaubtinė plinta simetriškai į abi puses centrinio dažnio atžvilgiu ir spektras pasižymi kvaziperiodinėmis osciliacijomis.



7 pav. Faziškai modulioto impulso spektrinė gaubtinė [11]

Taigi, lūžio rodiklio priklausomybė nuo intensyvumo sąlygoja impulso fazės moduliacijos atsiradimą, impulsų spektras yra praplečiamas naujais dažnio komponentais, o ekstremaliais atvejais spektras gali išplisti šimtus ar net tūkstančius kartų.

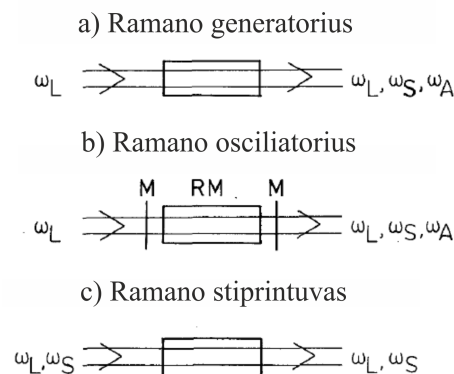
2.3 Superkontinuumo generacija

Didelės energijos lazerio impulsams sklindant terpe (kietaisiais kūnais, skysčiais ar dujomis) spinduliuotės spektras gali šimtus ar net tūkstančius kartų išplisti dėl Kero efekto sąlygojamų netiesinių efektų, tokių kaip: šviesos pluošto fokusavimosi, šviesos gijų formavimosi, impulsų fazės moduliavimosi, kryžminės fazės moduliacijos, savojo impulsų statėjimo ar laikinio impulsų skilimo. Pirmą kartą šis spinduliuotės spektro plitimas stebėtas 1970 metais R. R. Alfano ir S. L. Shapiro [12]. Toks spektro išplitimas pavadintas superkontinuumu arba kitaip baltos šviesos kontinuumu (angl. *supercontinuum*, SC).

Baltos šviesos kontinuumas dėl plataus spektro bei koherentiškumo turi plačias pritaikymo galimybes. Jis naudojamas ultrasparčioje lazerių spektroskopijoje, metrologijoje, optinėje koherentinėje tomografijoje ir vis dažniau taikomas kaip užkrato šaltinis optiniuose parametriniuose čirpuotų impulsų stiprintuvuose. Tokios sistemos leidžia pastiprinti femtosekundžių (10^{-15} s) trukmės impulsus, kurių smailinė galia gali siekti teravatų (10^{12} W) eiles.

3 Priverstinė Ramano sklaida lazerinėse sistemose

Priverstinė Ramano sklaida rado savo pritaikymą tiriant įvairių molekulių virpesinių ir rotacinių lygmenų struktūrą Ramano spektroskopijos ir koherentinės Antistoksinės Ramano spektroskopijos metodais, taip pat mikroskopijoje, skaidulinių ir kieto kūno lazerių fizikoje kaip spinduliuojamo dažnio keitikliai ar stiprintuvai. Lazerių fizikoje bendrai yra išskiriamos trys Ramano sklaidos eksperimentinės situacijos, kurios pateiktos 8 paveiksle.



8 pav. Priverstinės Ramano sklaidos eksperimentinės schemas: a – Ramano generatorius, b – Ramano osciliatorius ir c – Ramano stipinuvus, kur RM – Ramano aktyvioji terpė, M – veidrodis, ω_L , ω_S ir ω_A – kaupinimo, Stokso ir Antistokso bangos dažnis [13]

Principinės Ramano sklaidos lazerinės sistemos:

1. Ramano generatorius – terpėje iš kvantinių triukšmų generuojama ir stiprinama priverstinė sklaida, kaupinant lazeriniu šaltiniu.
2. Ramano osciliatorius – mažo stiprinimo terpė yra patalpinama optiniame rezonatoriuje, kuris daugelio praėjimų metu generuoja ir stiprina paslinkto dažnio spinduliuotę.
3. Ramano stiprintuvas – vieno ar kelių praėjimų metu yra stiprinama atėjusi signalinė banga, kaupinant fundamentinės spinduliuotės šaltiniu.

3.1 Priverstinės Ramano sklaidos spektrinės charakteristikos

Priverstinės Ramano sklaidos spektro plitimą aukšto slėgio vandenilio dujose stebėjo V. G. Bespalov 1997 metais [14]. Ramano sklaidą žadino su titano safyro aktyviosios terpės lazerio antrąja harmonika ($\lambda_c = 390$ nm, spektro plotis 70 cm^{-1}), kurios impulso trukmė apie 400 fs. Pasiekė 40 % energijos keitimo efektyvumą ir stebėjo spektro plitimą nuo 70 cm^{-1} iki 250 cm^{-1} , kas leido pasiekti beveik 3 kartus trumpesnius Stokso impulsus. Tokį žymų spektro plitimą autoriai aiškino kaupinimo bangos Reilėjaus sparno sklaidos atsiradimu.

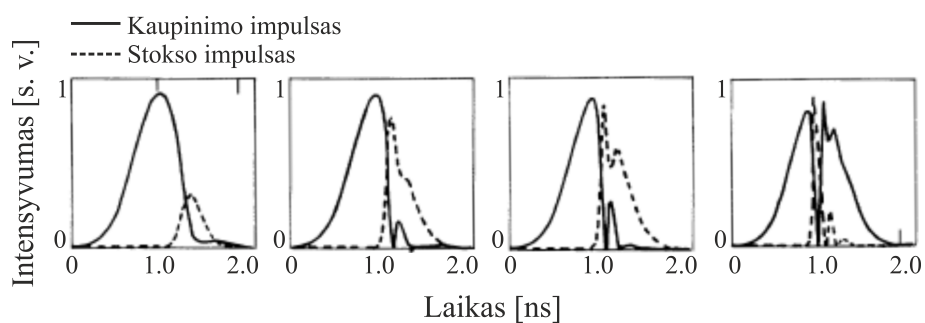
Panašiomis sąlygomis Y. Uesugi žadino SRS vandenilio ir metano dujose, tačiau kaupinant su 2.5 ps trukmės titano safyro lazerio antrosios harmonikos impulsais [15]. Stebėtas pirmos eilės Stokso dažnio poslinkį įgavusio impulso spektro plitimas. Autorių teigimu, tokį spektro plitimą ir kaupinimo impulso nuskurdinimą lemia fazės moduliavimosi reiškinys.

A. G. Shvedko 2001 metais išskyrė keturis SRS žadinimo vandenilio dujose režimus didinant kaupinimo impulso energiją [16]. Pirmame režime žadinama tik pirmos eilės Stokso komponentė, kurios spektro plotis nežymiai didesnis už kaupinimo. Antras režimas pasižymi tuo, kad generuojamas antros eilės Stoksas bei pirmos eilės Antistoksas, kurie sklinda kūgine kryptimi. Šiame režime kaupinimo spektras plėtėja, o pirmos eilės Stokso – siaurėja. Trečiame režime kaupinimo spektras dar daugiau plėtėja, pirmos eilės Stokso komponentės spektras taip pat nežymiai praplatėja. Ketvirto režimo metu kaupinimo ir visų Stokso komponentų spektrai plėtėja ir persikloja dėl žadinamo silpno superkontinuumo. Iš to nustatyta, kad pagrindinė spektro plitimo priežastis yra amplitudinė – fazinė kaupinimo impulso moduliacija dėl nenuostoviojo SRS režimo. Šios moduliacijos dydis ir Ramano sklaidos spektro plitimas priklauso nuo kaupinimo impulso smailinės galios tankio.

Šie moksliniai darbai parodė, kad priverstinės Ramano sklaidos žadinamų Stokso ir Antistokso komponentų dažnių juosta gali plisti net kelis kartus, kas leistų generuoti atitinkamai kelis kartus trumpesnius lazerinius impulsus įvairiose bangos ilgių srityse.

3.2 Priverstinės Ramano sklaidos žadinto impulso trukmės kitimo dinamika

Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos proceso laikinę dinamiką pirmieji tyrė G. I. Kachen komanda 1976 metais [17]. Teorinių skaičiavimų ir eksperimentų būdais iširta 1064 nm centrinio bangos ilgio, 0.8 ns trukmės ir 200 mJ energijos impulsų sklaida vandenilio dujose.



9 pav. Kaupinimo ir Stokso impulsų gaubtinių kitimo dinamikos didinant sklaidimo atstumą [17]

Skaitmeninio modeliavimo rezultatai sutapo su eksperimento tyrimais ir 9 paveiksle pateikta kaupinimo ir Stokso impulsų dinamika, kintant Ramano sklaidai aktyvios terpės ilgiui.

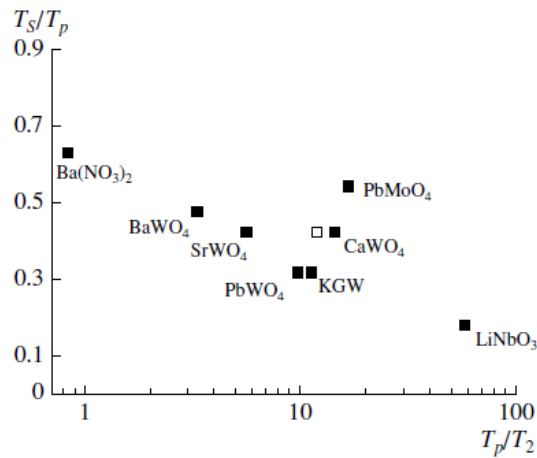
Ramano sklaidos generuojamas Stokso impulsas naudoja kaupinimo impulso galinio fronto energiją ir nuskurdina jį. Dėl šios priežasties kaupinimo impulso galinis frontas statėja, o Stokso impulsas trumpėja. Tai vyksta tol, kol kaupinimo impulsas tampa pilnai nuskurdintas.

Ramano sklaida paremtą impulsų spaudimo metodiką tyrė A. Agnesi 1991 metais [18]. Šis metodas siūlo trijų pakopų impulsų kompresiją: pirmoje pakopoje 4 ns trukmės impulsai suspaudžiami Brijueno sklaidai aktyvioje terpėje iki 150 ps trukmės, sekančioje pakopoje šie impulsai spaudžiami vykstant Ramano sklaidos procesui ir žadinant pirmos eilės Stokso bangą, o trečioje pakopoje žadinama pirmos eilės Antistokso banga, taip išlaikant pradinį spinduliuotės bangos ilgį ir sutrumpinant impulsus iki 3 – 6 ps trukmės. Toks šviesos sklaidos pritaikymas išpopuliarėjo kaip paprastas ir universalus metodas generuoti kelis / keliasdešimt kartų trumpesnius lazerinius impulsus.

Įvairių dujų terpės Ramano sklaidai patrauklios dėl didelio dažnio poslinkio, mažos grupinių greičių dispersijos bei didelio optinio atsparumo. Tačiau pagrindinis trūkumas – blogas šiluminis laidumas, dėl kurio ribotas kaupinimo impulsų pasikartojimo dažnis. Dėl šios priežasties S. V. Kurbasov 1999 metais vykdė Ramano sklaidą KGW kristale [19]. Kristalinę terpę kaupino 19 ps trukmės, 532 nm centrinio bangos ilgio impulsais ir generavo beveik 12 kartų trumpesnius Stokso impulsus.

Ženklaus Stokso impulsų trumpėjimas kietakūnėje terpėje skatino mokslinių tyrimų veiklą ir D. S. Chunaev 2006 metais paskelbė Ramano sklaidai aktyvių kietakūnių terpių apžvalginį straipsnį [20]. Naudodami 1047 nm centrinio bangos ilgio ir 22 ps impulso trukmės spinduliuotę tyrė Stokso ir kaupinimo impulsų trukmių santykio priklausomybę nuo kaupinimo impulso ir terpės optinio fonono relaksacijos trukmių santykio (10 paveikslas).

Mūsų tyrime naudojamas kalio gadolinio volframas – KGW, kuris D. S. Chunaev pateiktam paveiksle užima vidutinę vietą, kur Stokso impulso trukmė sumažėja apie 3 kartus. Todėl, neatsižvelgiant į kitus optinius procesus, tai mums leidžia tikėtis panašaus impulso trumpėjimo.



10 pav. Stokso ir kaupinimo impulsų santykio priklausomybė nuo kaupinimo impulso ir optinio fonono relaksacijos trukmės santykio [20]

Ramano sklaidos tyrimai parodė, kad šis optinis procesas gali būti pritaikomas ne tik bangos ilgio keitime, bet ir impulsų kompresijoje. Pritaikius minėtus metodus, lazeriniai impulsai gali būti sutrumpinti iki 1000 kartų.

3.3 Impulso fazės moduliavimosi įtaka priverstinei Ramano sklaidai

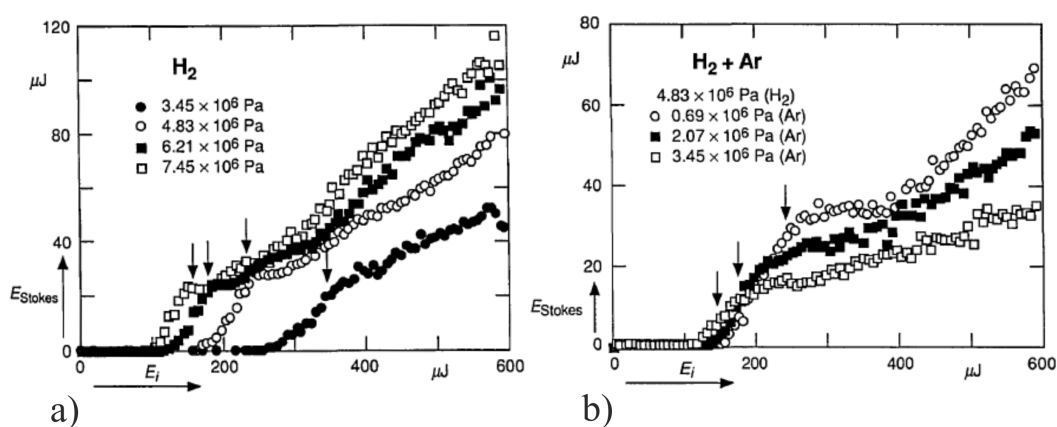
Femtosekundinių lazerių eros pradžioje pagrindiniai ultratrumpųjų impulsų šaltiniai buvo dažalų lazeriai, kurių centrinis bangos ilgis galėjo būti nežymiai derinamas regimojoje srityje. Pirmasis metodas, kaip tokių lazerių bangos ilgį pastumti link artimosios infraraudonosios srities, buvo Ramano sklaida. Dažalų lazerio bangos ilgio keitimą Ramano sklaida paskelbė R. S. Adrain, E. G. Arthurs ir W. Sibbett 1975 metais [21]. Žadindami Ramano sklaidą etanolio terpėje pastebėjo spektrinę moduliaciją, kuri kilo iš impulso fazės moduliavimosi, kas sumažino Ramano sklaidos efektyvumą.

Siekiant išvengti šio ribojimo, mokslinė grupė pratesė darbą dujų terpėse. P. G. May ir W. Sibbett 1983 metais paskelbė kitą straipsnį, kuriame dažalų lazerio bangos ilgis buvo efektyviai keičiamas vandenilio dujose, papildomai stebint impulso trumpėjimą [22]. Dujų terpė, dėl mažo tiesinio ir netiesinio lūžio rodiklio leido išvengti Kero efekto sukeltų netiesinių efektų.

Iš kitos pusės į šią problemą pažvelgė J. K. Wang mokslinė grupė [23]. Straipsnyje paskelbė vandenilio dujų papildymą vienatomėmis argono dujomis, kurių lūžio rodiklis yra 1.2 karto didesnis, todėl tai leido stebėti didesnę fazės moduliavimąsi. Ramano sklaida tokiam dujų mišinyje su 100 fs trukmės lazeriniais impulsais parodė, kad fazės moduliavimasis atsveria Ramano sklaidą, todėl išplėtus lazerinį impulsą iki 840 fs efektyviai žadinama Ramano sklaida.

Ramano sklaidos Stokso komponentės impulso energijos priklausomybėje nuo kaupinimo

impulso energijos išskyrė tris sritis (11 paveikslas). Mažos energijos srityje nenuostoviosios Ramano sklaidos stiprinimo koeficientas yra proporcingas kaupinimo impulso energijos kvadratinei šakniai. Šioje energijos srityje fazės moduliavimasis nestebimas. Vidutinės energijos režime fazės moduliavimasis efektyvus ir slopina Ramano sklaidą. Kaupinimo impulso energija padalinama naujiems dažnių komponentams taip nuskurdinant centrinį dažnį ir mažinant Ramano sklaidos efektyvumą. Didelės energijos režime fazės moduliavimasis sotinasi ir nepriklauso nuo dujų slėgio ar kaupinimo impulso energijos (11 paveiksle pažymėta rodyklėmis). Šiame režime Ramano sklaidos efektyvumas vėl pradeda augti tiesiškai. Matoma, kad vandenilio dujas papildžius vienatomėmis argono dujomis fazės moduliavimosi efekto sotis slenkasi į didesnės kaupinimo impulso energijos sritį, kas leistų kaupinimo impulso spektrinę gaubtinę papildyti naujomis dažnių komponentėmis.



11 pav. Stokso impulso energijos priklausomybės nuo kaupinimo impulso energijos, keičiant dujų slėgi: a – vandenilio dujos ir b – vandenilio ir argono dujų mišinys [23]

Panašų tyrimą atliko C. Jordan naudodami femtosekundinį dažalų lazerį žadinti Ramano sklaidą metano dujose [24]. Priverstinės Ramano sklaidos slenksčio energijų srityje išvengiama fazės moduliavimosi, tačiau pasiekiamas mažas energijos keitimo efektyvumas bei prastas Stokso impulso energijos stabilumas. Padidinus kaupinimo impulso energiją stebima fazės moduliacija ir pluošto fokusavimasis, tačiau tai leido pasiekti 20 % energijos keitimo efektyvumą ir Stokso impulsus prizminiu kompresoriumi suspausti 6.8 karto iki 85 fs trukmės.

I. G. Koprinkov mokslinė grupė tyrė priverstinės Ramano sklaidos ir fazės moduliavimosi reiškinio sąveiką metano dujose [25]. Pastebėta, kad didinant dujų slėgį Ramano sklaidos stiprinimo koeficientas auga, tačiau Stokso bangos dažnių juosta siaurėja, išlikdama platesnė už kaupinimo impulso spektrą. Taip pat, autoriai teigia, kad didinant dujų slėgį, fazės moduliavimosi reiškinys tampa mažiau ryškus ir nestebima Stokso spektro gaubtinės moduliacija.

Taigi, šių mokslinių darbų formuluojama išvada teigia, kad netiesinis fazės moduliavimosi reiškinys, kuris slopina Ramano sklaidos efektyvumą, tampa reikšmingas tik ultratrumpiesiems impulsams bei priklauso nuo Ramano sklaidai aktyvios terpės tiesinio ir netiesinio lūžio rodiklių. Mūsų tyrime yra tikimasi stebėti pikosekundinio kaupinimo impulso indukuotą Kero efektą,

todėl svarbu nustatyti optimalias sąlygas fazės moduliavimosi sukurto spektro plitimui, išlaikant pakankamai efektyvią Ramano sklaidą.

3.4 Priverstinės Ramano sklaidos stiprinimas

Pirmieji priverstinės Ramano sklaidos eksperimentai buvo vykdomi pasitelkiant ganėtinai ilgus impulsus (ns eilės) spinduliuojančias lazerines sistemas. Tai lėmė dujinių Ramano sklaidai aktyvių terpių populiarumą ir pritaikomumą. Dujinės terpės pasižymi labai dideliu dažnio poslinkiu bei aukštu pramušimo slenksčiu, todėl tai leido efektyviai žadinti įvairaus bangos ilgio spinduliuotę.

Galimybė generuoti ultratrumpuosius lazerinius impulsus (ps – fs eilės) atvėrė naują priverstinės Ramano sklaidos tyrimų sritį, kur žadinimo impulsų trukmė mažesnė už Ramano sklaidai aktyvios terpės relaksacijos laiką. Toks režimas buvo pavadintas nenuostoviąja Ramano sklaida, kurios slenkstis priklauso nuo impulso energijos, o ne smailinės galios tankio. Kaip buvo minėta ankstesniuose skyriuose, nenuostoviuoju režimu Ramano sklaidos Stokso ir Antistokso komponentai pasižymi spektro plėtėjimu ir impulso trukmės mažėjimu. Taip pat, ultratrumpieji impulsai, dėl optinio Kero efekto, patiria erdvinius ir laikinius netiesinius efektus, kurie atsveria Ramano sklaidos efektyvumą.

Siekiant išvengti ultratrumpųjų šviesos impulsų saviveikos reiškinių ir padidinti Ramano sklaidos efektyvumą, buvo pritaikyta čirpuotų impulsų stiprinimo idėja – laike išplėsti impulsą. C. Jordan 1994 metais vykdė tyrimą, kuriame Ramano sklaida buvo žadinama su čirpuotais impulsais, kas leido sumažinti pluošto fokusavimosi reiškinio įtaką sklaidai bei pasiekti 85 fs trukmės Stokso impulsus [24].

Kaupinimo impulsų išplėtimas laike leido Ramano sklaidą vykdyti ilgose ir mažo skersmens terpėse – skaidulose. A. Gladyshev 2020 metais tyrė Ramano sklaidą mikrostruktūrizuotoje deuterio dujomis užpildytoje skaiduloje, kaupinant 1032 nm centrinio bangos ilgio ir 10 ps trukmės impulsais [26]. Žadinant antros eilės Stoksą buvo pasiekta 10 μ J impulsų energiją ir 2.68 μ m centrinio bangos ilgio impulsai buvo suspausti iki 920 fs trukmės. Toks metodas yra vienas paprasčiausių ir efektyviausių būdų pasiekti tolimesnę infraraudonąją sritį.

Priverstinė Ramano sklaida nenuostoviuoju režimu nepasiekia didelio energijos keitimo efektyvumo, todėl pritaikyta papildoma stiprinimo pakopa. A. I. Vodchits vandenilio dujose žadino Ramano sklaidą, kaupinant 1 ps trukmės, 395 nm centrinio bangos ilgio impulsais [27]. Dvi pakopos leido pasiekti 47 % energijos keitimo efektyvumą bei išlaikyti 1 ps trukmės Stokso impulsus. Tačiau, dujinėje terpėje Ramano sklaidą kaupinant 1 kHz impulsų pasikartojimo dažniu stebėjo šiluminių reiškinių įtaką erdviniui pluoštui. Tai parodė, kad yra impulsų pasikartojimo dažnio riba, kai galima efektyviai ir išvengiant terminių reiškinių žadinti Ramano sklaidą dujų terpėje.

Terminės įtakos išvengiama geru šiluminiu laidumu pasižyminčiose kieto kūno terpėse. F. B. Grigsby mokslinė grupė 2008 metais tyrė 200 ps trukmės čirpuotų impulsų Ramano sklaidos stiprinimą $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ kristale bei pritaikė antrą stiprintuvo pakopą, kuri leido dar labiau

padidinti Stokso impulso energiją [28]. Šie impulsai atkartojo kaupinimo impulso fazę ir buvo suspausti iki 100 fs trukmės.

Panašus tyrimas atliktas V. A. Orlovich, naudojant titano safyro aktyviosios terpės lazerinę sistemą, generuojančią 150 fs trukmės impulsus. Siekiant išvengti šviesos saviveikos reiškinių, Ramano sklaida pirmoje pakopoje žadinta Beselio skirstinio pluoštu KGW kristale. Papildomai naudojant antrą Ramano sklaidos stiprinimo pakopą pasiektas 50 % energijos keitimo efektyvumas ir stebėtas Stokso impulso spektro gaubtinės plitimas [29].

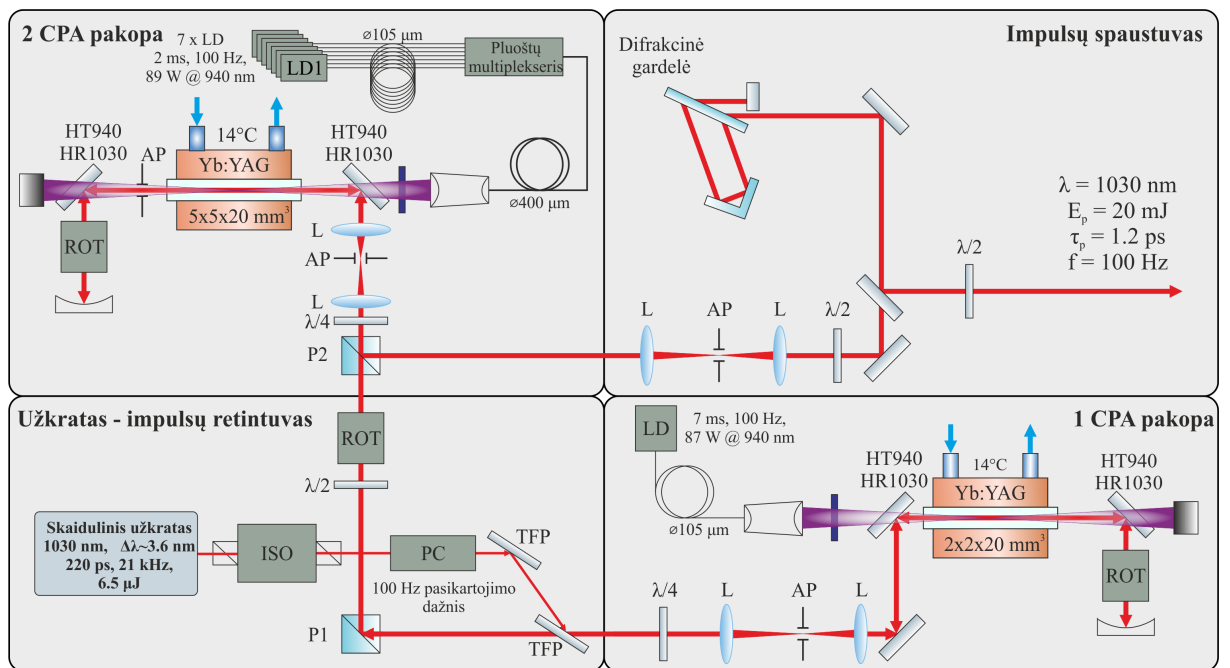
Priverstinės Ramano sklaidos procesas pasižymi Stokso erdvinio pluošto valymu, kaupinantis trukmės impulsais. Tačiau, dėl šviesos saviveikos reiškinių – pluošto fokusavimosi, ultratrumpieji impulsai Ramano sklaidos metu patiria pluošto iškraipymus. Dėl šios priežasties pirma Ramano sklaidos žadinimo pakopa buvo pakeista superkontinuumo generacija, kuri paprastai ir efektyviai žadinama įvairiose terpėse. V. Krylov 1996 metais pasitelkęs titano safyro aktyviosios terpės lazerio antrąją harmoniką žadino superkontinuumą stiklinėje plokštelėje ir vėliau jį stiprino vandenilio dujose [30]. Autorius pastebėjo, kad naudojant užkratą priverstinės Ramano sklaidos stiprinimui, stebimas Stokso spektro plėtėjimas bei pasiekiamas geresnis erdvinio skirstinio ir impulso energijos stabilumas.

Kaip buvo minėta, didesnio dažnio optinė spinduliuotė daug efektyviau sklaidoma Ramano terpėje. Tačiau dažniausiai yra siekiama artimosios infraraudonosios bangų ilgių srities sklaida, kas leistų bangos ilgį dar daugiau pastumti į ilgabangę sritį. Šio tikslo siekė O. V. Baganov mokslinė grupė, kuri vandens terpėje generavo superkontinuumą ir jį stiprino KGW kristale vykstant Ramano sklaidai [31]. Tyrimo metu bandyta stiprinti Stokso bangą ultratrumpuoju arba čirpuotu kaupinimo impulsu, siekiant išvengti netiesinių reiškinių. Tai parodė, kad kaupinantis suspaustu impulsu, Stokso spektro gaubtinė praplatėjo 5 kartus, lyginant su laike išplėsto impulso pastiprintu spektru. Autoriai teigė, kad toks spektro plitimas galimai kyla iš impulso fazės moduliacijos.

4 Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprintuvo architektūra

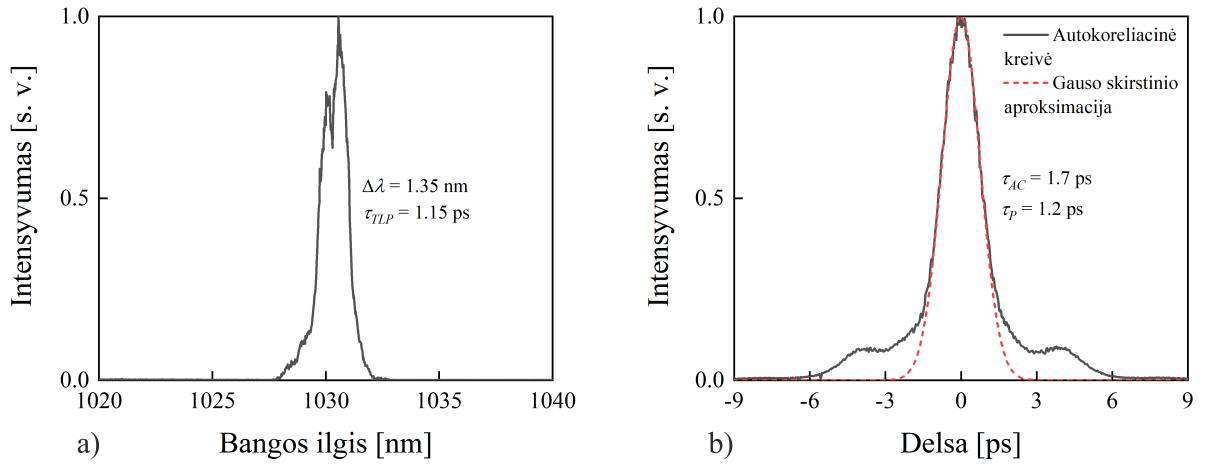
4.1 Čirpuotų impulsų stiprintuvo lazerinė sistema

Superkontinuumo žadinimui bei priverstinės Ramano sklaidos stiprintuvui kaupinti buvo panaudota čirpuotų impulsų stiprintuvo (angl. *chirped pulse amplification*, CPA) – kompresoriaus lazerinė sistema, paremta itrio aliuminio granato, legiruoto iterbio jonais – Yb:YAG kristalu [32]. Bendra stiprintuvo schema pateikta 12 paveiksle.



12 pav. Yb:YAG stiprintuvo – kompresoriaus principinė schema: ISO – Faradėjaus izoliatorius, ROT – Faradėjaus rotatorius, PC – Pokelso narvelis, P – poliarizacinis kubas, TFP – plonasluoksnis poliarizatorius, λ/2 – pusės bangos ilgio fazinė plokštelė, λ/4 – ketvirčio bangos ilgio fazinė plokštelė, L – lęšis, AP – apertūra, HT940/HR1030 – dichroinis veidrodis, LD – lazerinis kaupinimo diodas

Stiprintuvo užkrato signalui panaudotas skaidulinis sinchronizuotų modų lazeris, kuris generuoja 3.6 nm spektrinio pločio FWHM lygyje, faziškai moduluotus 0.22 ns trukmės, 1030 nm centrinio bangos ilgio impulsus. Užkrato lazeris 21 kHz pasikartojimo dažniu generuoja impulsus, kurie, pasitelkiant Pokelso narvelį, išretinami iki 100 Hz pasikartojimo dažnio. Skaidulinio užkrato impulsai stiprinami dviejuose dviejų lėkių čirpuotų impulsų stiprintuvo pakopose, kaupinant 100 Hz pasikartojimo dažnio impulsiniu režimu veikiančiais lazeriniais diodais.

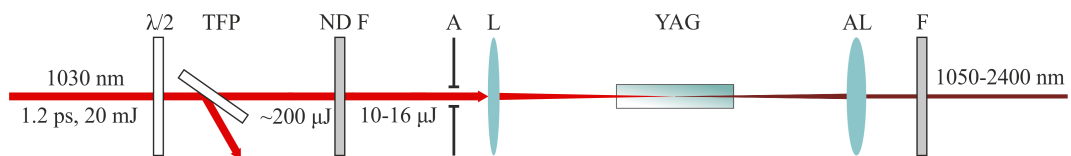


13 pav. Dviejų pakopų Yb:YAG CPA stiprintuvo – kompresoriaus pastiprinto ir suspausto impulso: a – spektrinė gaubtinė ir b – autokoreliacinė kreivė ir Gauso skirstinio aproksimacija

Pastiprintos išvadinės spinduliuotės erdvinis profilis atitinka Gauso skirstinį ir pasižymi puikiu sklidimo faktoriumi $M^2 = 1.1$. Spinduliuotės spektrinė gaubtinė stiprinimo metu susiaurėja iki 1.35 nm pločio FWHM lygyje (13 paveikslo a dalis). Pastiprinti impulsai spaudžiami 4 praėjimų pralaidumo gardelės kompresoriuje, po kurio impulsų energija siekė 20 mJ, o trukmė 1.2 ps (13 paveikslo b dalis). Šių impulsų laiko – dažnio juostos produktas (angl. *time–bandwidth product*, *TBP*) siekė 0.458, kuris nežymiai prastesnis už idealaus Gauso skirstinio impulso koeficientą ($TBP = 0.441$).

4.2 Plataus spektro užkrato formavimas – superkontinuumo žadinimas

Superkontinuumo generavimas atliekamas atskyrus mažą dalį impulso energijos 4.1 skyriuje aprašytos lazerinės sistemos spinduliuotės. Superkontinuumo žadinimo pakopai, naudojant pusės bangos ilgio fazinę plokštelę ir plonasluoksnį poliarizatorių buvo išskirta $\sim 200 \mu\text{J}$ impulso energija. Tokiu būdu, papildomai naudojant neutralaus optinio tankio filtrą, kaupinimo impulso energija buvo derinama 10 – 16 μJ impulso energijos srityje. Žadinimo energijos parinktos siekiant išvengti optinių pažeidimų itrio aliuminio granato (angl. *yttrium aluminium garnet*, YAG) kristale. Principinė superkontinuumo generacijos schema pateikta 14 paveiksle.



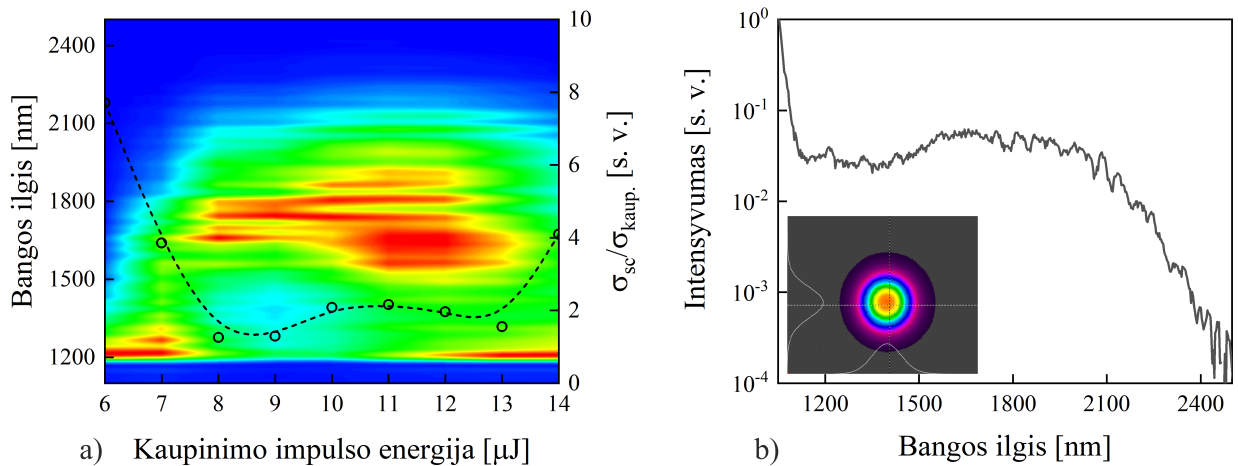
14 pav. Superkontinuumo generacijos principinė schema, $\lambda/2$ – pusės bangos ilgio fazinė plokštelė, TFP – plonasluoksnis poliarizatorius, ND F – neutralaus optinio tankio filtras, A – apertūra, L – 200 mm židinio nuotolio fokusavimo lęšis, YAG – 15 mm ilgio itrio aliuminio granato kristalas, AL – 30 mm židinio nuotolio achromatinis kolimavimo lęšis, F – spektrinis filtras

4 mm ($1/e^2$ lygmenyje) skersmens, 1030 nm centrinio bangos ilgio kaupinimo spinduliuotės pluoštas buvo apribotas keičiamo skersmens apertūra ir tada fokusuojamas į 15 mm ilgio YAG kristalą su 200 mm židinio nuotolio lęšiu. Sugeneruoto superkontinuumo pluoštas kolimuojamas 30 mm židinio nuotolio achromatiniu lęšiu *Thorlabs AC127-030-C-ML*, o spektras filtruojamas, norint pašalinti 1030 nm bangos ilgio kaupinimo spinduliuotę.

Siekiant iširti ir rasti optimalias sąlygas vienos šviesos gijos superkontinuumo generacijai YAG kristale, buvo keičiama kaupinimo spinduliuotės impulso energija, pradedant nuo kritinės smailinės galios, reikalingos pluošto fokusavimuisi vykti ir baigiant dar prieš kristalo optinio pažeidimo slenksčio smailinę galią. Taip pat keičiant fokusavimo geometriją buvo stebimi spektro, pluošto bei impulso energijos pokyčiai. Superkontinuumo spektrinės gaubtinės ir santykinio energijos stabilumo priklausomybės nuo kaupinimo energijos pateiktos 15 paveikslu a dalyje. Generuojamas superkontinuumas pasižymi 25 % blogesniu impulso energijos stabilumu lyginant su kaupinimo impulsu. Visoje kaupinimo impulso energijos srityje, erdvinis superkontinuumo skirstinys atitinka Gauso skirstinį ir ilgalaikio veikimo metu nepatiria iškraipymų.

Atsižvelgiant į spektrines, energetines ir erdvinės superkontinuumo savybes buvo įvertintos optimaliausios sąlygos superkontinuumo žadinimui ilgabangėje spektrinėje srityje (1050 – 2400 nm):

- $NA = 0.01$ skaitinės apertūros fokusavimo geometrija, kai pluošto skersmuisi sąsmaukoje yra 72 μm ;
- $E_p = 13 \mu\text{J}$ žadinimo impulso energija;
- fokusuoto pluošto sąsmauka 3 mm atstumu nuo kristalo priekinio paviršiaus;
- smailinė galia $P = 8.1 \cdot P_{kr.}$.

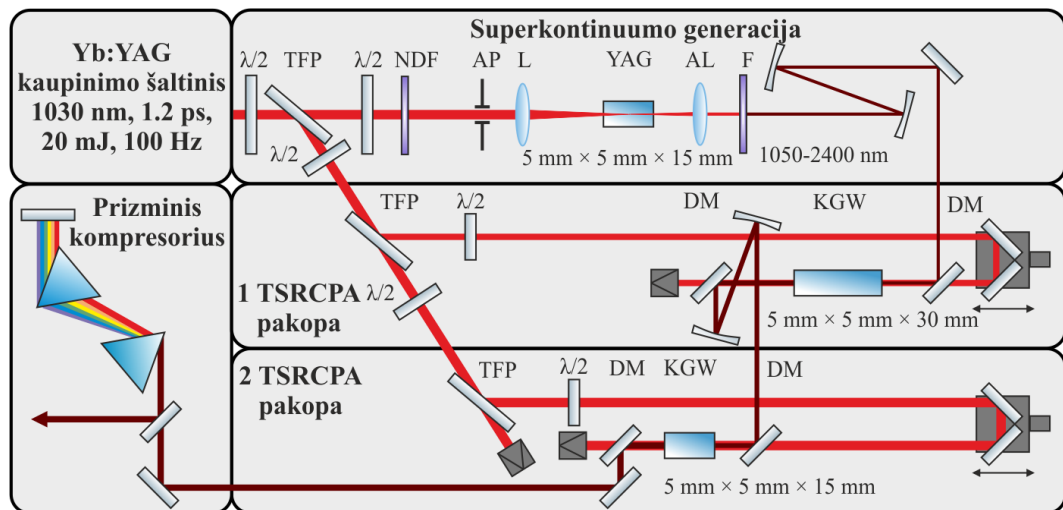


15 pav. Superkontinuumo spektrinės gaubtinės ir santykinio energijos stabilumo priklausomybė nuo kaupinimo impulso energijos – a ir ilgabangio superkontinuumo spektro gaubtinė ir erdvinis skirstinys optimaliomis žadinimo sąlygomis – b

Optimaliomis žadinimo sąlygomis sugeneruoto superkontinuumo spektro gaubtinė pateikta 15 paveikslo b dalyje. Ilgalaikio veikimo metu YAG kristale nepastebėta jokių tūrinių ar paviršinių optinių pažeidimų. Tai patvirtino, kad toks pikosekundiniais impulsais žadintas superkontinuumas yra puikus užkrato šaltinis priverstinės Ramano sklaidos stiprinimo sistemai.

4.3 Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprinimo schema

Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos čirpuotų impulsų stiprinimas (angl. *transient stimulated Raman chirped-pulse amplification*, TSRCPA) buvo tiriamas dviejų pakopų, parentų kalio gadolinio volframato (KGW) kristalais stiprintuve, kurio principinė schema pateikta 16 paveiksle.



16 pav. Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos čirpuotų impulsų stiprintuvo principinė schema: $\lambda/2$ – pusės bangos ilgio fazinė plokštelė, TFP – plonasluoksnis poliarizatorius, NDF – neutralaus optinio tankio filtras, AP – apertūra, L – lęšis, YAG – itrio aliuminio granato kristalas, AL – achromatinis lęšis, F – ilgabangis spektrinis filtras FELH1050, DM – dichroinis veidrodis HR1100-1150/HT1030, KGW – kalio gadolinio volframato kristalas

Sužadinto superkontinuumo pluoštas sferiniais sidabriniais veidrodžiais padidinamas iki 1.8 mm dydžio ($1/e^2$ lygmenyje), sidabrinio veidrodžiu ir dichroiniu veidrodžiu nuvedamas į KGW kristalą, kur kolineariai arba 3 laipsnių kampu suvedamas su 1030 nm centrinio bangos ilgio 2.3 mm skersmens kaupinimo pluoštu.

Pirmos TSRCPA pakopos pastiprintas Stokso pluoštas padidinamas iki 2.1 mm ir antroje stiprinimo pakopoje kolineariai arba 3 laipsnių kampu suvedamas su 3.0 mm pluošto dydžio kaupinimu. Kaupinimo pluošto skersmuo 20 – 30 % didesnis už užkrato pluoštą, siekiant efektyviai stiprinti signalą visoje erdvėje.

Užkrato ir kaupinimo impulsų laikinis persiklojimas užtikrinamas naudojant optinę vėlinimo liniją kaupinimo impulsui. Pasitelkiant pusės bangos ilgio fazines plokšteles, kaupinimo ir

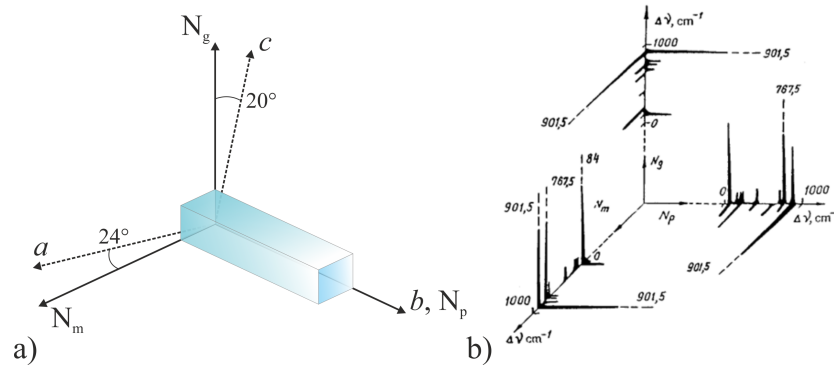
užkrato elektrinių laukų vektoriai sutapatinami su viena iš KGW kristalo optinių ašių, siekiant dviejų pagrindinių Ramano sklaidos modų: $\Delta\nu = 768 \text{ cm}^{-1}$ (N_g) ir $\Delta\nu = 901 \text{ cm}^{-1}$ (N_m).

Po dviejų stiprinimo pakopų Stokso impulso dispersija kompensuojama N-SF11 stiklo prizmių pora, kurių viršūnės kampas yra 59° .

4.4 Kalio gadolinio volframato – KGW kristalinė terpė

Kalio gadolinio volframatas – $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ (trumpinys – KGW), tai optiškai anizotropinė kristalinė terpė, pasižyminti plačia optinio skaidrumo juosta ($0.35 - 5.5 \mu\text{m}$) ir geru šiluminiu laidumu ($2.6 - 6.8 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$) [33]. Šios savybės itin svarbios neodimio – Nd arba iterbio – Yb jonais legiruotoms KGW kristalinėms matricoms lazeriniuose rezonatoriuose ar stiprintuvuose. Tačiau mūsų taikymui svarbiausia šio kristalo savybė yra Ramano sklaida – dvi stipriausios savaiminės Ramano sklaidos poslinkio modos: $\Delta\nu = 768 \text{ cm}^{-1}$ (p[gg]p) ir $\Delta\nu = 901 \text{ cm}^{-1}$ (p[mm]p). Šių dažnio poslinkių juostų pločiai: 768 cm^{-1} modai – 7.8 cm^{-1} ir 901 cm^{-1} modai – 5.9 cm^{-1} [34]. Ramano modų vibracinių lygmenų relaksacijos trukmė $T_2 \approx 1.6 - 5.6 \text{ ps}$ [35]. Be to, KGW kristalas pasižymi dideliu tiesiniu lūžio rodikliu ir vidutiniu netiesiniu lūžio rodikliu artimojoje infraraudonojoje srityje, 790 nm centrinio bangos ilgio netiesinis lūžio rodiklis $n_2 = 16 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ [36].

Šiame darbe naudoti dviejų matmenų KGW kristalai: $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$ ir $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$, abu dengti skaidrinančiomis dangomis 1030 nm centrinio bangos ilgio spinduliuotei. Kristalai pjauti b kristalografine ašimi, 17 paveikslo a dalyje pavaizduotos kristalo optinės ir kristalografinės ašys.



17 pav. Kalio gadolinio volframato optinės ir kristalografinės ašys – a ir savaiminės Ramano sklaidos spektrai skirtingose KGW optinėse ašyse – b [34]

Kristalo b kristalografinė ašis sutampa su kristalo optine N_p ašimi. Kitos kristalografinės ašys a ir c sudaro 24 ir 20 laipsnių kampus su optinėmis ašimis N_m ir N_g atitinkamai.

Elektromagnetinės bangos vektorių sutapatinus su viena iš optinių ašių žadinamos skirtingo Ramano poslinkio modos. Pagrindiniai Ramano modų poslinkiai skirtingose optinėse ašyse pavaizduoti 17 paveikslo b dalyje.

Vykstant Ramano sklaidai KGW kristalinėje terpėje, dėl skirtingų kaupinimo ir Stokso bangos ilgių, normalios dispersijos srityje Stokso banga sklinda greičiau už kaupinimo bangą, anomalioje srityje – atvirkščiai. Dėl šios priežasties apskaičiuotas grupinio greičio nederinimo (angl. *group velocity mismatch*, GVM) ilgis 1030 nm centrinio bangos ilgio ir 768 cm⁻¹ ir 901 cm⁻¹ dažnio poslinkio Stokso impulsams:

$$L = \frac{\tau_p}{\frac{1}{v_{g1}} - \frac{1}{v_{g2}}}. \quad (8)$$

Ramano modai, kurios Stokso poslinkis yra 768 cm⁻¹ grupinio greičio nederinimo ilgis yra 44 mm, o 901 cm⁻¹ modai 38 mm.

Taigi, grupinio greičio nederinimo ilgiai yra didesni už naudojamų KGW kristalų ilgius, todėl galima tikėtis stiprinimo visame terpės ilgyje, neatsižvelgiant į kitus optinius procesus.

Ramano sklaidos stiprinimo prieaugis priklauso nuo kaupinimo ir Stokso bangų fazių. Dėl lūžio rodiklio dispersijos šis fazinis ryšys nyksta bangoms sklindant terpe ir šis koherentinis ilgis aprašomas:

$$l_{coh} = \frac{c\pi}{2(n_p - n_s)\Delta\omega_L}, \quad (9)$$

kur n_p – terpės lūžio rodiklis kaupinimo bangai, n_s – terpės lūžio rodiklis Stokso bangai, $\Delta\omega_L$ – kaupinimo dažnių juostos plotis [37].

Ramano modai, kurios Stokso poslinkis $\Delta\nu = 768$ cm⁻¹, koherentinis ilgis yra $l_{coh} = 12.865$ cm. Kitai modai – $\Delta\nu = 901$ cm⁻¹, koherentinis ilgis $l_{coh} = 11.041$ cm. Tačiau į tai nėra įtraukti kaupinimo erdvėlaikinis nuskurdinimas dėl didelio energijos keitimo bei impulso saviveikos reiškiniai. Eksperimente naudojami KGW kristalai yra keliais kartais trumpesni, todėl manoma, kad kaupinimo ir Stokso bangų fazių skirtumas yra nykstamai mažas ir sklaidos stiprinimo prieaugio neriboja.

5 Matavimų metodikos

5.1 Impulso energijos matavimai

Impulso energija matuota su *Ophir StarBright* energijos matuokliu ir *Ophir PE9-ES-C* piroelektriniu jutikliu energijoms nuo 100 nJ iki 200 μJ. Didesnės energijos impulsams matuoti naudotas *Ophir PE50-C* energijos jutiklis, kurio matavimo sritis apima nuo 10 μJ iki 10 J. Šių impulso energijos jutiklių jautrumo spektrinė sritis siekia 150 nm – 3 μm, todėl yra tinkami matuoti kaupinimo bei Stokso impulso energijas.

5.2 Pluošto erdvinių skirstinių matavimai

Siekiant patikrinti pastiprinto Stokso erdvinių skirstinių kokybę, buvo naudojama *DataRay WinCamD-LCM* (matricos jautrumo sritis: 355 – 1150 nm) CMOS kamera.

5.3 Pastiprinto signalo spektrinės gaubtinės matavimai

Superkontinuumo ilgabangės srities spektrinės gaubtinės matavimai atlikti naudojant *OceanOptics NIRQuest 512-2.5* (900 – 2500 nm spektrinė sritis) spektrometrą, kurio skyra siekia 6.25 nm. Siekiant išvengti superkontinuumo komponentų pasiskirstymo erdvėje, matuojant buvo naudojamas matinis stiklas ir FELH 1050 spektrinis filtras, praleidžiantis bangos ilgus > 1050 nm. Spektrų integravimo laikas – 100 ms ir vidurkinamų spektrų skaičius – 5.

Siekiant išmatuoti tikslesnį TSRCPA pastiprinto Stokso spektrą, matavimai atlikti naudojant *Ando AQ-6315A* (350 – 1750 nm spektrinė sritis) spektro analizatorių, spinduliuotės įvedimui naudojant 25 μm šerdies skersmens daugiamodę skaidulą. Taip pat, siekiant išvengti netiesinių efektų skaiduloje, prieš skaidulą buvo pastatytas šviesą barstantis matinis stiklas. Matavimo metu buvo naudojama 0.2 nm skyra su 5 taškų vidurkinimu.

5.4 Impulsų charakterizavimas SHG-FROG – dažninės skyros optinės sklendės metodu

Siekiant pilnai aprašyti lazerinį impulsą reikia atlikti matavimus laikinėje ir dažninėje srityse. Tokį metodą 1993 m. pristatė D. J. Kane ir R. Trebino, kuris vadinamas dažninės skyros optinės sklendės (angl. *Frequency-Resolved Optical Gating*, FROG) metodu [38]. FROG matavimo principas paremtas matuojamo impulso koreliacija su pačiu savimi ir perklojant impulsus erdvėlaikyje registruojami pokyčiai, priklausomai nuo sąveikos tipo. Mūsų matavimas naudoja antrosios harmonikos generacijos dažninės skyros optinės sklendės metodą (SHG-FROG).

Impulsai perklojami 100 μm storio beta bario borato (angl. *beta barium borate*, β -BBO) kristale ir zonduojant impulsu registruojamas antros harmonikos spektras su *Avantes AvaSpec-ULS3648* spektrometru (432 – 980 nm spektrinė sritis), kurio skyra siekia 1.1 – 1.3 nm. Išmatavus pilną spektrogramą (kitaip vadinama FROG pėdsaku), apibendrintų projekcijų algoritmu atkuriamos impulso laikinės ir dažninės srities fazės.

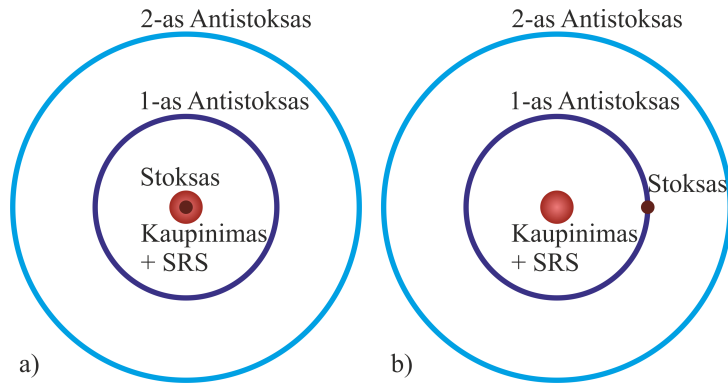
6 Nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos čirpuotų impulsų stiprinimas

Tiriant čirpuotų superkontinuumo impulsų stiprinimą nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprintuve kolinearios ir nekolinearios geometrijos atvejais, buvo atsižvelgta į kaupinimo energijos keitimo į Stokso impulsą efektyvumą, pluošto kokybę bei spektrinę gaubtinę, siekiant kuo trumpesnės impulso trukmės.

Kalio gadolinio volframoto kristale žadinant Ramano sklaidą stebimi du pagrindiniai dažnio poslinkiai yra 768 cm^{-1} ir 901 cm^{-1} . Plačiau apie KGW kristalinę terpę aprašyta 4.4 skyriuje. Siekiama stiprinti kuo didesnio bangos ilgio spinduliuotę, todėl šiame moksliniame tyrime pagrindinis dėmesys skiriamas 901 cm^{-1} dažnio poslinkio modai.

6.1 TSRCPA stiprinimo geometrijos

Šiame moksliniame tyrime buvo išskirti du galimi TSRCPA stiprinimo režimai: kolinearios ir nekolinearios geometrijos. Pirmu atveju, dichroiniais veidrodžiais užkrato ir kaupinimo spinduliuočių pluoštai sutapatunami erdvėje, užtikrinant persiklojimą visame KGW kristalo ilgyje išilgai N_p optinės ašies. Antru atveju spinduliuočių sąveika vyksta nekolineariai, sudarius 3 laipsnių kampą tarp pluoštų. Tokiu būdu nėra reikalingi specifiniai dichroiniai veidrodžiai, o išilgai kristalo optinės ašies sklinda tik užkrato spinduliuotė. Pasiekus tam tikrą slenkstinę kaupinimo impulso energiją žadinami aukštesnių eilių Stokso komponentai, kurie išlaiko užkrato bangos kryptingumą, tačiau Antistokso komponentai, dėl keturbangio dažnių maišymo fazinio sinchronizmo sąlygos sklinda kūgio paviršiumi, kaip pateikta 18 paveiksle.



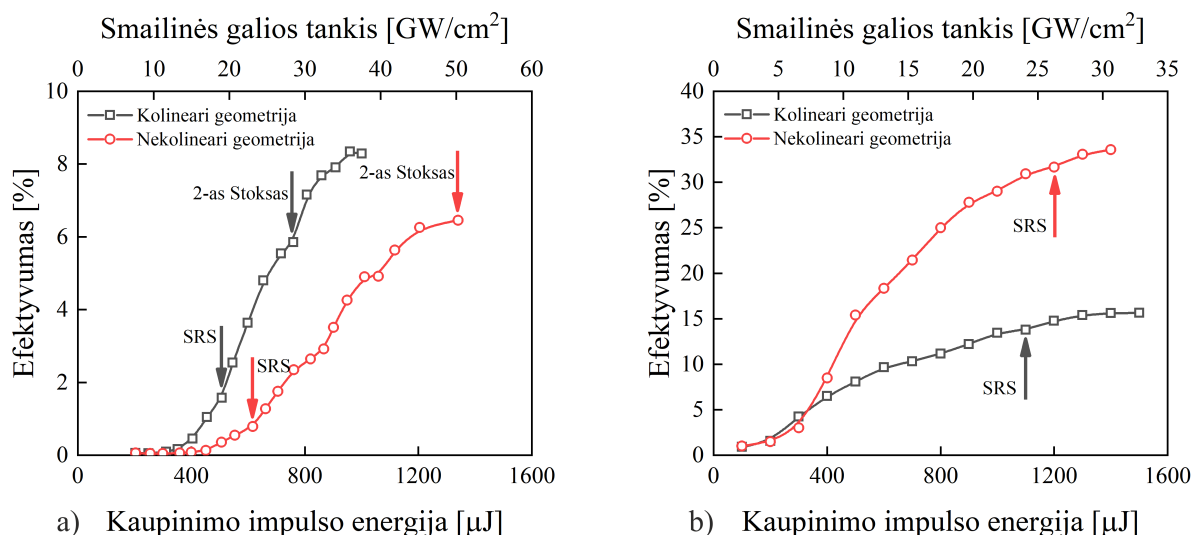
18 pav. Bendra TSRCPA stiprintuvo pluoštų struktūra: a – kolinearios geometrijos ir b – nekolinearios geometrijos sistemose

Kolinearios geometrijos atveju pastiprinta Stokso banga ir kaupinimas sklinda ta pačia kryptimi ir yra išskiriami pasitelkiant dichroinį veidrodį (18 paveikslo a dalis). Tačiau, didinant kaupinimo impulso energiją yra žadinama pašalinė priverstinė Ramano sklaida, kurios spektriniai komponentai sutampa su pastiprinto Stokso impulsu, todėl jų spektriškai atskirti negalima. Dėl šios priežasties užkratas ir kaupinimas buvo suvesti nedideliu kampu, taip

nesudėtingai erdvėje atskiriant pastiprintą Stokso impulsą nuo pašalinės priverstinės Ramano sklaidos, kaip pateikta 18 paveikslo b dalyje. Tačiau šis nekolinearumas sudaro sąlygas aukštesnių eilių Antistokso komponentams sklisti kūgio paviršiumi, kurio kampas prisitaiko prie užkrato nekolinearumo kampo dėl keturbangio dažnių maišymo fazinio sinchronizmo sąlygų (žiūrėti 4 paveikslą).

6.2 Kaupinimo impulso energijos keitimo į Stokso impulsą efektyvumo tyrimai

Keičiant užkrato ir kaupinimo pluoštų dydžius nustatytos optimalios superkontinuumo impulsų nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprinimo sąlygos kolinearčioje ir nekolinearioje geometrijose. Stiprinamų superkontinuumo impulsų energijos keitimo efektyvumo priklausomybės pateiktos 19 paveiksle.



19 pav. Pastiprinto Stokso impulso energijos keitimo efektyvumo priklausomybė nuo kaupinimo energijos: a – pirmą stiprinimo pakopą 30 mm ilgio KGW kristale ir b – antrą stiprinimo pakopą 15 mm ilgio KGW kristale

Pirmos TSRCPA stiprinimo pakopos 30 mm ilgio KGW kristale kolinearčiu ir nekolineariu atvejais energijos keitimo efektyvumai pateikti 19 paveikslo a dalyje. Matoma, kad Ramano sklaidos su užkrato spinduliuote kolinearčioje geometrijoje 0.1 % energijos keitimo efektyvumas pasiekiamas ties 12 GW/cm² smailinės galios tankiu. Nekolineariu atveju tai stebima nuo 15 GW/cm². Svarbu pabrėžti tai, kad priverstinės Ramano sklaidos be užkrato žadinių slenkstis ženkliai didesnis ir yra pasiekiamas ties 19 GW/cm² kolinearčioje ir 23 GW/cm² smailinės galios tankiu nekolinearioje geometrijoje. Tai parodė, kad pritaikius superkontinuumo impulsus kaip užkratą nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprinime, kolinearčios geometrijos stiprintuve 0.1 % energijos keitimo efektyvumas pasiekiamas pre 58 % mažesnio smailinės galios tankio, o nekolinearčios geometrijos atveju – 53 %.

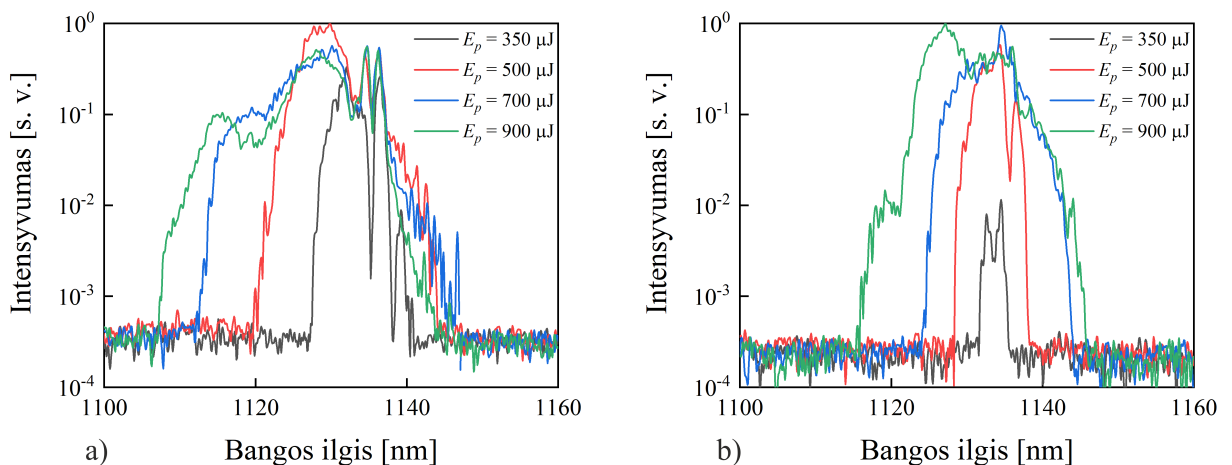
Kolinearioje stiprinimo geometrijoje pasiektas 5.8 % energijos keitimo efektyvumas iki antros eilės Stokso atsiradimo. Nekolinearumas 25 % padidino priverstinės Ramano sklaidos be užkrato žadinimo slenksčio smailinį galios tankį, bet leido pasiekti 6.4 % energijos keitimo efektyvumą iki antros eilės Stokso atsiradimo. Sklaidos slenksčio padidėjimą lėmė nežymus kaupinimo bangos elektrinio lauko vektoriaus nesutapimas su KGW kristalo N_m optine ašimi. Taigi, pirma stiprinimo pakopa įrodė, kad energijos keitimo efektyvumo sotis gali būti siejama su pirmos eilės Stokso energijos perdavimu aukštesnių eilių Stoksų ir Antistoksų komponentams.

Antroje TSRCPA stiprinimo pakopoje 15 mm ilgio KGW kristale kolinearioje geometrijoje pasiekiamas 15.6 % energijos keitimo efektyvumas, nekolinearioje – 33.5 %. Antroje stiprinimo pakopoje, dėl didesnės Stokso užkrato energijos, 0.1 % energijos keitimo efektyvumas pasiekiamas ties 4 GW/cm² kolinearios geometrijos atveju ir 5 GW/cm² nekolinearios. Tai yra 6 kartais mažesnis smailinės galios tankis, reikalingas priverstinės Ramano sklaidos žadinimui be užkrato spinduliuotės.

Taigi, TSRCPA stiprintuve, pritaikius superkontinuumo spinduliuotę kaip užkratą, 0.1 % energijos keitimo efektyvumas pasiekiamas kaupinant beveik 2 kartais mažesnio smailinės galios tankio spinduliuote ir pasiekiamas iki 34 % energijos keitimo efektyvumas. Kolineariame TSRCPA stiprintuve dėl didesnio sąveikos ilgio greičiau pasiekiamas pašalinės priverstinės Ramano sklaidos ir soties režimas. Tačiau, dvipakopiame nekolinearios geometrijos stiprintuve galima padidinti pašalinės priverstinės Ramano sklaidos slenkstis ir soties režimas.

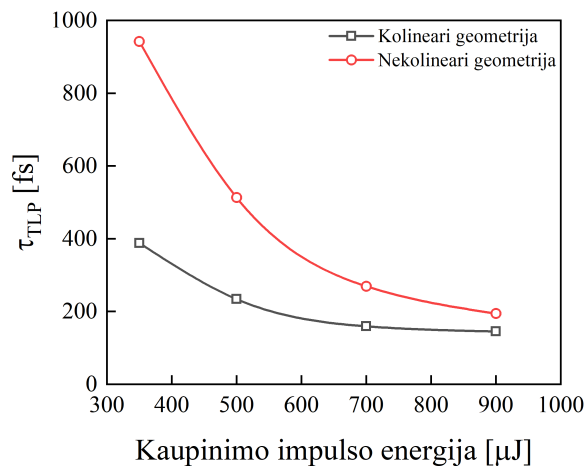
6.3 Pastiprinto Stokso impulso spektrinė gaubtinė

Pirmą TSRCPA stiprinimo pakopą kolineariai ir nekolineariai kaupinant 1.35 nm (FWHM lygyje) spektrinio pločio impulsais sužadinti 1135 nm centrinio bangos ilgio Stokso impulsai bei didinant kaupinimo impulso energiją stebėtas spektro gaubtinės platėjimas, kuris pateiktas 20 paveiksle.



20 pav. Pastiprinto Stokso impulso spektrinės gaubtinės priklausomybė nuo kaupinimo impulso energijos: a – kolinearioje geometrijoje ir b – nekolinearioje geometrijoje

Kolinearioje geometrijoje (20 paveikslo a dalis), dėl ilgesnio kaupinimo ir užkrato pluoštų persiklojimo, spektro gaubtinės plėtėjimas stebimas nuo 350 μJ kaupinimo impulso energijos. Be to, svarbu pabrėžti tai, kad abiem geometrijos atvejais spektro plėtėjimas didesnis į trumpabangę sritį (nuo 1107 nm 10^{-3} lygyje), lyginant su ilgabangę sritimi (iki 1146 nm 10^{-3} lygyje). Tai gali būti aiškinama Ramano sklaidos stiprinimui vykstant kaupinimo impulso galiniame fronte [17,27]. Vykstant fazės moduliavimosi procesui, impulso priekinis frontas patiria neigiamą dažnio poslinkį, o impulso galinis frontas – teigiamą. Dėl šios priežasties stiprinami Stokso impulsai atkartoja kaupinimo impulso galinio fronto dažninę ir fazinę struktūrą, todėl ryškiau stebimas spektro plėtėjimas trumpabangėje srityje.



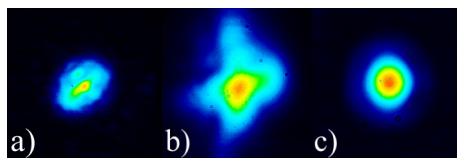
21 pav. Spektro pločio ribojamos impulso trukmės priklausomybė nuo kaupinimo impulso energijos

Išmatavus spektrus ir atlikus spektro pločio ribojamos impulso trukmės (angl. *transform-limited pulse*, TLP) skaičiavimus pastebėta, kad mažiausia galima spektro ribota impulso trukmė kolinearioje geometrijoje yra 145 fs, o nekolinearioje – 194 fs (21 paveikslas). Visgi, abiem atvejais didinant kaupinimo impulso energiją artėjama prie < 200 fs spektrinės juostos ribojamos impulso trukmės.

6.4 Erdvinės Stokso bangos savybės

Viena pagrindinių priežasčių naudoti superkontinuumo užkratą priverstinės Ramano sklaidos stiprinime, yra galimybė turėti aukštos kokybės Stokso impulso pluoštą. Kaip buvo aprašyta 4.2 skyriuje, YAG kristale žadintas ilgabangės srities superkontinuumas pasižymi aukštos kokybės erdviu skirstiniu, todėl yra tikimasi priverstinės Ramano sklaidos stiprinimo metu tai išsaugoti.

Pirmoje kolinearaus TSRCPA stiprintuvo pakopoje pastiprintas Stokso pluoštas išlaiko Gauso skirstinį, tačiau siekiant platesnės spektrinės gaubtinės didinama kaupinimo impulso energija, kas indukuoja stipresnį pluošto fokusavimosi reiškinį ir paveikia pastiprinto Stokso impulso pluoštą, kuris pateiktas 22 paveikslo a dalyje.



22 pav. Pirmoje TSRCPA stiprintuvo pakopoje pastiprinto Stokso impulso pluoštai: a – kolinearzioje geometrijoje, b – nekolinearzioje geometrijoje ir c – nekolinearzioje geometrijoje su erdviniu filtravimu

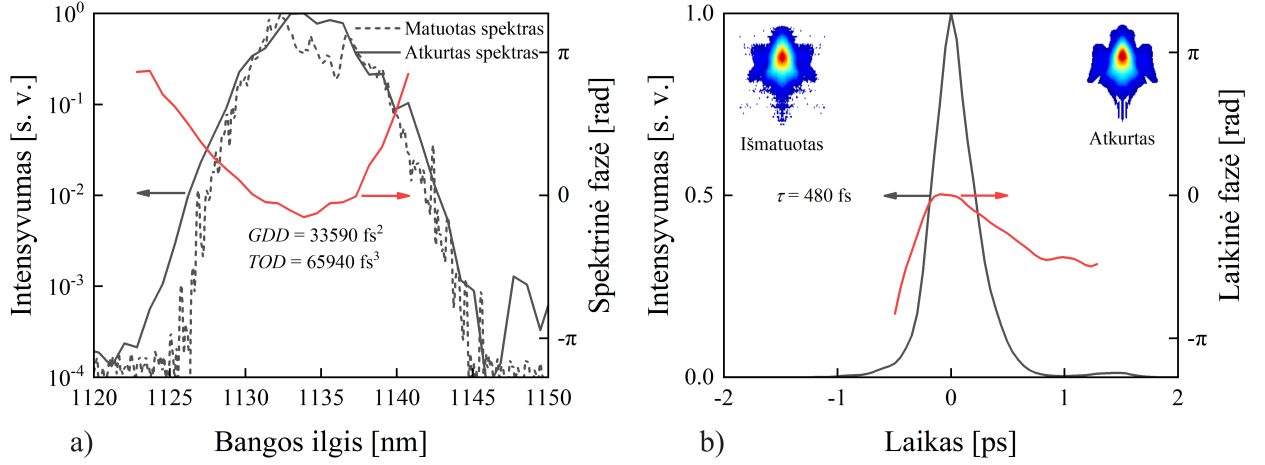
Nekolinearzioje stiprintuvo geometrijoje dėl kaupinimo ir užkrato sankirtos kampu stebimi pastiprinto pluošto iškraipymai, kurie pateikti 22 paveikslo b dalyje. Taip pat, pluošto struktūroje matomas keturbangio dažnių maišymo sukurtos žiedinės struktūros lankas. Tokios struktūros Stokso impulso pluoštas sėkmingai valomas erdviniu filtravimu ir atkuriamas tvaringas Gauso skirstinys, kuris pateiktas 22 paveikslo c dalyje. Erdvinio filtravimo schemeje prarandama iki 90 % impulso energijos, bet antroje stiprinimo pakopoje dėl geresnio pluoštų persiklojimo pasiekiamas didesnis stiprinimo efektyvumas.

6.5 Impulso laikinės ir dažninės fazės charakterizavimas FROG metodu

Kolinearaus TSRCPA pastiprintų Stokso impulsų charakterizavimui buvo panaudotas antrosios harmonikos dažninės skyros optinės sklendės – SHG-FROG metodas, kuris plačiau aprašytas 5.4 skyriuje.

Pirmoje pakopoje, kaupinant $E_p = 350 \mu\text{J}$ impulso energija, pastiprinto impulso trukmė $\tau_p = 860 \text{ fs}$ ir yra 1.4 karto mažesnė už kaupinimo trukmę. Pirmos pakopos Stokso spektrinio pločio ribojama impulso trukmė yra 420 fs. Pritaikius antrą TSRCPA pakopą, kurioje kaupinama $E_p = 1000 \mu\text{J}$ impulso energija, stebimas papildomas spektro platėjimas ir pasiekama 270 fs spektrinės juostos ribojama trukmė. Didinant pirmos ir antros stiprinimo pakopų kaupinimo impulso energijas stebimas ryškesnis spektro platėjimas, tačiau eksperimentiniai tyrimai parodė, kad impulsų spūda sudėtingėja ir iškraipoma fazinė moduliacija, todėl prizminio kompresoriaus pagalba nepasiekama spektro pločio ribojama impulsų trukmė. Tai galimai kyla iš to, kad pastiprinti Stokso impulsai sklinda kartu su priverstine Ramano sklaida, kuri žadinama dėl kaupinimo impulso didelio smailinės galios tankio.

Išmatavus antroje TSRCPA stiprinimo pakopoje pastiprintų Stokso impulsų spektrogramą ir atlikus FROG skaičiavimą apibendrintųjų projekcijų metodu gautas pilnas impulso aprašymas. Išmatuota (punktyrinė kreivė) ir FROG matavimo atkurta (juoda kreivė) spektrinės gaubtinės bei spektrinė fazė (raudona kreivė) pateiktos 23 paveikslo a dalyje. Impulso gaubtinė (juoda kreivė), laikinė fazė (raudona kreivė) ir išmatuota bei skaičiavimo atkurta spektrogramos pateiktos 23 paveikslo b dalyje. FROG matavimo paklaida – 0.0060672.

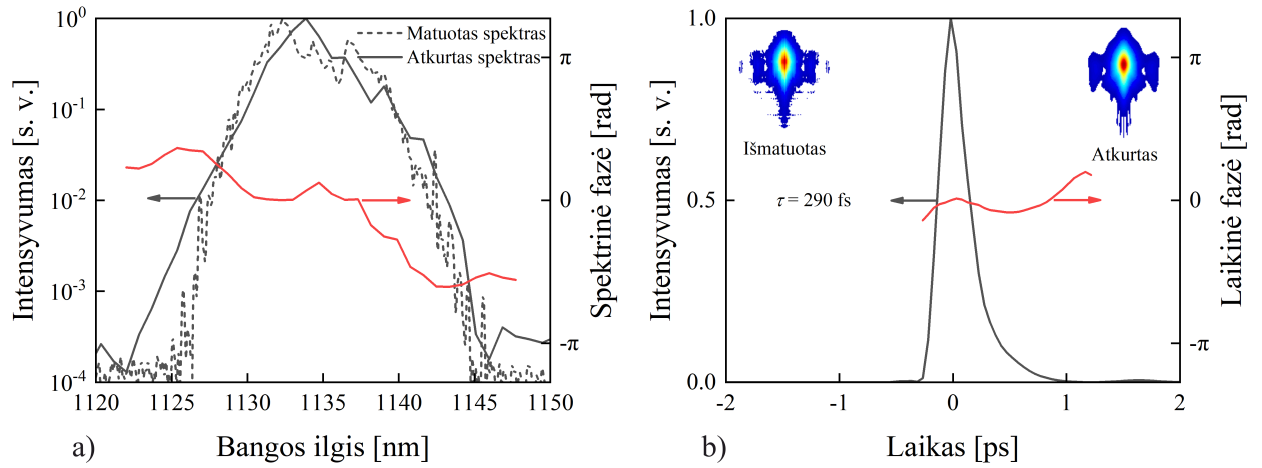


23 pav. Dvipakopiame koliniariame TSRCPA stiprintuve pastiprinto Stokso: a – išmatuotas spektras (punktyrinė kreivė), atkurtas spektras (juoda kreivė) ir spektrinė fazė (raudona kreivė) ir b – impulso gaubtinė (juoda kreivė), laikinė fazė (raudona kreivė) ir spektrogramos

Pastiprinto Stokso impulso trukmė yra $\tau_p = 480$ fs ir tai yra ~ 1.8 karto mažiau nei pirmos pakopos impulso trukmė. Bendrai dvipakopėje TSRCPA sistemoje nustatytas 2.5 kartų impulso trukmės mažėjimas. Pastiprintas Stokso impulsas išlaikė teigiamą fazės moduliaciją – $GDD = 33590$ fs². Nėra tiksliai aišku iš kur impulsas įgavo tokį čirpą, bet galima spėti, kad kaupinimo impulso antros eilės dispersija nėra idealiai kompensuota, nes 1.2 ps trukmės impulsai nėra jautrūs tokio grupinio vėlinimo dispersijos kiekiui. Kaip buvo parodyta moksliniuose darbuose [8], priverstinės Ramano sklaidos procese Stokso impulsas atkartoja kaupinimo impulso fazinę struktūrą, todėl galima teigti, kad pastiprintų impulsų fazinė moduliacija gali būti kompensuojama priešingo ženklų dispersijos kompresoriuje.

Pritaikius N-SF11 stiklo prizmių porą, kurių viršūnės kampas yra 59°, eksperimentiškai rasta optimali kompresoriaus konfigūracija, kai atstumas tarp prizmių viršūnių yra 2.3 m. Toks impulsų spaustuvas kompensuoja antros eilės dispersiją $GDD = -30689$ fs² ir trečios eilės dispersiją $TOD = -50712$ fs³. Suspausto Stokso impulso laikinė gaubtinė pateikta 24 paveikslo b dalyje. Šio FROG matavimo paklaida – 0.0072666.

Prizminis kompresorius leido dalinai kompensuoti Stokso impulso fazinę moduliaciją ir pasiekti $\tau_p = 290$ fs impulso trukmę, kuri yra daugiau nei 4 kartus mažesnė lyginant su 1.2 ps trukmės kaupinimo impulsu. Visgi, dėl aukštesnių eilių dispersijos, be papildomo aktyvaus fazės gaubtinės valdymo nebuvo pasiekta spektrinės juostos ribojama impulso trukmė $\tau_{TLP} = 270$ fs.



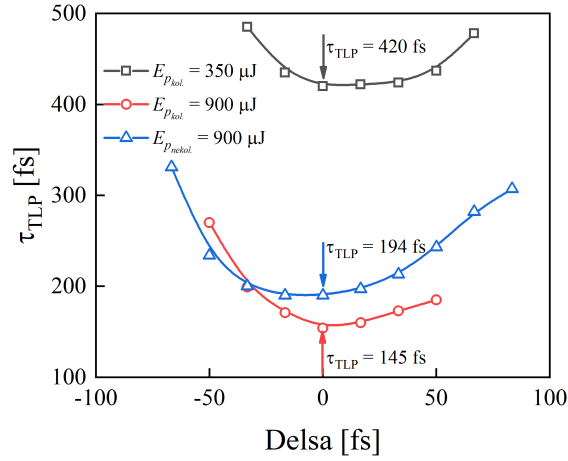
24 pav. Dvipakopiame koliniariame TSRCPA stiprintuve pastiprinto ir suspausto Stokso: a – išmatuotas spektras (punktyrinė kreivė), atkurtas spektras (juoda kreivė) ir spektrinė fazė (raudona kreivė) ir b – impulso gaubtinė (juoda kreivė), laikinė fazė (raudona kreivė) ir spektrogramos

Nekolinarus dvipakopio TSRCPA stiprintuvo spūdos tyrimai buvo atlikti anksčiau ir publikuoti moksliniame straipsnyje [39]. Autokoreliacijos matavimas ir kvadratinio hiperbolinio sekanto aproksimacija nustatė 145 fs impulso trukmę, kas yra 8 kartais mažiau nei kaupinimo impulso trukmė. Šiuo atveju, dėl nekolinarijos geometrijos ir mažesnio sąveikos ilgio, optimalus kaupinimo impulso energijos režimas slenkasi į didesnio smailinės galios tankio sritį, kas leido pasiekti didesnę spektro gaubtinės plitimą.

7 TSRCPA stiprintuvo veikos optimizacija

Remiantis rezultatais, pateiktais ankstesniame skyriuje, galima formuluoti pagrindinį koliniaraus ir nekolinaraus TSRCPA stiprintuvų skirtumą – nekolinarijos kampas leido padidinti smailinės galios tankį, taip laimint didesnę Stokso impulso energiją bei platesnę spektrinę juostą. Nekolinariame TSRCPA stiprintuve nepavyko išlaikyti aukštos kokybės superkontinuumo pluošto, visgi atlikus erdvinį filtravimą atkurtas Gauso skirstinio pluoštas, prarandant dalį impulso energijos.

Siekiant detaliau suprasti ir optimizuoti TSRCPA stiprintuvą buvo atliktas spektrinės juostos ribojamos impulso trukmės priklausomybės nuo kaupinimo ir užkrato laikinės delsos tyrimas. Charakterizavimui buvo pasirinkta koliniarijos geometrijos pirmos pakopos stiprintuvo veika optimalios spūdos režime ($E_p = 350 \mu\text{J}$) ir soties režime ($E_p = 900 \mu\text{J}$) bei nekolinarijos geometrijos pirmos pakopos stiprintuvo veika kaupinant $E_p = 900 \mu\text{J}$ energijos impulsais (25 paveikslas).

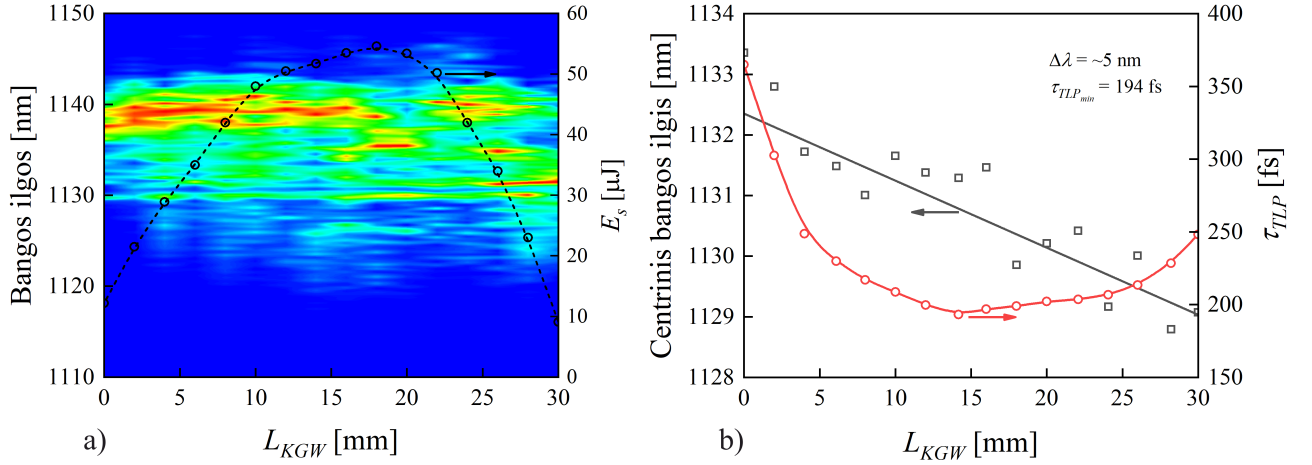


25 pav. Spektro pločio ribojamos impulso trukmės priklausomybė nuo kaupinimo ir užkrato impulsų laikinės delsos, centrinė delsos vertė nustatyta pagal didžiausią stiprinimo efektyvumą

TSRCPA stiprintuvo geometrija neturi įtakos plačiausios spektrinės gaubtinės žadinimo sąlygoms ir visais atvejais plačiausias spektras generuojamas didžiausio stiprinimo metu. Eksperimentiškai nepavyko nustatyti tikslios kaupinimo impulso vietos, kurioje vyksta Ramano sklaidos stiprinimas, tačiau remiantis literatūra galima manyti, kad impulsų sąveika vyksta kaupinimo impulso galiniame fronte.

Nekolinearios geometrijos TSRCPA stiprintuvas leidžia išvengti pašalinės priverstinės Ramano sklaidos bei leidžia keisti užkrato ir kaupinimo pluoštų perklojimo ilgį KGW kristale. Nekolinearioje geometrijoje kaupinimo ir užkrato pluoštų sankirtos kampo įtaka TSRCPA stiprintuvo veikai buvo tiriama keičiant nekolinearumo kampą nuo 0.5 iki 5 laipsnių. Pastebėta, kad didinant kampą nežymiai didėja soties režimo smailinės galios tankis. Tai kyla dėl trumpesnės pluoštų sankirtos ir didesnio kaupinimo bangos poliarizacijos vektoriaus nesutapimo su KGW kristalo optine ašimi. Visgi, keičiant sankirtos kampą spektrinių Stokso impulso pokyčių nepastebėta.

Atsižvelgiant į literatūroje pateiktus eksperimentinius ir teorinius darbus, teigiame, kad Stokso impulso spektrinės juostos plėtėjimas kyla dėl kaupinimo impulso fazės moduliavimo si reiškinio. Pritaikius nekolinearios geometrijos TSRCPA stiprintuvą galima eksperimentiniu būdu keisti kaupinimo ir užkrato sankirtos vietą KGW kristalo tūryje. Atlikus spektrinės gaubtinės ir Stokso impulso energijos priklausomybių nuo sankirtos vietos kristale tyrimą pastebėta, kad kristalo gale pastiprinto Stokso spektras nežymiai slenkasi į trumpabangę sritį (kristalo priekyje – $\lambda_c = 1133.3$ nm, kristalo gale – $\lambda_c = 1128.4$ nm). Kaupinimo impulsui sklindant KGW kristale, fazės moduliavimosi reiškinys nuosekliai ir simetriškai plečia spektrinę juostą. Kaip buvo minėta anksčiau, Ramano sklaidos stiprinimas vyksta kaupinimo impulso galiniame fronte, todėl labiau stiprinama trumpabangė sritis ir kaupinimo impulso spektrui slenkantis į trumpabangę sritį tą patį atkartoja ir Stokso impulso spektrinė juosta. Be to, didžiausia impulso energija pasiekama, kai pluoštų persiklojimas vyksta kristalo centre, kaip pateikta 26 paveikslo a dalyje.



26 pav. Nelinearaus TSRCPA stiprintuvo optimizacija: a – spektrinės gaubtinės ir impulso energijos, b – centrinio bangos ilgio ir spektrinės juostos ribojamos impulso trukmės priklausomybės nuo pluoštų sankirtos vietos kristalo tūryje

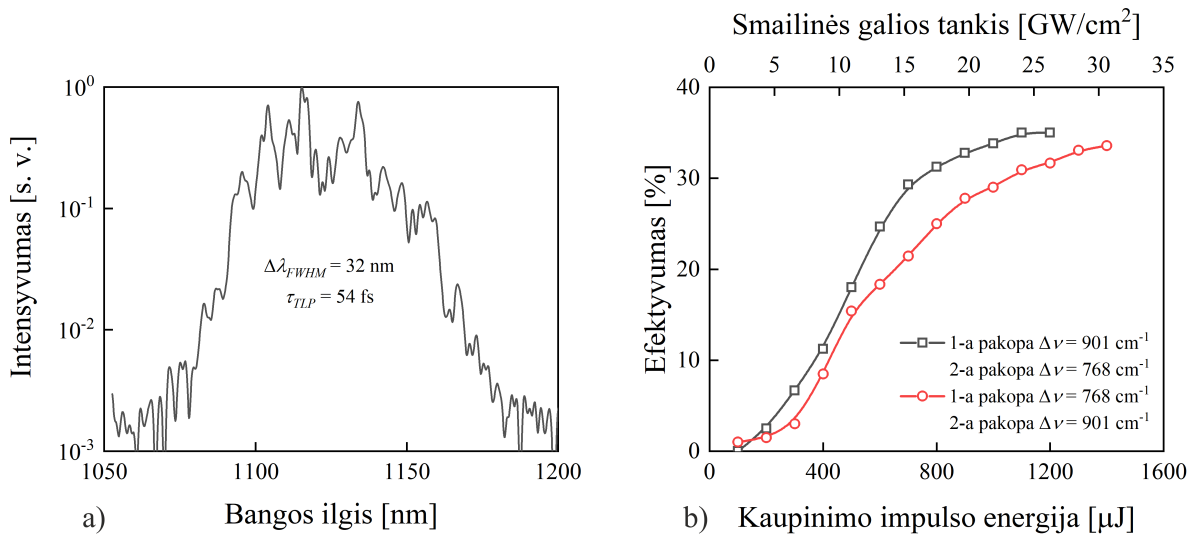
Spektrinės juostos ribojama impulso trukmė didėja tolstant nuo kristalo centrinės dalies, kaip pateikta 26 paveikslo b dalyje. Kristalo pradžioje kaupinimo impulso spektras dar nebūna praplitęs, todėl pastiprintas Stokso impulsas atkartoja spektrinę struktūrą ir jo ribojama impulso trukmė yra daugiau nei 350 fs. Stiprinimui vykstant kristalo viduryje kaupinimo ir užkrato pluoštų persiklojimas nėra ribojamas kristalo matmenų, todėl pasiekiamas didelis stiprinimas ir spektro platėjimas, kuri sąlygoja ne tik kaupinimo, bet ir pačio Stokso impulso fazės moduliavimosi reiškiny. Mažiausia spektrinės juostos ribojama trukmė yra 194 fs. Geometriškai įvertintas pluoštų persiklojimo ilgis KGW kristale, atsižvelgiant į 3 laipsnių sukirtimo kampą ir kaupinimo bangos refrakciją, yra 10 mm. Kristalo gale, nors kaupinimo spektras yra maksimaliai praplitęs, pluoštų perklojimas yra ribojamas galinio kristalo paviršiaus, todėl prarandamas stiprinimo efektyvumas ir Stokso impulso fazės moduliavimasis yra silpnėjęs, todėl tai leido pasiekti 250 fs spektro ribojamą impulso trukmę.

8 Koherentinio Stokso impulso spektrinės gaubtinės sintezė dvipakopiame TSRCPA stiprintuve

Kaip buvo minėta 4.4 skyriuje, KGW kristale žadinamos dvi stipriausios Ramano modos: $\Delta\nu = 768 \text{ cm}^{-1}$ ir $\Delta\nu = 901 \text{ cm}^{-1}$. Dėl nedidelio dažnio poslinkių skirtumo, šios dvi modos gali būti jungiamos į vieną spektrinę juostą. Ankstesniame darbe buvo bandyta kaupinimo ir užkrato elektrinio lauko vektorius nukreipti kampu į N_g ir N_m ašis, taip žadinant dvi skirtingas Ramano modos viename kristale [39]. Tačiau tyrimas parodė, kad tokiu būdu suformuota spektrinė gaubtinė pasižymi skirtingomis trumpabangės ir ilgabangės sričių poliarizacijomis. Visgi, pritaikius dvi stiprinimo pakopas, kai antroje pakopoje žadinama kita Ramano moda, kurios poliarizacija sutampa su pirmos pakopos moda, galima sėkmingai vykdyti spektrinės

gaubtinės sintezę.

Siekiant Ramano modų spektrinio persiklojimo, buvo pritaikytas dvipakopis nekolinearus TSRCPA stiprintuvas, kur stiprinimo pakopose žadinamos skirtingos KGW kristalo aktyvios Ramano modos. Spektrinei sintezei galimos dvi konfigūracijos, kai pirmoje pakopoje žadinama $\Delta\nu = 768 \text{ cm}^{-1}$ dažnio poslinkio moda, antroje $\Delta\nu = 901 \text{ cm}^{-1}$, arba atvirkščiai. Kaip pateikta 17 paveikslo b dalyje, poliarizacijos vektoriui sutampant su N_g optine ašimi žadinama ne tik 768 cm^{-1} dažnio poslinkio moda, o dar ir 901 cm^{-1} . Dėl šios priežasties, pirmoje stiprinimo pakopoje kristalo N_g optinę ašį sutapatinus su užkrato ir kaupinimo poliarizacijos vektoriais vyksta abiejų spektrinių komponentių žadinimas, todėl antroje pakopoje, kristalo optines ašis sukryžminus su pirmos pakopos, vyksta stiprus 901 cm^{-1} modos stiprinimas ir nepavyksta gauti lygios spektrinės gaubtinės. Visgi, pritaikius atvirkščią sintezės konfigūraciją įmanoma suformuoti plačios ir glotnios gaubtinės spektrą, kaip pateikta 27 paveikslo a dalyje. Neatsižvelgiant į spektrinę gaubtinę, abi konfigūracijos leido pasiekti daugiau nei 30 % energijos keitimo efektyvumą antroje stiprinimo pakopoje (27 paveikslo b dalis). Taip pat, nekolinearumo kampas leido padidinti soties režimo smailinės galios tankį taip pasiekiant platesnę Stokso impulso spektrinę gaubtinę dėl kaupinimo impulso fazės moduliavimosi reiškinio. Tik tokiu būdu buvo galima perkloti dviejų dažnio poslinkių spektrines komponentes ir gauti plačios gaubtinės spektrą.

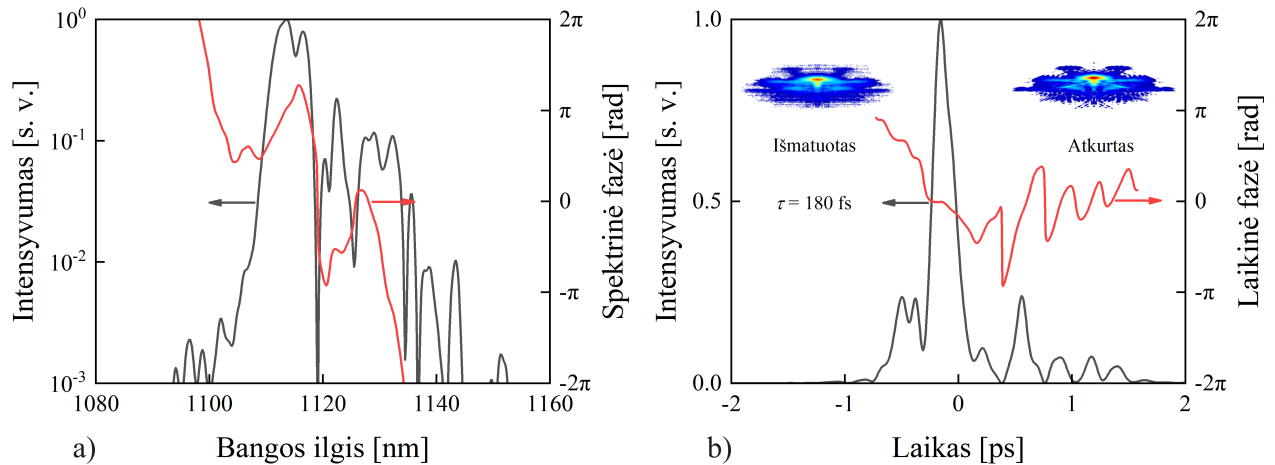


27 pav. Koherentinio Stokso impulso spektrinės gaubtinės sintezė dvipakopiame TSRCPA stiprintuve: a – suformuota spektro gaubtinė ir b – antros stiprinimo pakopos energijos keitimo efektyvumai

Dvipakopiame TSRCPA stiprintuve, kur pirmoje pakopoje stiprinama 901 cm^{-1} ir antroje – 768 cm^{-1} dažnio poslinkio modos pasiektas 35 % energijos keitimo efektyvumas. Spektrinė juosta išplito iki 35 nm (FWHM lygyje) ir tokio spektrinio pločio ribota impulso trukmė siekia 54 fs.

Eksperimentiškai tirta dviejų Ramano modų koherentinio Stokso impulso spūda yra komplikuota ir jautri stiprinimo sąlygoms. Prizminiu kompresoriumi dalinai suspausto impulso FROG

matavimas parodė, kad skirtingos KGW kristalo modos turi nežymiai skirtingą čirpą. Manoma, kad tai kyla iš Stokso impulso fazės moduliavimo efekto, nes pirmoje stiprinimo pakopoje žadinamos komponentės sklinda abiejų pakopų kristalais, todėl patiria didesnę fazės moduliavimo įtaką. Dėl šios priežasties pasyviu kompresijos būdu to pilnai neįmanoma kompensuoti. Visgi, koherentinis Stokso impulsas yra spūdis ir prizmių poros kompresoriumi buvo pasiekta 180 fs impulso trukmė (28 paveikslas b dalis). Šį rezultatą leido pasiekti spektrinių komponentių filtravimas prizminiame kompresoriuje prarandant dalį spektrinės juostos. Šio FROG matavimo paklaida – 0.0074869.



28 pav. Dvipakopiame TSRCPA stiprintuve pastiprinto ir suspausto koherentinio Stokso impulso: a – atkurtas spektras (juoda kreivė) ir spektrinė fazė (raudona kreivė) ir b – impulso gaubtinė (juoda kreivė), laikinė fazė (raudona kreivė) ir spektrogramos

Taigi, dviejų skirtingų KGW kristalo Ramano modų žadinimas dvipakopiame TSRCPA stiprintuve leido generuoti 32 nm pločio (FWHM lygyje) spektrinę juostą, kurios ribojama impulso trukmė yra 54 fs. Tačiau, impulso spūdos tyrimas atskleidė, kad kompresijai iki spektriškai ribojamos impulso trukmės reikalingas aktyvus fazės gaubtinės valdymas. Pritaikius prizmių poros kompresorių ir spektrinės juostos filtravimą Stokso impulsas buvo suspaustas iki 180 fs.

9 Kero efekto indukuotų netiesinių procesų skaitmeninis įvertinimas

9.1 Pluošto fokusavimasis

Skaitmeninio modeliavimo pagalba buvo įvertintas netiesinio Kero efekto indukuotas kaupinimo pluošto fokusavimasis. MATLAB programine kalba, remiantis T. M. Kardaš funkcijų paketu [40], parašyta lazerinio pluošto fokusavimosi programa paremta vienkrypte impulso sklidimo lygtimi:

$$\partial_z E = ik_z E + \frac{\tilde{\omega}}{2\epsilon_0 c^2 k_z} (i\tilde{\omega} P - j), \quad (10)$$

kur P – poliarizuotumas, j – laisvųjų krūvininkų srovė. Teigiama, kad atgaline kryptimi išsklaidyta šviesa yra nykstamai maža, lyginant su pagrindiniu impulsu. Impulso sklidimo lygtis modifikuota lėtai kintančios nuo laiko ir koordinatinių amplitudės lygtimi:

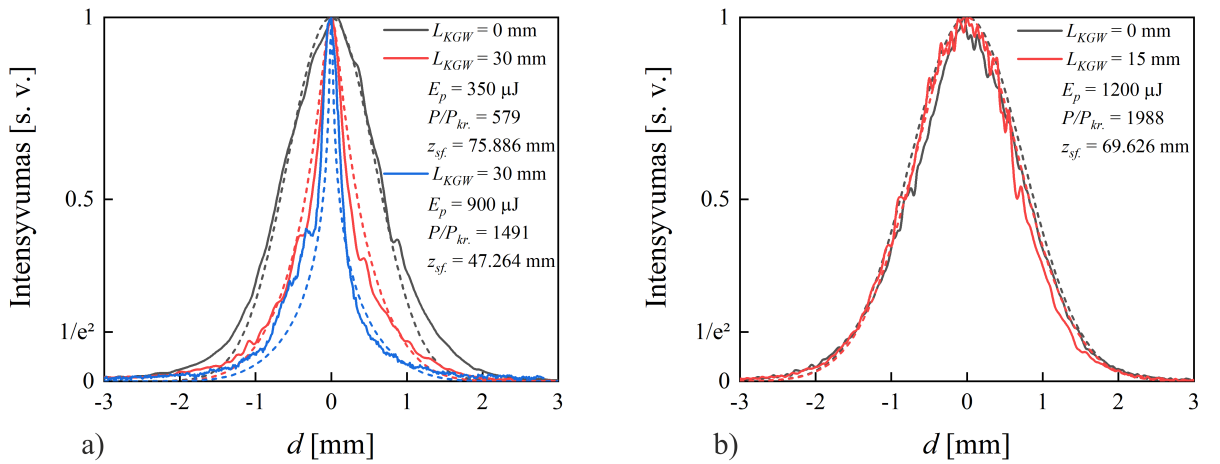
$$\tilde{E}(t, x, y, z) = \sum_j \tilde{A}_i(t, x, y, z) e^{i(\omega_j t - k_z^j z)}. \quad (11)$$

Dėl šios modifikacijos 10 lygtis skyla į N kieki lygčių, kur N yra sąveikaujančių bangų skaičius, poliarizuotumas P ir srovė j skyla į N skaičių funkcijų, osciliuojančių dažniu ω_j . Dispersija, difrakcija ir erdvinis Pointingo vektoriaus nunešimas aprašyti bangos lygties z komponente. Terpės lūžio rodiklis skaičiuojamas Sellmeier lygtimi.

Siekiant skaičiavimo paprastumo apibrėžiama sferinė simetrija ir įvedamas Gauso skirstinio pluoštas. Pradinis Gausinis impulsas aprašomas trukme (FWHM lygyje) ir remiantis 1 formule įvertinama kritinė fokusavimosi galia. Skaičiavimams naudojamas ketvirtos eilės Rungės ir Kuto metodas, kuris naudojamos funkcijos reikšmes skaičiuoja keliuose taškuose. Šie taškai parenkami taip, kad gautojo artinio tikslumas būtų kuo didesnis. Pagrindinis Rungės ir Kuto metodo trūkumas – viename žingsnyje naudojamos funkcijos vertės skaičiuojamos skirtinguose taškuose, tačiau kitame žingsnyje funkcijos reikšmės nebenaudojamos. Be to, taikant aukštesnės eilės Rungės ir Kuto metodą laimima tikslumo, tačiau diskretizavimo schema sudėtingėja, kas ilgina skaičiavimo laiką. Šio skaitmeninio modeliavimo aproksimavimo paklaida nustatyta 10^{-6} , kurios pilnai užteko kokybiškam modeliavimui, sutaupant laiko. Skaitmeninis modeliavimas žingsniniu būtu skaičiuoja erdvinio profilio bei smailinės galios tankio kitimą.

Pirmoje superkontinuumo impulsų TSRCPA stiprinimo pakopoje optimalus kaupinimo pluošto skersmuo yra 2.3 mm ($1/e^2$ lygyje), impulso energija keičiama nuo 350 iki 900 μJ . Tokių impulsų smailinė galia 579 – 1491 kartais viršija kritinę fokusavimosi galią (1 formulė). Antra čirpuotų impulsų nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprintuvo pakopa kaupinama 3.0 mm skersmens ir 1200 μJ energijos impulsais. Tokiu atveju smailinė galia 1988 kartais didesnė už kritinę galią, reikalingą pluošto fokusavimosi reiškiniai atsverti difrakciją.

Optimaliomis Ramano sklaidos stiprinimo sąlygomis įvertinti kaupinimo pluošto skirstinių kitimai prasklidus 30 mm ir 15 mm ilgio KGW kristalus. Pirmos TSRCPA stiprinimo pakopos $d_p = 2.3$ mm ($1/e^2$ lygyje) skersmens Gauso skirstinio (juodos kreivės) ir dėl pluošto fokusavimosi pakitę erdviniai skirstiniai (raudonos kreivės, kai $E_p = 350$ μ J ir mėlynos kreivės, kai $E_p = 900$ μ J) pateikti 29 paveikslo a dalyje. Punktyrinės kreivės žymi skaitmeninio modeliavimo rezultatus, ištisinės kreivės eksperimentiškai išmatuotus pluošto skirstinius. Pirmoje stiprinimo pakopoje, kaupinimo impulsui prasklidus 30 mm ilgio KGW kristalinę terpę stebimas ryškus erdvinio skirstinio kitimas ir siaurėjimas. Antroje TSRCPA pakopoje kaupinimo fokusavimasis 15 mm ilgio KGW kristale silpnesnis ir skaitmeninio modeliavimo bei eksperimentinio matavimo rezultatai pateikti 29 paveikslo b dalyje.



29 pav. Kaupinimo erdvinio skirstinio kitimas: a – pirmoje pakopoje 30 mm ilgio KGW kristale ir b – antroje pakopoje 15 mm ilgio KGW kristale

Pirmos stiprinimo pakopos $E_p = 350$ μ J impulso energijos kaupinimo pluošto spindulys $1/e^2$ lygyje per visą KGW kristalo ilgį sumažėja apie 250 μ m. Jei laikytume, kad terpės ilgis begalinis, tokio pluošto netiesinis židinio nuotolis $z_{sf} = 76$ mm (2 formulė). Didesnės energijos impulso erdvinio skirstinio spindulys sumažėja 560 μ m ir jo netiesinis židinio nuotolis sumažėja iki $z_{sf} = 47$ mm. Antros pakopos kaupinimo pluoštas sklinda trumpesne terpe, todėl spindulys sumažėja tik apie 45 μ m. Fokusavimosi netiesinis židinio nuotolis yra $z_{sf} = 70$ mm.

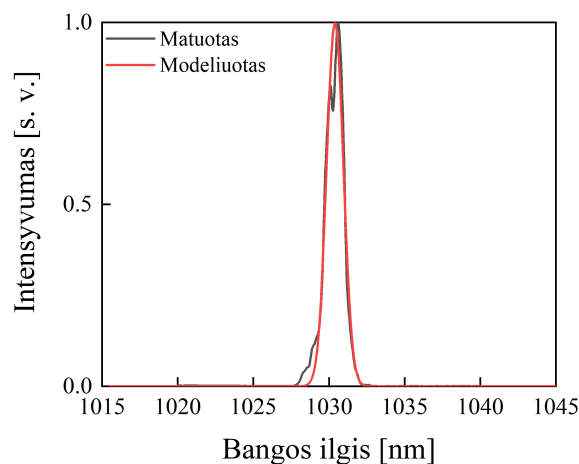
Skaitmeniškai įvertintas kaupinimo pluošto fokusavimasis parodė, kad tokio dydžio pluoštas fokusuojasi ir sumažėja 21.7 % ($1/e^2$ lygyje), kai impulso energija $E_p = 350$ μ J ir 48.6 %, kai energija padidinama iki $E_p = 900$ μ J. Antroje stiprinimo pakopoje, kaupinimo pluoštas už 15 mm ilgio KGW kristalo sumažėja 4.6 %. Svarbu pabrėžti tai, kad Kero efekto sukurtas pluošto fokusavimasis atkartoja Gauso skirstinį ir labiausiai fokusuoja centrinę pluošto dalį, todėl tokios spinduliuotės smailinės galios tankis auga sparčiau. Dėl šios priežasties pirmoje TSRCPA stiprinimo pakopoje pastiprino signalo pluošto iškraipymus sąlygoja kaupinimo pluošto fokusavimosi reiškinys. Antroje TSRCPA pakopoje 15 mm ilgio KGW kristale fokusavimosi reiškinys daug silpnesnis, nors smailinės galios ir kritinės fokusavimosi galios santykis 1.3 – 3.4

kartus didesnis nei pirmos pakopos atveju.

9.2 Impulso fazės moduliavimasis

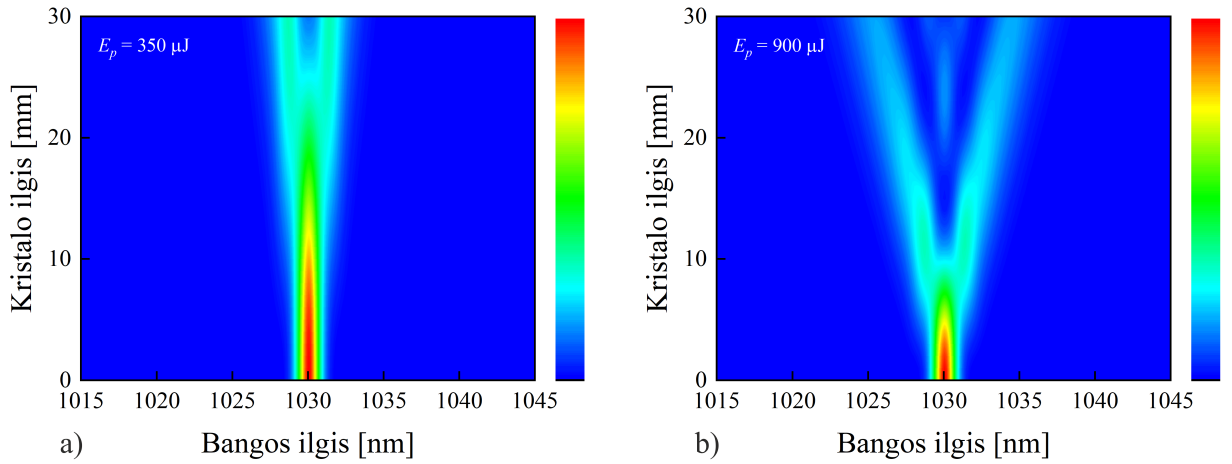
Siekiant įvertinti kaupinimo impulso fazės moduliavimosi efektą skirtingo ilgio KGW kristaluose, buvo atliktas skaitmeninis modeliavimas. Modeliavimas paremtas integruojančio faktoriaus ketvirtos eilės Rugės ir Kuto metodu, kuris automatiškai valdo žingsnio dydį. Laiko ir dažnio skaičiavimas reikalauja didesnio aproksimacijos tikslumo, todėl šio skaičiavimo paklaida nustatyta 10^{-8} . Skaičiavime apibrėžiama viendimensinė laiko sritis – 10 ps, sudaryta iš 2^8 taškų. Modeliavimas parodė, kad mažesnės laiko srities nepakanka pilnam spektro plitimui aprašyti. Pradinio impulso spektro gaubtinė apibrėžiama Gauso skirstiniu ir jos plotis lygus spektriškai riboto 1.2 ps trukmės Gausinio impulso spektro pločiui. Modeliavimo metu stebimas spektro gaubtinės kitimas bei impulso plitimas laike, įskaitant pluošto fokusavimosi reiškinį.

Išmatuoto (juoda kreivė) ir skaitmeniškai suformuoto (raudona kreivė) 1.2 ps trukmės kaupinimo impulso pradiniai spektrai pateikti 30 paveiksle.



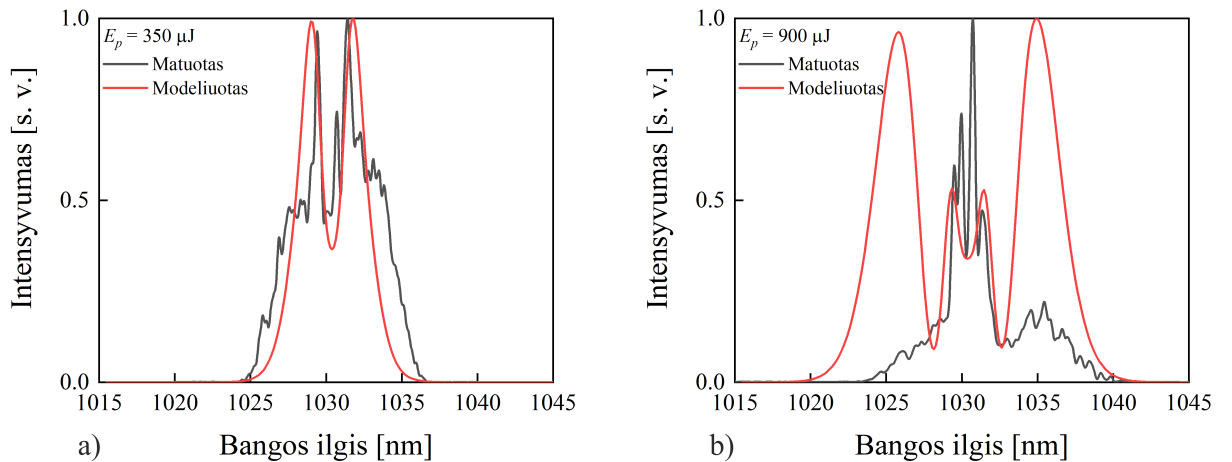
30 pav. Kaupinimo impulso spektras: juoda kreivė žymi eksperimentiškai išmatuotą kaupinimo spektrą, raudona kreivė žymi modeliavime apibrėžtą spektrą

Atlikus skaitmeninį fazės moduliavimosi įvertinimą pirmai TSRCPA stiprinimo pakopai nustatyta, kad kaupinimo impulso spektrinė gaubtinė plečiasi nuo slenkstinės Ramano sklaidos stiprinimo energijos. Impulso spektrinės gaubtinės dinamika 30 mm ilgio KGW kristale sklindant $350 \mu\text{J}$ energijos impulsui pateikta 31 paveikslo a dalyje. Tokia kaupinimo spektro dinamika atitinka kolinearaus TSRCPA stiprinimą optimaliomis spūdos sąlygomis. Nekolineariame TSRCPA stiprintuve optimali kaupinimo impulso energija yra $900 \mu\text{J}$ ir tokio impulso spektro plitimas pateiktas 31 paveikslo b dalyje.



31 pav. Kaupinimo impulso spektro plitimo dinamika 30 mm ilgio KGW kristale: a – impulso energija $E_p = 350 \mu\text{J}$, b – impulso energija $E_p = 900 \mu\text{J}$

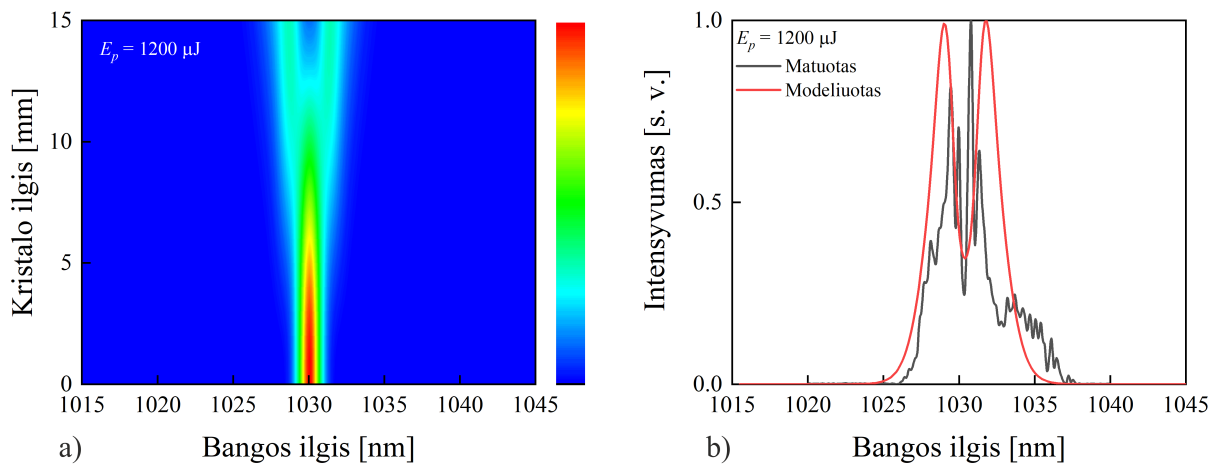
Skaitmeniškai modeliuoti ir eksperimentiškai išmatuoti kaupinimo impulso spektrai turi panašią plitimo tendenciją. Pirmoje TSRCPA pakopoje išmatuoto ir modeliuoto 350 μJ energijos kaupinimo impulso spektrai, prasklidus 30 mm ilgio KGW kristalą, pateikti 32 paveikslo a dalyje. Padidinus kaupinimo impulso energiją iki 900 μJ modeliuota spektrinė gaubtinė plinta daugiau ir yra artima išmatuotam spektrui (32 paveikslo b dalis).



32 pav. Išmatuoto ir skaitmeniškai modeliuoto kaupinimo impulso spektro plitimas 30 mm ilgio KGW kristale: a – impulso energija $E_p = 350 \mu\text{J}$, b – impulso energija $E_p = 900 \mu\text{J}$

Antroje TSRCPA stiprinimo pakopoje naudojamas nežymiai didesnis kaupinimo pluošto skersmuo $d_p = 3 \text{ mm}$, ir trumpesnis $L_{KGW} = 15 \text{ mm}$ ilgio KGW kristalas. Visgi, kristaliniame terpe sklindant $E_p = 1200 \mu\text{J}$ energijos impulsui spektrinės gaubtinės plitimas panašus į pirmoje pakopoje $E_p = 350 \mu\text{J}$ energijos impulso spektro plitimą 30 mm ilgio KGW kristale. Spektro plitimo dinamika pateikta 33 paveikslo a dalyje, o matuoto ir skaitmeniškai modeliuoto spektrų palyginimas b dalyje. Trumpesniame kristale kaupinimo impulso spektro plitimas yra nesimetriškas galimai dėl didesnio smailinės galios tankio (26.6 GW/cm^2), kurio užtenka

priverstinei Ramano sklaidai žadinti.



33 pav. Kaupinimo impulso spektro plitimas 15 mm ilgio KGW kristale, sklindant $E_p = 1200 \mu\text{J}$ energijos impulsui: a – modeliuota plitimo dinamika ir b – išmatuoto ir skaitmeniškai modeliuoto kaupinimo impulso spektro palyginimas

Lyginant modeliuotą spektro plitimą su eksperimentiškai išmatuotu spektru, matoma panaši plitimo tendencija. Pagrindinis šio skaitmeninio modeliavimo trūkumas – dėl skaičiavimo paprastumo pradinis spinduliuotės spektras aprašomas idealaus Gauso skirstiniu, o ne tikru išmatuotu spektru, kuris pasižymi specifinėmis smailėmis ir nukrypimais nuo Gauso skirstinio.

Fazės moduliavimosi teorinis skaičiavimas parodė, kad kaupinimo impulso spektras plėtėja prasklidęs KGW terpę. Tai gali būti vienas iš pagrindinių veiksnių, kuris praplečia stiprinamo signalo spektrinę gaubtinę TSRCPA stiprintuve.

10 Pagrindiniai rezultatai ir išvados

Atsižvelgiant ir apibendrinant mokslinio tyrimo rezultatus, suformuluoti pagrindiniai rezultatai ir išvados:

- superkontinuumo užkratas nenuostoviosios priverstinės Ramano sklaidos stiprintuve leido beveik 2 kartus sumažinti kaupinimo impulso smailinės galios tankį, reikalingą pasiekti 0.1 % energijos keitimo efektyvumą, o pritaikius dvi stiprinimo pakopas pasiektas 35 % efektyvumas, išlaikant aukštos kokybės Stokso impulso pluoštą;
- kaupinimo impulso fazės moduliavimasis yra pagrindinė spektrinės juostos plėtimo priežastis ir tai leido pasiekti mažiau 200 fs spektriškai ribotą impulso trukmę;
- dviejų pakopų TSRCPA stiprintuve pastiprintas Stokso impulsas pasižymi tiesine fazine moduliacija ir yra spūdis, kas leido žadinti ir suspausti 290 fs trukmės impulsus kolineariame ir 145 fs trukmės impulsus nekolineariame stiprintuve;
- kolinearios geometrijos stiprintuve spūdą iki spektrinės juostos ribojamos impulso trukmės komplikuoja pašalinė priverstinė Ramano sklaida, tačiau nekolineariame stiprintuve to išvengiama;
- naudojant dvi skirtingas KGW kristalo Ramano sklaidai aktyvias modas sėkmingai sužadintas 32 nm spektrinio pločio koherentinio Stokso impulsas bei pademonstruota tokio impulso spūda iki 180 fs trukmės, kurią riboja likusi netiesinė fazinė moduliacija;
- skaitmeninis modeliavimas patvirtino kaupinimo pluošto fokusavimosi ir impulso fazės moduliavimosi reiškinius, kas leido praplėsti stiprinamą spektrinę juostą, tačiau apribojo Ramano sklaidos energijos keitimo efektyvumą.

11 Rezultatų sklaida

Dalis šio tyrimo rezultatų buvo publikuoti moksliniame straipsnyje: P. Mackonis, A. Petrulėnas, A.M. Rodin, V. Girdauskas, and A. Michailovas, Two-stage transient stimulated Raman chirped-pulse amplification in KGd(WO₄)₂ with compression to 145 fs, *Opt. Lett.* **45**(24), 6627-6630 (2020).

Taip pat, pagrindiniai rezultatai pristatyti konferencijose:

1. A. Petrulėnas, V. Girdauskas, P. Mackonis, and A.M. Rodin, Broadband transient stimulated Raman amplification in KGW crystal, 63rd International Conference for Students of Physics and Natural Sciences "Open Readings", book of abstracts, p. 72 (2020).
2. P. Mackonis, A.M. Rodin, A. Petrulėnas, V. Girdauskas, and A. Michailovas, Transient Stimulated Raman Amplification of the Supercontinuum in KGW with Pulse Compression, OSA 14th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics paper C1B2. (2020).
3. A. Petrulėnas, P. Mackonis, A.M. Rodin, and V. Girdauskas, Efficient Two-stage Transient Stimulated Raman Chirped Pulse Amplification in KGW with Compression to <160 fs, OSA Laser Congress (ASSL, LAC) paper AW2A.3. (2020).
4. A. Petrulėnas, P. Mackonis, A.M. Rodin, and V. Girdauskas, IR-supercontinuum seeded efficient two-stage transient stimulated Raman amplification in KGW with pulse compression, Proc. SPIE 11670, Nonlinear Frequency Generation and Conversion: Materials and Devices XX, 1167017 (2021).
5. P. Mackonis, A. Petrulėnas, A.M. Rodin, and V. Girdauskas, VIS-to-NIR multiple output sub-TW class modular laser based on OPCPA and TSRCPA, Proc. SPIE 11664, Solid State Lasers XXX: Technology and Devices, 116640N (2021).
6. V. Girdauskas, P. Mackonis, A. Petrulėnas, and A.M. Rodin, Towards 50 fs SWIR pulses by transient stimulated Raman chirped-pulse amplification with spectrum synthesis, 64th International Conference for Students of Physics and Natural Sciences "Open Readings", book of abstracts, p. 99 (2021).

12 Literatūros sąrašas

- [1] B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M.S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakakis, S. Moustazis, R. Kodama et al. High harmonic generation in the relativistic limit. *Nat. Phys.*, **2**(7):456–459, (2006).
- [2] A.D. Koulouklidis, C. Gollner, V. Shumakova, V.Y. Fedorov, A. Pugžlys, A. Baltuška, and S. Tzortzakis. Observation of extremely efficient terahertz generation from mid-infrared two-color laser filaments. *Nat. Commun.*, **11**(1):1–8, (2020).
- [3] R.W. Boyd. *Nonlinear optics*. Academic press, (2020).
- [4] C.V. Raman, and K.S. Krishnan. A new type of secondary radiation. *Nature*, **121**(3048):501–502, (1928).
- [5] E.J. Woodbury, and W.K. Ng. Ruby laser operation in near IR. *Proceedings of the Institute of Radio Engineers*, **50**(11):2367, (1962).
- [6] R.Y. Chiao, and B.P. Stoicheff. Angular dependence of maser-stimulated Raman radiation in calcite. *Phys. Rev. Lett.*, **12**(11):290–293, (1964).
- [7] T.T. Basiev, P.G. Zverev, A.Y. Karasik, V.V. Osiko, D.S. and Chunaev. Picosecond stimulated Raman scattering in crystals. *J. Exp. Theor. Phys.*, **99**(5):934–941, (2004).
- [8] M.D. Duncan, R. Mahon, L.L. Tankersley, J. Reintjes. Transient stimulated Raman amplification in hydrogen. *JOSA B*, **5**(1):37–52, (1988).
- [9] E.E. Hagenlocker, R.W. Minck, W.G. and Rado. Effects of phonon lifetime on stimulated optical scattering in gases. *Phys. Rev.*, **154**(2):226–233, (1967).
- [10] R.L. Carman, M.E. Mack, F. Shimizu, and N. Bloembergen. Forward picosecond Stokes-pulse generation in transient stimulated Raman scattering. *Phys. Rev. Lett.*, **23**(23):1327–1329, (1969).
- [11] A. Dubietis. *Netiesinė optika*. Vilniaus Universitetas, Vilnius, (2011).
- [12] R.R. Alfano, and S.L. Shapiro. Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass. *Phys. Rev. Lett.*, **24**(11):584–587, (1970).
- [13] M. Maier. Applications of stimulated Raman scattering. *Appl. Phys.*, **11**(3):209–231, (1976).
- [14] V.G. Bespalov, D.I. Stasel’Ko, V.N. Krylov, A. Rebane, U. Vild, D. Erni, and O. Ollikainen. Structure of spectra of stimulated Raman scattering in high-pressure hydrogen. *Opt. Spectrosc.*, **82**(3):384–389, (1997).

- [15] Y. Uesugi, Y. Mizutani, S.G. Kruglik, A.G. Shvedko, V.A. Orlovich, and T. Kitagawa. Characterization of stimulated Raman scattering of hydrogen and methane gases as a light source for picosecond time-resolved Raman spectroscopy. *J. Raman Spectrosc.*, **31**(4):339–348, (2000).
- [16] A.G. Shvedko, S.G. Kruglik, P.A. Apanasevich, and V.A. Orlovich. Spectral characteristics of picosecond stimulated Raman scattering in high-pressure hydrogen. *Laser Phys.*, **11**(3):377–387, (2001).
- [17] G.I. Kachen, and W.H. Lowdermilk. Self-induced gain and loss modulation in coherent, transient Raman pulse propagation. *Phys. Rev. A*, **14**(4):1472–1474, (1976).
- [18] A. Agnesi, G.C. Reali, and V. Kubecek. Transient stimulated Raman scattering: theory and experiments of pulse shortening and phase conjugation properties. *Modeling and Simulation of Laser Systems II*, **1415**:104–109, (1991).
- [19] S.V. Kurbasov, and L.L. Losev. Raman compression of picosecond microjoule laser pulses in $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ crystal. *Opt. Commun.*, **168**(1-4):227–232, (1999).
- [20] D.S. Chunaev, and A.Y. Karasik. Temporal characteristics of picosecond stimulated Raman scattering in oxide crystals. *Laser Phys.*, **16**(12):1668–1671, (2006).
- [21] R.S. Adrain, E.G. Arthurs, and W. Sibbett. Tunable picosecond transient stimulated Raman scattering in ethanol. *Opt. Commun.*, **15**(2):290–292, (1975).
- [22] P.G. May, and W. Sibbett. Transient stimulated Raman scattering of femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. Lett.*, **43**(7):624–626, (1983).
- [23] J.K. Wang, Y. Siegal, C. Lü, E. Mazur, and J. Reintjes. Subpicosecond stimulated Raman scattering in high-pressure hydrogen. *JOSA B*, **11**(6):1031–1037, (1994).
- [24] C. Jordan, K.A. Stankov, G. Marowsky, and E.J. Canto-Said. Efficient compression of femtosecond pulses by stimulated Raman scattering. *Appl. Phys. B*, **59**(4):471–473, (1994).
- [25] I.G. Koprnikov, A. Suda, and K. Midorikawa. Interference between stimulated Raman scattering and self-phase modulation in pressurized methane in highly transient femtosecond pump regime. *Opt. Commun.*, **174**(1-4):299–304, (2000).
- [26] A. Gladyshev, Y. Yatsenko, A. Kolyadin, V. Kompanets, and I. Bufetov. Mid-infrared 10- μJ -level sub-picosecond pulse generation via stimulated Raman scattering in a gas-filled revolver fiber. *Opt. Mater. Express*, **10**(12):3081–3089, (2020).
- [27] A.I. Vodchits, A.G. Shvedko, V.A. Orlovich, V.P. Kozich, and W. Werncke. Stimulated Raman amplification of ultrashort seed pulses in compressed methane. *JOSA B*, **22**(2):453–458, (2005).

- [28] F.B. Grigsby, P. Dong, and M.C. Downer. Chirped-pulse Raman amplification for two-color, high-intensity laser experiments. *JOSA B*, **25**(3):346–350, (2008).
- [29] V.A. Orlovich, Y.I. Malakhov, Y.M. Popov, D.N. Busko, M.B. Danailov, A.A. Demidovich, P.A. Apanasevich, and R.V. Chulkov. Raman conversion of femtosecond laser pulses in crystals. *Laser Phys. Lett.*, **9**(11):770, (2012).
- [30] V. Krylov, A. Rebane, D. Erni, O. Ollikainen, U. Wild, V. Bespalov, D. Staselko. Stimulated Raman amplification of femtosecond pulses in hydrogen gas. *Opt. Lett.*, **21**(24):2005–2007, (1996).
- [31] O.V. Buganov, A.S. Grabtchikov, Y.I. Malakhov, Y.M. Popov, V.A. Orlovich, and S.A. Tikhomirov. Features of Raman amplification in KGW and barium nitrate crystals at excitation by femtosecond pulses. *Laser Phys. Lett.*, **9**(11):786, (2012).
- [32] P. Mackonis, and A.M. Rodin. Laser with 1.2 ps, 20 mJ pulses at 100 Hz based on CPA with a low doping level Yb: YAG rods for seeding and pumping of OPCPA. *Opt. Exp.*, **28**(2):1261–1268, (2020).
- [33] R.L. Aggarwal, D.J. Ripin, J.R. Ochoa, and T.Y. Fan. Measurement of thermo-optic properties of $Y_3Al_5O_{12}$, $Lu_3Al_5O_{12}$, $YAlO_3$, $LiYF_4$, $LiLuF_4$, BaY_2F_8 , $KGd(WO_4)_2$, and $KY(WO_4)_2$ laser crystals in the 80–300 K temperature range. *Jour. Appl. Phys.*, **98**(10):103514, (2005).
- [34] I.V. Mochalov. Laser and nonlinear properties of the potassium gadolinium tungstate laser crystal $KGd(WO_4)_2: Nd^{3+}$ – (KGW: Nd). *Opt. En.*, **36**:1660–1669, (1997).
- [35] A.A. Kaminskii, H.J. Eichler, K. Ueda, N.V. Klassen, B.S. Redkin, L.E. Li, J. Findeisen, D. Jaque, J. Garcia-Sole, J. Fernández, and others. Properties of Nd^{3+} – doped and undoped tetragonal $PbWO_4$, $NaY(WO_4)_2$, $CaWO_4$, and undoped monoclinic $ZnWO_4$ and $CdWO_4$ as laser-active and stimulated Raman scattering-active crystals. *Appl. Opt.*, **38**(21):4533–4547, (1999).
- [36] A.I. Vodchits, V.P. Kozich, V.A. Orlovich, and P.A. Apanasevich. Z-Scan studies of KYW, KYbW, KGW, and $Ba(NO_3)_2$ crystals. *Opt. Commun.*, **263**(2):304–308, (2006).
- [37] W. Trutna, Y. Park, and R. Byer. The dependence of Raman gain on pump laser bandwidth. *IEEE J. Quant. Elect.*, **15**(7):648–655, (1979).
- [38] D.J. Kane, and R. Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **29**(2):571–579, (1993).

- [39] P. Mackonis, A. Petrulėnas, A.M. Rodin, V. Girdauskas, and A. Michailovas. Two-stage transient stimulated Raman chirped-pulse amplification in $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ with compression to 145 fs. *Opt. Lett.*, **45**(24):6627–6630, (2020).
- [40] T.M. Kardaś, M. Nejbauer, P. Wnuk, B. Resan, C. Radzewicz, and P. Wasylczyk. Full 3D modelling of pulse propagation enables efficient nonlinear frequency conversion with low energy laser pulses in a single-element tripler. *Sci. Rep.*, **7**:42889, (2017).

Santrauka

NIR superkontinuumo impulsų stiprinimas ir kompresija, taikant nenuostoviąją priverstinę Ramano sklaidą

Vytenis Girdauskas

Lazerinių sistemų spektrinio diapazono išplėtimas yra viena svarbiausių šių laikų mokslinių problemų. Lazeriniai šaltiniai artimosios infraraudonosios (NIR) bangos ilgių srityje ($0.75 - 1.4 \mu\text{m}$) yra puikiai išvystyti ir pasižymi didele impulso energija, aukštu pasikartojimo dažniu ir maža impulso trukme. Tačiau, spinduliuotės bangos ilgio keitimas į trumpabangę infraraudonąją (SWIR) sritį ($1.4 - 3.0 \mu\text{m}$) vis dar yra sudėtingas, neefektyvus ir reikalaujantis daug išteklių. Tokio bangos ilgio spinduliuotė pritaikoma spektroskopijoje, medicinoje, medžiagotyroje, atstumų ir cheminių elementų detekcijai. Stipriųjų laukų fizikoje, didelės smailinės galios SWIR bangos ilgių srities lazeriniai impulsai leidžia žadinti aukštesniąsias harmonikas ir pasiekti atosekundžių eilės impulso trukmę. Šiuo atveju, fundamentinei spinduliuotei naudojant SWIR bangos ilgio diapazono spinduliuotę pasiekama didesnė atkirtimo srities fotono energija. Taip pat, naujausi tyrimai atskleidė, kad ilginant žadinančios bangos ilgį pasiekiamas eile didesnis THz spinduliuotės žadinimo efektyvumas.

Priverstinė Ramano sklaida (SRS) yra potencialus bangos ilgio konversijos į ilgabangę sritį metodas, kuris taip pat pasižymi impulso kompresija ir automatinio fazinio sinchronizmo sąlyga. Tačiau, naudojant ultratrumpuosius impulsus (ps – fs eilės) sklaidos efektyvumas drastiškai mažėja dėl impulso ir Ramano terpės vibracinio lygmens gyvavimo trukmės panašumo bei optinio Kero efekto indukuojamų netiesinių procesų.

Šio mokslinio tyrimo tikslas – ištirti ir optimizuoti NIR spektrinės srities superkontinuumo impulsų stiprinimą ir kompresiją priverstinės Ramano sklaidos stiprintuve.

Dvipakopis TSRCPA stiprintuvas, paremtas KGW kristaline terpe ir užkratui pritaikius superkontinuumo spinduliuotę, buvo kaupinamas 1.2 ps trukmės ir 1030 nm centrinio bangos ilgio impulsais. KGW kristalo anizotropinė savybė leidžia žadinti skirtingas Ramano sklaidos modas, kaupinimo ir užkrato elektrinio lauko vektorius nukreipiant lygiagrečiai N_g arba N_m optinėms ašims, kurios atitinka 768 cm^{-1} ir 901 cm^{-1} dažnio poslinkio modas. Tai leido dvipakopiame TSRCPA stiprintuve stiprinti skirtingas Ramano modas ir formuoti plačios gaubtinės Stokso spektrą. Pirmoje stiprinimo pakopoje, žadinant 901 cm^{-1} dažnio poslinkio Stoksa pasiektas 6.4 % energijos keitimo efektyvumas. Antra stiprinimo pakopa generavo 768 cm^{-1} komponentę ir leido pasiekti 35 % energijos keitimo efektyvumą išlaikant aukštos kokybės pluoštą. Toks spektrinės gaubtinės formavimo ir stiprinimo metodas įgalino generuoti 460 μJ energijos ir 32 nm spektrinio pločio impulsus ties 1120 nm centriniu bangos ilgiu. Šių impulsų FROG matavimas atskleidė sudėtingą fazės moduliaciją, kuri buvo dalinai kompensuota N-SF11 prizmių kompresoriumi, pasiekiant 180 fs trukmės Stokso impulsus.

Summary

NIR supercontinuum pulse amplification and compression by transient stimulated Raman scattering

Vytenis Girdauskas

Expanding the coverage of laser sources spectral range is one of the most urgent scientific problems. Near infrared (NIR) lasers ($0.75 - 1.4 \mu\text{m}$) are well developed to provide high pulse energy, short pulse duration and high repetition rate. However, the wavelength conversion of ultrashort pulses in short-wave infrared (SWIR) spectral region ($1.4 - 3.0 \mu\text{m}$) with good efficiency has not yet been firmly studied. Picosecond and femtosecond pulse width SWIR laser sources are required for a wide range of applications, ranging from spectroscopy, biomedicine to material processing and metrology. In strong field physics, high peak power SWIR laser pulses allow to generate high harmonics and reach attosecond pulse width. In this case, increasing the fundamental wavelength makes it possible to achieve higher photon energy. Also, recent studies have shown that with the increase in the wavelength of the laser source for excitation of THz radiation, the conversion efficiency grows by an one order of magnitude.

Stimulated Raman scattering (SRS) is a promising wavelength conversion method that also has advantages for pulse compression and its inherent phase matching in gas, liquid or crystalline media, eliminating the need for parametric crystals. However, stimulated Raman scattering with picosecond and femtosecond laser pulses suffers from lower energy conversion efficiency and nonlinear phenomena caused by the optical Kerr effect.

The goal of this study was to investigate transient stimulated Raman chirped-pulse amplification (TSRCPA) and to determine the optimal conditions for broadband spectrum synthesis which allows to achieve a 50 fs duration pulses.

We report a two-stage TSRCPA system based on KGW crystals seeded with supercontinuum and pumped by 1.2 ps pulses at 1030 nm wavelength. The anisotropic nature of KGW crystal allows several spontaneous Raman scattering modes, which was achieved by rotating KGW crystal about N_p optical axis and controlling pump and seed electric field vectors parallel to the crystal axes N_g or N_m with Stokes shifts of 768 cm^{-1} and 901 cm^{-1} , respectively. This made it possible to amplify the separate Raman scattering modes and synthesize a common broadband spectrum. In the first amplifier stage, the pump-to-signal conversion efficiency for the 901 cm^{-1} Stokes shift under optimal conditions reached 6.4 %. The second amplification stage operated in the 768 cm^{-1} Stokes mode and achieved a conversion efficiency of 35 %. Thus, this method of spectrum synthesis made it possible to achieve amplified pulse energy of 460 μJ and expand the spectral bandwidth to 32 nm at a central wavelength of 1120 nm. Amplified pulse bandwidth was about 23 times the pump bandwidth. Eventually, the FROG measurement of the TSRCPA amplified broadband pulses indicate complex phase modulation, which was partially compensated by N-SF11 prism pair compressor, providing pulse width of up to 180 fs.