

VILNIAUS UNIVERSITETAS  
FIZINIŲ IR TECHNOLOGIJOS MOKSLŲ CENTRAS

KĘSTUTIS STEPONKEVIČIUS

**FEMTOSEKUNDINIŲ LAZERIO IMPULSŲ  
TREČIOSIOS HARMONIKOS GENERAVIMAS IR  
ŠEŠIABANGIS DAŽNIŲ MAIŠYMAS ORE**

Daktaro disertacija  
Fiziniai mokslai, fizika (02P)

Vilnius, 2016 metai

Disertacija rengta 2012–2016 metais Vilniaus universitete Lazerinių tyrimų centre.

**Mokslinis vadovas** – dr. Virgilijus Vaičaitis (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

# TURINYS

<b>Įvadas</b>	<b>4</b>
<b>1 . Literatūros apžvalga</b>	<b>14</b>
1.1. Netiesinė poliarizacija ir bangos lygtis . . . . .	14
1.2. Trečiosios harmonikos lygtys . . . . .	17
1.2.1. Paraksialinis artinys ir trečiosios harmonikos bangos lygtis . . . . .	17
1.2.2. Trečiosios harmonikos generavimas naudojant fokusuotus Gauso formos pluoštus . . . . .	18
1.3. Femtosekundinės šviesos gijos . . . . .	21
1.3.1. Šviesos gijų susidarymas . . . . .	21
1.3.2. Lazerio impulsų fazės moduliavimasis ir kryžminė fazės moduliacija . . . . .	25
1.3.3. Spektro plitimas dėl pluošto sąveikos su plazma . . . . .	27
1.3.4. Grupinių greičių nederinimas ir dispersija . . . . .	29
1.4. Trečiosios harmonikos generavimas šviesos gijose . . . . .	32
1.5. Femtosekundinių lazerio impulsų laikinio charakterizavimo metodai . . . . .	38
<b>2. Trečiosios harmonikos generacija ore</b>	<b>44</b>
2.1. Tyrimo metodai . . . . .	44
2.2. Trečiosios harmonikos erdvinės, spektrinės ir energinės savybės	46
2.3. Trečiosios harmonikos spektriniai poslinkiai ir žadinimo pluoštų refokusavimas . . . . .	52
<b>3. Nekolinearus šešiabangis dažnių maišymas ore</b>	<b>63</b>
3.1. Tyrimo metodai . . . . .	63
3.2. Erdvinių, spektrinių ir energinių šešiabangio dažnių maišymo charakteristikų ypatumai . . . . .	66
<b>4. Šešiabangio dažnių maišymo naudojimas femtosekundinių lazerio impulsų laikiniam ir spektriniam charakterizavimui</b>	<b>82</b>
<b>Išvados</b>	<b>100</b>
<b>Literatūra</b>	<b>102</b>

## IVADAS

Optinių harmonikų generavimas plačiai naudojamas, siekiant gauti koherentinę spinduliuotę tose spektro srityse, kur nėra sukurti efektyvūs lazeriniai šviesos šaltiniai [1-4]. Trečiosios harmonikos (TH) generacijos reiškinys dujose yra itin perspektyvus, kuriant didelio intensyvumo koherentinės ultravioletinės (UV) ir vakuuminės ultravioletinės (VUV) spinduliuotės šaltinius [5-11]. Tokia spinduliuotė gali būti naudojama daugelyje technologinių ir mokslo sričių, pavyzdžiui, detektuojant atmosferos teršalus (žadinant jų fluorescenciją) [2], kaip plazmos diagnostikos metodas [12], ultrasparčioje atomų ir molekulių spektroskopijoje [13], mikroskopijoje (didelės erdvinės ir laikinės skyros biologinių objektų vaizdinime) [14] bei plačiajuosčio superkontinuumo generavime [15, 16]. Tačiau iki perspektyvių trečiosios harmonikos generacijos (THG) dujose taikymų ir problemų sprendimo dar reikia rasti atsakymus į mokslinius klausimus bei detaliau išsiaiškinti THG ir kitų netiesinių reiškinų sąveikos dėsningumus.

Reikia pažymėti, kad THG dėl trečios eilės netiesiškumo priklauso nuo TH fazinio sinchronizmo sąlygų, tačiau TH fazinio sinchronizmo negalima pasiekti izotropinėse normaliosios dispersijos terpėse, tokiose kaip oras ar kitos dujos, kai be THG nepasireiškia kiti netiesiniai reiškiniai. Be to, siekiant didesnio žadinimo pluošto intensyvumo, lazerio pluoštas yra fokusuojamas lęšiu, tačiau pluoštui kertant židinio plokštumą, atsiranda Guoji fazės poslinkis, lygus  $\pi$ , todėl generuojamos TH bangos prieš ir už židinio interferuoja destruktiviai ir dėl to THG dujose iš viso nevyksta [17]. Be to, galingiems lazerio impulsams sąveikaujant su dujomis, pasireiškia ir visa eilė kitų konkuruojančių netiesinių reiškinų [18-36]. Reikia pažymėti, jog galingiems femtosekundiniams (fs) impulsams sklindant dujose, kai impulsų smailinė galia viršija kritinę galią, reikalingą netiesinio fokusavimosi reiškiniui, susidaro šviesos gijos, kuriose pluoštas nedifraguoja, o susispaudžia ir ilgus atstumus sklinda neprarasdamas intensyvumo [37-41]. Taip nutinka, nes femtosekundiniai impulsai dėl netiesinio fokusavimosi ir plazmos įtakos yra

cikliškai fokusuojami ir defokusuojami, todėl šviesos gijoje nusistovi beveik nekintantys tiek lazerio pluošto diametras, tiek maksimalus spinduliuotės intensyvumas, kuris yra ribojamas visoje šviesos gijoje [42, 43]. Taigi, femtosekundinėms šviesos gijoms susidarant ore, maksimalus šviesos intensyvumas yra apie  $5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  [44-50]. Kadangi visoje šviesos gijoje yra beveik nekintantis intensyvumas, tai beveik nekinta ir lūžio rodiklio pokyčiai dėl netiesinio lūžio rodiklio įtakos (Kerro efektas) ir taip dėl netiesinių reiškinių pirmosios harmonikos (PH) ir TH impulsų sklaidimo greičiai tampa beveik vienodi ir pastovūs, o jų fazių skirtumas yra irgi pastovus, t. y. neatsiranda Guoji fazės poslinkis, lygus  $\pi$ , dėl kurio nevyko THG. Šis mechanizmas yra vadinamas netiesiniu fazių surišimu (angl. *nonlinear phase-locking*) [4] ir dėl jo susidaro tinkamos sąlygos THG. Be to, dėl šviesos gijoje ribojamo maksimalaus intensyvumo taip pat yra ribojamas ir didžiausias THG efektyvumas, kurio tiek teoriškai, tiek eksperimentiškai gautos vertės yra 0,2 % [4], kai dujose (būtent ore) buvo naudojami 800 nm bangos ilgio spinduliuotės 45 fs trukmės lazerio impulsai. Nuo to laiko [4] didesnių THG efektyvumų dujose nepavyko gauti. Be to, įprastomis sąlygomis už tam tikro atstumo šviesos gijos suyra, o patys pluoštai defokusuojasi, tačiau neseniai buvo parodyta, kad, jei pluošto galia yra pakankamai didelė, fokusavimosi procesas gali pasikartoti. Taigi, dujose gali susidaryti sudėtinės iš kelių dalių sudarytos šviesos gijos ir šis reiškinys vadinasi pluoštų refokusavimas (angl. *refocusing*) [51]. Šis reiškinys stebėtas ne tik dujose [51], bet ir skysčiuose [52] bei stikluose [53]. Negana to, šviesos gijos susidarymo metu žadinimo pluošto ir TH spektrai išplinta dėl tokių reiškinių, kaip plazmos generacija [54-59], fazės moduliavimasis [60, 61], kryžminė fazės moduliacija [62, 63] ir impulso laikinės formos fronto statėjimas [64-66].

Taigi, nors jau 2 dešimtmečius tiek dujose formuojamų šviesos gijų [8], tiek jose vykstančios THG [3] temos pritraukia daugybės mokslininkų dėmesį bei yra aktyviai tyrinėjamos, tačiau TH erdvinės, laikinės ir spektrinės savybės yra komplikotos, o THG bei šviesos gijose vykstančių netiesinių reiškinių sąveikos fizika yra sudėtinga bei nėra visapusiškai ištirta ir suprasta [67-71].

Taigi, reikia rasti problemų sprendimus, atsakant į aktualius klausimus, pvz., nėra aišku, kaip sukurti derinamo dažnio koherentį UV šaltinį, t. y. kaip gauti didelius TH spektrinius poslinkius, nes literatūroje pateiktos šių poslinkių vertės yra tik 3–4 nm ir jos greit įsisotina, didinant žadinančių impulsų energiją [1, 2]. Be to, dar nėra tyrinėta PH pluoštų refokusavimo įtaka TH spektrams, bei nėra aišku, ar šis reiškinys galėtų papildomai padidinti TH spektrinius poslinkius. Todėl atsakymai į šiuos du klausimus bei TH spektrinių charakteristikų tyrimų rezultatai yra aprašyti 2-ame disertacijos skyriuje.

Kita vertus, naudojant galingus femtosekundinius lazerio impulsus dujose gali pasireikšti ir aukštesnių (nei trečioji) eilių (pvz., penktosios) netiesiniai optiniai reiškiniai [72-76]. Be to, neseniai pademonstruota, kad THG efektyvumą galima padidinti, naudojant papildomą žadinimo lazerio pluoštą [77-81]. Toks THG efektyvumo padidėjimas buvo paaiškintas lazeriu indukuotos plazmos įtaka, bet iki šiol dar nėra paskelbto pilno teorinio modelio, aprašančio THG, naudojant du žadinimo pluoštus. Tai motyvavo mus tirti penktos eilės netiesiškumo įtaką THG bei pirmą kartą pademonstruoti THG dėl nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo (ŠDM) (angl. *six-wave mixing* – SWM), kurio metu penki pirmosios harmonikos fotonai sąveikauja išspinduliuodami vieną TH fotoną. Šis procesas efektyviausias, kai naudojami du žadinimo pluoštai, suvedami ŠDM fazinio sinchronizmo kampu. Skirtingai nei aprašyta literatūroje [72-76], šis žadinimo pluoštų susikirtimo kampas yra itin mažas (apie 10 mrad), nes tik tada tenkinamos ŠDM fazinio sinchronizmo sąlygos. Taigi, tokie ŠDM reiškinio ir jo taikymų tyrimai aprašyti 3-ame ir 4-ame disertacijos skyriuose.

## **DARBO TIKSLAS**

Disertacijos darbo tikslas – ore naudojant femtosekundinius lazerio impulsus, iširti trečiosios harmonikos spektrines savybes ir jų pokyčius pluošto refokusavimosi metu bei pademonstruoti trečiosios harmonikos generaciją dėl šešiabangio dažnių maišymo, tuo pačiu analizuojant šio reiškinio charakteristikas (erdvines, spektrines, energines) bei taikymų galimybes.

## **DARBO UŽDAVINIAI**

1. Naudojant femtosekundinius lazerio impulsus, ištirti vienu pluoštu ore generuojamos trečiosios optinės harmonikos erdvines, spektrines ir energines charakteristikas.
2. Ištirti lazerio impulsų ir jų generuojamos trečiosios harmonikos impulsų sklidimo šviesos gijoje evoliuciją ir rasti fizikinius mechanizmus bei priežastis, sąlygojančius itin didelius spektrinius pirmosios ir trečiosios harmonikų poslinkius bei ištirti pirmosios harmonikos pluošto refokusavimo reiškinį ir jo įtaką šiems spektriniais pokyčiams.
3. Pademonstruoti efektyvų šešiabangį dažnių maišymą normaliosios dispersijos terpėje, t. y. ore, tam naudojant femtosekundinius lazerio impulsus ir dviejų žadinimo pluoštų konfigūraciją.
4. Ištirti trečiosios optinės harmonikos, generuojamos nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo metu, erdvines, spektrines, energines charakteristikas bei optimizuoti tokios spinduliuotės erdvines savybes ir generacijos efektyvumą.
5. Pademonstruoti šešiabangio dažnių maišymo galimybes, registruojant femtosekundinių lazerio impulsų penktosios eilės intensyvumo autokoreliacines funkcijas, ir taip nustatant charakterizuojamų impulsų trukmę bei laikinę formą. Taip pat ištirti šio reiškinio taikymą, registruojant šešiabangio dažnių maišymo FROG pėdsaką.

## **MOKSLINIO DARBO AKTUALUMAS IR NAUJUMAS**

1. Skirtingai nei ankstesniuose eksperimentuose [1, 2], kur gauti trečiosios harmonikos spektriniai pokyčiai yra tik 3–4 nm eilės, mūsų eksperimentų metu buvo pasiekti itin dideli (iki 20 nm) trečiosios harmonikos spinduliuotės spektriniai poslinkiai. Be to, buvo nustatyta, jog visame žadinimo impulsų

energijos diapazone (iki 3 mJ) žadinimo ir trečiosios harmonikos spektriniai poslinkiai yra proporcingi žadinimo impulsų energijai. Be to, šie spektriniai poslinkiai buvo proporcingi ir šviesos gijos ilgiui, kuris taip pat tiesiškai priklausė nuo žadinimo impulsų energijos. Taigi, toks trečiosios harmonikos generavimo metodas gali būti naudojamas, kuriant koherentinės UV spinduliuotės šaltinius, kurių bangos ilgis būtų derinamas priklausomai nuo žadinimo impulsų energijos.

2. Eksperimentiniais ir skaitmeniniais tyrimais nustatyta, jog, lazerio pluoštus fokusuojant ilgo židinio nuotolio lęšiais ir vykstant pluoštų refokusavimo reiškiniui, kai sklidimo metu po suirimo šviesos gija vėl atsistato, šis reiškinys dėl plazmos elektronų tankio kitimo papildomai padidina trečiosios harmonikos centrinės dalies spektrinius poslinkius į trumpesnių bangos ilgių sritį.

3. Nepaisant to, kad izotropinėse normaliosios dispersijos terpėse negalima tenkinti trečiosios harmonikos fazinio sinchronizmo sąlygų, buvo pademonstruota, kad šiose terpėse gali vykti faziškai sinchronizuotas nekolinearus šešiabangis dažnių maišymas, kurio rezultatas – trečiosios harmonikos generacija. Šio reiškinio analizė leido nustatyti penktos eilės netiesinio oro optinio jautrio tenzorius  $\chi^{(5)}_{xyyyx}(-3\omega, \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$  vertę.

4. Pademonstruota, jog šešiabangiam dažnių maišymui naudojant dviejų sukryžiuotų pluoštų konfigūraciją ir atitinkamai parenkant jų intensyvumų santykį beveik visą generuojamos trečiosios harmonikos energiją galima perduoti į vieną Gauso formos pluoštą. Be to, tokiomis sąlygomis generuojamos trečiosios harmonikos spektro plotis yra daugiau nei 2 kartus siauresnis, nei gaunamas, naudojant vieną žadinimo pluoštą.

5. Pirmą kartą eksperimentiškai ir teoriškai pademonstruota, kad nekolinearus šešiabangio dažnių maišymo ore reiškinį galima naudoti penktosios eilės intensyvumo autokoreliacinių funkcijų, kurios leidžia nustatyti femtosekundinių lazerio impulsų laikinę formą ir trukmę, registravimui. Taip pat pirmą kartą



eksperimentiškai pademonstruota, jog šis reiškinys gali būti taikomas ir femtosekundinių lazerio impulsų šešiabangio dažnių maišymo FROG pėdsako registravimui.

## **GINAMIEJI TEIGINIAI**

1. Femtosekundinius lazerio impulsus fokusuojant ilgo židinio nuotolio (~ 2 m) lęšiais ore, atsiranda itin dideli pirmosios ir generuojamos trečiosios harmonikos spektriniai poslinkiai (atitinkamai iki 20 nm ir 50 nm). Šie poslinkiai, didinant žadinimo impulsų energiją, didėja tiesiškai bei yra proporcingi susidariusios šviesos gijos ilgiui, taip pat augančiam tiesiškai, nes atitinkamai didėja sąveikos ilgis netiesiniams reiškiniams, kurie sąlygoja šiuos spektrinius poslinkius (plazmos generacija, fazės moduliavimasis bei kryžminė fazės moduliacija).

2. Ilgo židinio nuotolio (~ 2 m) lęšiais fokusuojant femtosekundinius lazerio impulsus, pasireiškia pluošto refokusavimas ir, susiformavus antrai šviesos gijai, dėl elektronų plazmos tankio kitimo papildomai padidėja trečiosios harmonikos ašinės dalies spektrinis poslinkis į trumpesnių bangų sritį. Refokusavimas nepaveikia trečiosios harmonikos kūginės dalies spektro, nes ši dalis sukurama pirmoje šviesos gijoje, o antroje šviesos gijoje su žadinimu bei elektronų plazma dėl sklidimo kampu optinės ašies atžvilgiu nesąveikauja.

3. Naudojant šešiabangį femtosekundinių lazerio impulsų dažnių maišymą normaliosios dispersijos terpėje (ore) gali būti generuojama faziškai sinchronizuota trečioji optinė harmonika, kai penki pirmosios harmonikos fotonai sąveikauja, išspinduliuodami vieną trečiosios harmonikos fotoną. Nekolinearių žadinimo pluoštų konfigūracijos atveju, kai šie du pluoštai suvedami fazinio sinchronizmo kampu (13 mrad), šešiabangio dažnių maišymo efektyvumas gali viršyti  $10^{-4}$ .

4. Erdvines ir energines trečiosios harmonikos, generuojamos šešiabangio dažnių maišymo metu, charakteristikas galima optimizuoti, keičiant žadinimo pluoštų intensyvumų santykį. Šis metodas leidžia beveik visą generuojamos trečiosios harmonikos energiją iš dviejų pluoštų perduoti į vieną Gauso formos pluoštą, o bendrą generacijos efektyvumą padidinti iki 25%, lyginant su atveju, kai abiejų žadinimo pluoštų galia vienoda.

5. Šešiabangį dažnių maišymą ore galima naudoti femtosekundinės trukmės lazerio impulsų charakterizavimui, t. y., šių impulsų penktosios eilės autokoreliacijų ir FROG pėdsakų registravimui. Dėl mažos oro dispersijos ir mažų šešiabangio dažnių maišymo fazinio sinchronizmo kampų, šiam reiškiniiui būdingas itin didelis fazinio sinchronizmo juostos plotis (apie 340 nm), o tai atitinka mažesnę, nei 5 fs charakterizuojamų impulsų trukmę.

## **DARBO APROBACIJA**

### **Publikacijos disertacijos tema**

A1. V. Vaičaitis, V. Jarutis, **K. Steponkevičius**, A. Stabinis, Noncollinear six-wave mixing of femtosecond laser pulses in air, *Phys. Rev. A* **87**, 063825 (2013).

A2. **K. Steponkevičius**, V. Pyragaitė, B. Makauskas, E. Žeimys, V. Vaičaitis, Spectral shifts of the fundamental and third harmonic radiation in air induced by self-focused femtosecond laser pulses, *Opt. Commun.* **333**, 71-74 (2014).

A3. V. Pyragaitė, **K. Steponkevičius**, B. Makauskas, E. Žeimys, V. Vaičaitis, Influence of refocusing of femtosecond laser pulses in air on third harmonic generation, *Opt. Commun.* **347**, 102-107 (2015).

A4. **K. Steponkevičius**, B. Makauskas, E. Žeimys, V. Jarutis, V. Vaičaitis, Optimization of third harmonic generation in air by noncollinear six-wave mixing, *Laser Phys. Lett.* **12**, 063825 (2015).

A5. E. Gaižauskas, **K. Steponkevičius**, V. Vaičaitis, Fifth-order intensity autocorrelations based on six-wave mixing of femtosecond laser pulses, *Phys. Rev. A* **93**, 023813 (2016).

#### **Kitos mokslinės publikacijos**

A6. V. Pyragaitė, V. Smilgevičius, **K. Steponkevičius**, B. Makauskas, V. Vaičaitis, Phase shifts in terahertz wave generation by tightly focused bichromatic laser pulses, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 1430-1435 (2014).

A7. D. Pentaris, D. Damianos, G. Papademetriou, A. Lyras, **K. Steponkevičius**, V. Vaičaitis, T. Efthimiopoulos, Coherently controlled emissions 4P-4S from a femtosecond  $\Lambda$ -type excitation scheme in potassium atom, *J. Mod. Opt.* **63**, 1301-1312 (2016).

#### **Pranešimai konferencijose, pristatyti K. Steponkevičiaus**

1. **K. Steponkevičius**, V. Pyragaitė, V. Smilgevičius, V. Vaičaitis, Nonlinear phase shifts of bichromatic pump waves during terahertz wave generation in air, CLEO/EUROPE - IQEC 2013, Miunchenas, Vokietija (2013).

2. **K. Steponkevičius**, E. Žeimys, B. Makauskas, V. Vaičaitis, Netiesinė femtosekundinių lazerio impulsų ir oro sąveika, Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, Vilnius, Lietuva (2013).

3. **K. Steponkevičius**, V. Jarutis, B. Makauskas, E. Žeimys, V. Vaičaitis, Phase-Matched Frequency Tripling of Femtosecond Laser Pulses in Air, *Lasers and Optical Nonlinearity*, Vilnius, Lietuva (2013).

4. **K. Steponkevičius**, V. Jarutis, V. Vaičaitis, Noncollinear Third-Harmonic Generation of Femtosecond Laser Pulses in Air, *Developments in Optics and Communications*, Ryga, Latvija (2014).

5. **K. Steponkevičius**, E. Gaižauskas, V. Vaičaitis, Šešiabangis dažnių maišymas ore femtosekundinių lazerio impulsų intensyvumo autokoreliacijų registravimui, Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, Vilnius, Lietuva (2015).

6. **K. Steponkevičius**, V. Vaičaitis, Fifth-order intensity autocorrelations of femtosecond laser pulses by noncollinear six-wave mixing, CLEO/EUROPE - IQEC 2015, Miunchenas, Vokietija (2015).

### **Pranešimų bendraautorius**

1. **K. Steponkevičius**, V. Jarutis, V. Vaičaitis, Quintic Optical Nonlinearity in Frequency Tripling of Femtosecond Laser Pulses, Photon14, Londonas, Anglija (2014).

2. V. Vaičaitis, V. Pyragaitė, **K. Steponkevičius**, V. Smilgevičius, Broadband Terahertz Wave Generation From Air By Femtosecond Laser Pulses, 15th International Symposium on "Ultrafast Phenomena in Semiconductors" (15-UFPS), Vilnius, Lietuva (2013).

3. V. Pyragaitė, V. Smilgevičius, **K. Steponkevičius**, B. Makauskas, V. Vaičaitis, Phase Shifts of Bichromatic Pump Pulses in Terahertz Wave Generation from Laser Induced Gas Plasma, Lasers and Optical Nonlinearity, Vilnius, Lietuva (2013).

4. V. Pyragaitė, **K. Steponkevičius**, V. Smilgevičius, V. Vaičaitis, Broadband Terahertz Wave Generation from Laser-Induced Air Plasma, Photon14, Londonas, Anglija (2014).

5. V. Pyragaitė, **K. Steponkevičius**, B. Makauskas, E. Žeimys, V. Vaičaitis, Lazerio impulsais žadinama trečios harmonikos generacija ore: refokusavimasis ir spektriniai poslinkiai, Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, Vilnius, Lietuva (2015).

## **Bendraautorių indėlis**

Šioje disertacijoje aprašyti tyrimai buvo atlikti Vilniaus universiteto Lazerinių tyrimų centre 2012-2016 metais, vadovaujant dr. V. Vaičičiui. Disertacijoje aprašytus eksperimentinius tyrimus ir matavimus atliko pats autorius. Taip pat jis atliko dalį teorinio modeliavimo, aprašyto [A2, A4, A5] straipsniuose. Tačiau labai svarbu yra paminėti šių bendraautorių indėlį:

1. Dr. **V. Vaičaitis** (A1–A5) vadovavo visiems disertacijoje aprašytiems tiriamiesiems darbams, susijusiems su trečiosios harmonikos ir šešiabangio dažnių maišymo reiškiniais, vykstančiais oro šviesos gijose. Taip pat padėjo interpretuoti eksperimentinius duomenis, pateikti ir pristatyti šiuos duomenis tarptautinių konferencijų pranešimuose bei parengti atitinkamas mokslines publikacijas.
2. Prof. **A. Stabinis** (A1) atliko teorinę trečiosios harmonikos generavimo šešiabangio dažnių maišymo metu, naudojant du žadinimo pluoštus, analizę bei prisidėjo rašant šią publikaciją.
3. Dr. **V. Jarutis** (A1, A4) atliko skaitmeninį šešiabangio dažnių maišymo ore modeliavimą bei prisidėjo rašant publikacijas.
4. Dr. **V. Tamulienė (Pyragaitė)** (A2, A3) atliko modeliavimo darbus, tiriant lazerio impulso ir jo generuojamos trečiosios harmonikos sklidimo šviesos gijoje evoliuciją, bei analizuojant pluoštų refokusavimo reiškinį ir jo įtaką spektriniams pokyčiams. Taip pat prisidėjo rašant publikacijas.
5. Dr. **E. Gaižauskas** (A5) atliko šešiabangio dažnių maišymo reiškinio penktos eilės autokoreliacinių funkcijų modeliavimus bei prisidėjo rašant publikaciją.
6. Magistrantai **B. Makauskas** ir **E. Žeimys** (A2–A4) padėjo atlikti eksperimentinius trečiosios harmonikos generacijos ir šešiabangio dažnių maišymo reiškinų tyrimus.

# 1. LITERATŪROS APŽVALGA

## 1.1. NETIESINĖ POLIARIZACIJA IR BANGOS LYGTIS

Dėl netiesinio medžiagos atsako poliarizuotumo (medžiagos tūrio vieneto dipolinio momento) išraiškoje atsiranda papildomi nariai, priklausantys nuo aukštesnių šviesos elektrinio lauko eilių. Bedispersinėje skaidrioje medžiagoje intensyvus elektromagnetinis laukas sukuria poliarizuotumą  $\tilde{P}(t)$ , kuris yra skleidžiamas elektrinio lauko stiprio  $\tilde{E}(t)$  laipsnių eilute:

$$\begin{aligned}\tilde{P}(t) &= \varepsilon_0 [\chi^{(1)}\tilde{E}(t) + \chi^{(2)}\tilde{E}^2(t) + \chi^{(3)}\tilde{E}^3(t) + \dots] = \\ &= \tilde{P}^T(t) + \tilde{P}^{NL}(t),\end{aligned}\tag{1.1.1}$$

čia:  $\varepsilon_0$  – vakuumo dielektrinė skvarba;  $\chi^{(1)}, \chi^{(2)}, \chi^{(3)}$  – tiesinis ir netiesiniai antrosios bei trečiosios eilės medžiagos optiniai jautriai,  $\tilde{P}^T(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \tilde{E}(t)$  – tiesinė poliarizacija, aprašanti tiesines optines medžiagos savybes,  $\tilde{P}^{NL}(t)$  – netiesinė poliarizacija, apjungianti aukštesnių eilių narius, kurie tampa svarbūs tik esant intensyviam elektromagnetiniam laukui. Simbolis  $\sim$  naudojamas aprašant laikines priklausomybes (pvz.  $\tilde{E}(t) = E \exp(-i\omega t) + k.j.$ , čia:  $E$  – konstanta arba lėtai kintanti amplitudė). Verta paminėti, kad (1.1.1) lygties eilutė ne visada konverguoja. Skleidimas eilute negalioja, kai elektrinis laukas sąlygoja fotojonizaciją, arba kai rezonansiškai sužadinama didelė atomų dalis.

Visose medžiagose (nepriklausomai nuo jų fizinės būsenos) pasireiškia netiesiniai optiniai efektai, sąlygoti trečiosios eilės (kubinio) netiesinio poliarizuotumo, kuris aprašomas lygtimi:

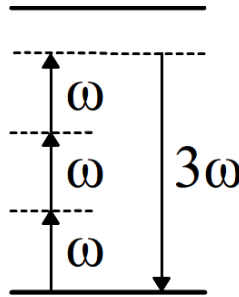
$$\tilde{P}^{(3)}(t) = \chi^{(3)} \tilde{E}(t)^3.\tag{1.1.2}$$

Kubinis netiesiškumas sąlygoja tokius reiškinius kaip optinis Kero efektas, Ramano sklaida, keturbangis dažnių maišymas, trečiosios harmonikos generavimas ir kitus. Esant  $\omega$  dažnio spinduliuotės elektriniam laukui, trečiosios eilės netiesinis poliarizuotumas turi du narius  $P(\omega)$  ir  $P(3\omega)$ , kurių

dažniai atitinkamai yra  $\omega = \omega + \omega - \omega$  ir  $3\omega = \omega + \omega + \omega$ . Šiuos narius aprašo lygtis:

$$\tilde{P}^{(3)}(t) = P(\omega) \exp(-i\omega t) + P(3\omega) \exp(-i3\omega t) + k.j.. \quad (1.1.3)$$

Pirmasis (1.1.3) lygties narys aprašo netiesinės poliarizacijos įtaką to paties dažnio spinduliutei per medžiagos lūžio rodiklio pokytį (optinį Kero efektą), kuris sąlygoja šviesos pluoštų fokusavimąsi ir impulsų fazės moduliavimąsi. Antrasis (1.1.3) lygties narys aprašo trečiosios harmonikos generavimą t.y. trigubo dažnio spinduliuotės atsiradimą, kai vienu metu sugeriami trys vienodo dažnio  $\omega$  fotonai ir išspinduliuojamas vienas  $3\omega$  dažnio fotonas (1.1.1 pav.).



1.1.1 pav. Energijos lygmenų diagrama, vaizduojanti trečiosios harmonikos generavimą.

Atsižvelgus į elektrinių laukų vektorinę prigimtį,  $\tilde{P}(t)$  ir  $\tilde{E}(t)$  yra optiniu dažniu laike kintantys vektoriai. Esant šioms sąlygoms, trečiosios harmonikos generavimą aprašantis poliarizacijos narys lygus:

$$P_i(3\omega) = \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega, \omega, \omega, \omega) E_j E_k E_l, \quad (1.1.4)$$

čia: indeksai  $i, j, k, l$  žymi lauko komponentų projekcijas Dekarto koordinačių sistemoje, o ketvirto rango tenzorius  $\chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega, \omega, \omega, \omega)$  yra netiesinis trečiosios eilės optinis jautris, aprašantis trečiosios harmonikos generavimą. Paprastumo dėlei izotropinėse medžiagose galima neatsižvelgti į tenzorinę netiesinio trečiosios eilės optinio jautrio (kuris yra 4-tojo rango tenzorius) prigimtį, todėl (1.1.4) išraiška gali būti supaprastinama:

$$P(3\omega) = \chi^{(3)} E_\omega^3. \quad (1.1.5)$$

Dielektrinėje terpėje (kurios bendras krūvis yra neutralus) tik laike kintanti poliarizacija yra naujų elektromagnetinių bangų šaltinis. Maksvelo lygtyse naudojant netiesinės poliarizacijos narį  $\tilde{P}^{NT}(t)$ , bangos sklidimas izotropinėje, bedispersinėje ir skaidrioje terpėje yra aprašomas šia lygtimi:

$$\nabla^2 \tilde{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \tilde{P}^{NT}}{\partial t^2}, \quad (1.1.6)$$

čia:  $n$  – tiesinis lūžio rodiklis,  $c$  – šviesos greitis vakuume,  $\nabla$  – Laplaso operatorius. Nevienalytėje bangos lygtyje (1.1.6)  $\tilde{P}^{NT}$  kuria elektrinį lauką  $\tilde{E}$ .  $\partial^2 \tilde{P}^{NT} / \partial t^2$  yra medžiagos krūvininkų pagreičio matas, todėl, kai dešinės pusės narys yra nelygus 0, krūvininkai yra greitunami ir spinduliuoja elektromagnetines bangas.

Sprendžiant lygtį (1.1.6), yra naudojamas *lėtai kintančios amplitudės artinys*, kai, esant nedideliems netiesiškumams, bangos ilgio atstume amplitudės pokytis yra mažas. Jei  $z$  ašimi sklindantis elektrinis laukas aprašomas lygtimi:

$$\tilde{E}_q(r, t) = A_q(r, t) \exp i(k_q z - \omega_q t) + k.j., \quad (1.1.7)$$

čia:  $q$  – optinės harmonikos eilė (TH atveju indeksas  $q = 3$ ),  $k_q = 2\pi n / \lambda_q$  – banginis vektorius,  $n$  – tiesinis lūžio rodiklis esant bangos ilgiui  $\lambda_q$ ,  $\omega_q = 2\pi / T$  – kampinis dažnis,  $T = \lambda_q$  bangos ilgio periodas, tai ši aproksimacija reiškia, kad elektrinio lauko amplitudė  $A_q(r, t)$  lėtai kinta erdvėje ir laike. Šį artinį aprašo lygtys:

$$\left| \frac{\partial^2 A_q}{\partial z^2} \right| \ll \left| k_q \frac{\partial A_q}{\partial z} \right|, \quad (1.1.8)$$

$$\left| \frac{\partial^2 A_q}{\partial t^2} \right| \ll \omega_q \left| \frac{\partial A_q}{\partial t} \right|. \quad (1.1.9)$$

Esant šioms sąlygoms, galima atmesti narius su antrąja išvestine laiko ir erdvės atžvilgiu. Šis artinys galioja ir femtosekundiniams lazerio impulsams, jei lazerio impulso trukmė yra žymiai didesnė už elektromagnetinės bangos periodą. Artinio sąlyga, aprašyta (1.1.8) lygtimi, leidžia ir šiuos supaprastinimus:



$$\nabla \times \nabla \times = \nabla(\nabla \cdot) - \nabla^2 \approx -\nabla^2 \approx \nabla_T^2, \quad (1.1.10)$$

čia:  $\nabla_T^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$  – skersinis Laplaso operatorius [17, 24, 82].

## 1.2. TREČIOSIOS HARMONIKOS LYGTYS

### 1.2.1. Paraksialinis artinys ir trečiosios harmonikos bangos lygtis

Į nevienalytės bangos lygtį (1.1.6) įstačius  $z$  kryptimi sklindančios bangos, kuri nėra plokščia, lygtį (1.1.7) ir trečios eilės netiesinės poliarizacijos išraišką (1.1.5) bei pritaikius lėtai kintančios amplitudės aproksimaciją laikinių kitimų atžvilgiu ( $A_q(r, t) = A_q(r)$ ),  $q$ -osios harmonikos (kurios dažnis  $\omega_q = q\omega$ ) generavimo bangos lygtis aprašoma taip:

$$\nabla_T^2 A_q - 2ik_q \frac{\partial A_q}{\partial z} = \frac{-4\pi\omega_q^2}{c^2} \chi^{(q)} A_1^q e^{i\Delta kz}, \quad (1.2.1.1)$$

čia:  $q = 3$  (TH atveju),  $A_1$  - pirmosios harmonikos elektrinio lauko amplitudė, lėtai kintanti erdvėje (kaip ir  $A_q$ );  $\Delta k = qk_1 - k_q$  - bangos vektorių nederinimas (arba fazinio nederinimo parametras), kuris THG atveju lygus:

$$\Delta k = 3k_1 - k_3 = \frac{6\pi}{\lambda_1} (n_1 - n_3), \quad (1.2.1.2)$$

čia:  $n_1$  ir  $n_3$  yra medžiagos lūžio rodikliai pirmajai ir trečiajai harmonikai.

Dėl dispersijos terpėje skirtingų dažnių bangos sklinda skirtingais greičiais. Jei dydis  $\Delta k \neq 0$ , tai, sklindant terpe generuojamai TH elektrinio lauko bangai, jos ir trečiosios eilės netiesinės poliarizacijos bangos fazės išsiderina. Tokiu atveju generuojama banga dėl interferencijos silpsta. Esant *fazinio sinchronizmo sąlygai*,  $\Delta k = 0$ , trečios eilės netiesinės poliarizacijos ir generuojamos TH bangų fazės sutampa. Tokiu atveju vyksta efektyvi energijos pernaša į TH ir generuojama banga stiprėja.

Dėl naudojamo lėtai kintančios amplitudės artinio kairėje lygties (1.2.1.1) pusėje yra neatsižvelgiama į antros eilės išvestinę  $\partial^2/\partial z^2$ . Ši

prielaida teisinga tik bangai sklindant  $z$  kryptimi, todėl (1.2.1.1) lygtis galioja tik paraksialiniame artinyje [17, 24, 82].

### 1.2.2. Trečiosios harmonikos generavimas naudojant fokusuotus Gauso formos pluoštus

Paprastai, siekiant padidinti intensyvumą, žadinančios spinduliuotės pluoštai yra fokusuojami ir taip padidinamas netiesinių procesų efektyvumas. Šiame skyrelyje aptarsime trečiosios harmonikos generavimą, naudojant fokusuotus Gauso formos pluoštus.

Vienas iš bangos lygties (1.2.1.1) sprendinių yra pluoštas, kurio intensyvumo skirstinį (plokštumoje, statmenoje sklidimo ašiai) aprašo Gauso funkcija. Skaliarinio Gauso pluošto išraiška užrašoma taip:

$$A(r, z) = A_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z)} + \frac{ikr^2}{2R(z)}\right) \exp(i\Phi(z, t)), \quad (1.2.2.1)$$

čia:  $w_0$  – pluošto spindulys sąsmaukoje;  $k = 2\pi n/\lambda$  – banginis skaičius;  $\lambda = 2\pi c/n\omega$  – bangos ilgis;  $z_R = kw_0^2/2$  – Relėjaus ilgis (atstumas nuo židinio iki taško, kuriame pluošto spindulys padidėja  $\sqrt{2}$  karto palyginus su  $w_0$ );  $R(z) = z(1 + (z_R/z)^2)$  – pastovios fazės (bangos fronto) kreivumo spindulys;  $w(z) = w_0[1 + (z/z_R)^2]^{1/2}$  – pluošto erdvinio skirstinio spindulys (1 /  $e$  lygyje);  $\Phi(z, t) = -\arctan(z/z_R)$  – Guoji fazė. Gauso pluošto skėsties kampas tolimajame lauke  $\theta = \lambda/\pi w_0$ .

Teoriniams skaičiavimams naudojama kompaktiškesnė (bet mažiau intuityvi) Gauso pluošto lygtis, kuri  $q$ -osios harmonikos atveju užrašoma taip:

$$A_q(r, z) = \frac{A_{0,q}}{1 + i\xi} \exp\left(-\frac{qr^2}{w_0(1 + i\xi)}\right), \quad (1.2.2.2)$$

čia:  $q$  lygus 1 arba 3 (pirmosios arba trečiosios harmonikų atvejais),  $b = 2z_R = kw_0^2$  – Gauso pluošto sąsmaukos ilgis, o  $\xi = 2z/b$ . Jei žadinančios bangos elektrinio lauko amplitudė  $A_{0,1}$  nekinta, tai (1.2.2.2) išraiškoje ji laikoma konstanta. Toks artinys vadinamas *sąveika nesant kaupinimo bangos*

nuskurdinimo. Tuo tarpu TH laukui  $A_{0,3}$  yra funkcija nuo  $z$ . Esant šioms sąlygoms ir (1.2.2.2) išraišką įstačius į (1.2.1.1),  $A_q$  aprašoma taip:

$$\frac{dA_{0,q}}{dz} = \frac{iq\omega}{2n_q c} \chi^{(q)} A_{0,1}^q \frac{e^{i\Delta kz}}{(1+i\xi)^{q-1}}. \quad (1.2.2.3)$$

Integruojant (1.2.2.3) pagal koordinatę  $z$ , gausime:

$$A_{0,q}(z) = \frac{iq\omega}{2nc} \chi^{(q)} A_{0,1}^q J(\Delta k, z_0, z), \quad (1.2.2.4)$$

$$J_q(\Delta k, z_0, z) = \int_{z_0}^z \frac{e^{i\Delta kz'} dz'}{(1+2iz'/b)^{q-1}}, \quad (1.2.2.5)$$

čia: integralo apatinis rėžis  $z_0 - z$  koordinatės vertė, kur pluoštas pradeda sąveikauti su netiesine terpe, o viršutinis rėžis  $z - z$  sąveikos pabaigos koordinatė. Kaip matome iš (1.2.2.5) ir (1.2.2.2) lygčių, žadinančios pirmosios ir generuojamos  $q$ -osios harmonikų sąsmaukų ilgiai yra lygūs. Tuo tarpu  $q$ -osios harmonikos pluošto spindulys sąsmaukoje  $w_0$  ir skėsties kampas tolimajame lauke  $\theta$  yra  $\sqrt{q}$  karto mažesni lyginant su pirmosios harmonikos atveju.

Aptarsime du artinius, kuriuos naudojant (1.2.2.5) lygties integralas yra supaprastinamas. Vienas iš jų yra žadinančios plokščiosios bangos artinys, kai tenkinama ši sąlyga:  $b \gg |z_0|, |z|$ . Tada (1.2.2.5) išraišką perrašome taip:

$$J_q(\Delta k, z_0, z) = \int_{z_0}^z e^{i\Delta kz'} dz' = \frac{e^{i\Delta kz} - e^{i\Delta kz_0}}{i\Delta k}, \quad (1.2.2.6)$$

$$|J_q(\Delta k, z_0, z)|^2 = L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right), \quad (1.2.2.7)$$

čia:  $L = z - z_0$  yra pluošto sąveikos su netiesine terpe ilgis.

Kitu atveju Gauso pluoštas netiesinėje terpėje yra aštriai fokusuojamas taip, kad tenkintų šias sąlygas:  $z_0 = -|z_0|, z = |z|$  ir  $b \ll |z_0|, |z|$ . Tokiu atveju (1.2.2.5) išraiškos integralo rėžiai yra  $\pm\infty$ , o pati lygtis užrašoma taip:

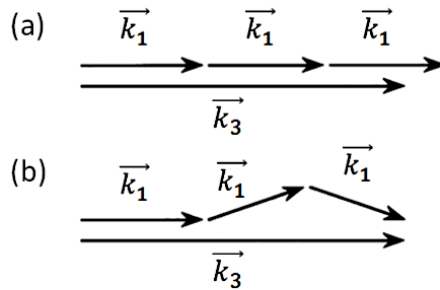
$$J_q(\Delta k, z_0, z) = \int_{z_0}^z \frac{e^{i\Delta kz'} dz'}{(1+2iz'/b)^{q-1}}. \quad (1.2.2.8)$$

(1.2.2.8) integruodami kontūru, gauname šią išraišką:

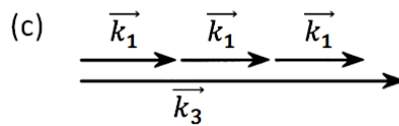
$$J_q(\Delta k, z_0, z) = \begin{cases} 0, & \text{kai } \Delta k \leq 0, \\ \frac{b}{2} \frac{2\pi}{(q-2)!} \left(\frac{b\Delta k}{2}\right)^{q-2} e^{-b\Delta k/2}, & \text{kai } \Delta k > 0. \end{cases} \quad (1.2.2.9)$$

Trečiosios harmonikos generavimo atveju  $q = 3$ . Taigi, THG signalas lygus nuliui, kai  $\Delta k \leq 0$  (įskaitant ir fazinio sinchronizmo atvejį ( $\Delta k = 0$ )). Kai pluoštas kerta židinio plokštumą, atsiranda Gauso pluošto Guoji fazės  $\Phi$  poslinkis, lygus  $\pi$ , todėl generuojamos TH bangos prieš ir už židinio interferuoja destruktiviai, o THG nevyksta. Efektyvi THG galima tik, kai  $\Delta k > 0$  ((1.2.2.9) lygtis).

**Anomalioji optinė dispersija ( $n_3 < n_1$ ):**



**Normalioji optinė dispersija ( $n_3 > n_1$ ):**



1.2.2.1 pav. Banginių vektorių diagrama, vaizduojanti trečiosios harmonikos generavimą, kai: (a)  $\Delta k > 0$ , (b)  $\Delta k = 0$ , (c)  $\Delta k < 0$ .

Taigi sąlyga  $\Delta k \leq 0$  tenkinama medžiagose, pasižyminčiose normaliaja dispersija ( $n_3 > n_1$ ), todėl jose trečiosios harmonikos generavimas, kai Gauso pluoštas yra aštriai fokusuojamas, yra negalimas (lygtis (1.2.2.9)). Tik artėjant prie elektroninių rezonansų medžiagose pasireiškia anomalioji dispersija, kai  $n_3 < n_1$ , todėl  $\Delta k > 0$  ir vyksta TH generavimas. Tuo tarpu žadinančios plokščiosios bangos ribos atveju (lygtis 1.2.2.7), efektyviausiai THG vyksta, tiksliai tenkinant fazinio sinchronizmo sąlygą, kai  $\Delta k = 0$  nes tada gali būti panaudota nenulinė žadinančio pluošto banginių vektorių skėtis ir galima tenkinti vektorinio fazinio sinchronizmo sąlygas (1.2.2.1 pav., b). Tačiau, kai

$\Delta k < 0$ , net ir vektorinio fazinio sinchronizmo THG gauti negalima (1.2.2.1 pav., c) [17, 24, 82].

### 1.3. FEMTOSEKUNDINIŲ ŠVIESOS GIJŲ TEORINIS ĮVADAS

#### 1.3.1. Šviesos gijų susidarymas

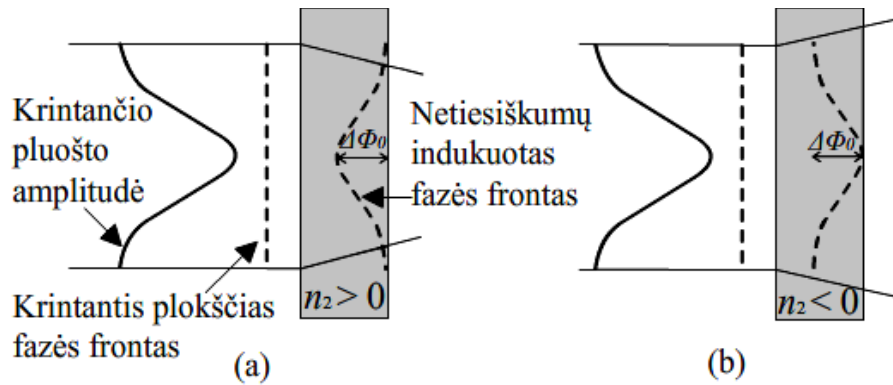
Galingiems femtosekundiniams impulsams sklindant ore, net ir nefokusuojant pluošto, susidaro šviesos gijos, kuriose pluoštas ne difraguoja, o susispaudžia ir sklinda ilgus atstumus neprarasdamas intensyvumo. Tokia šviesos gija ore nusklinda ilgus atstumus (nuo keleto dešimčių metrų iki keleto kilometrų) beveik nedifraguodama, t. y. išlaikydama savo pradinius matmenis. Toks sklidimo būdas pavadintas šviesos gijos susidarymu. Susidarius šviesos gijai yra pasiekama dinaminė pusiausvyra tarp trijų pagrindinių fizikinių procesų – netiesinio fokusavimo, laisvųjų elektronų plazmos defokusavimo ir difrakcijos.

Norėdami suprasti, kaip susidaro šviesos gija, panagrinėkime šviesos pluoštų netiesinio fokusavimo reiškinį. Naudojant galingus femtosekundinės trukmės lazerio impulsus, medžiagos lūžio rodiklis priklauso nuo lazerio pluošto intensyvumo  $I$ . Tada bendras medžiagos lūžio rodiklis  $n$  gali būti išreiškiamas, naudojant tiesinę ir netiesinę lūžio rodiklio dedamąsias  $n_0$  ir  $n_2$ :

$$n = n_0 + n_2 I = n_0 + \Delta n, \quad (1.3.1.1)$$

čia:  $\Delta n$  – lūžio rodiklio pokytis. Lūžio rodiklio kitimas ((1.3.1.1) formulė) nuo šviesos elektrinio lauko stiprio vadinamas optiniu Kero efektu. Vienas iš reiškinų, kurį sąlygoja netiesinis lūžio rodiklis  $n_2$ , yra šviesos pluoštų netiesinis fokusavimas, kai intensyvus šviesos pluoštas trumpam pakeičia medžiagos savybes taip, kad ji tampa lęšiška terpe. Dėl optinio Kero efekto lūžio rodiklio pokytis  $\Delta n$  yra proporcingas intensyvumui  $I$ , todėl  $\Delta n$  priklauso nuo Gauso pluošto erdvinės formos t.y.  $|\Delta n|$  vertės yra didžiausios pluošto centre ir mažėja kraštų link. Jei  $n_2 > 0$  (1.3.1.1 pav. (a)), fazės vėlinimas yra

didžiausias pluošto centre ir netiesinė medžiaga veikia kaip glaudžiamasis lęšis. Jei  $n_2 < 0$  (1.3.1.1 pav. (b)), fazės vėlinimas pluošto centre yra mažiausias, o netiesinė medžiaga veikia kaip sklaidomasis lęšis.



1.3.1.1 pav. Gauso pluošto bangos fronto iškreipimai dėl netiesinės sąveikos, kai medžiagos netiesinis lūžio rodiklis: (a)  $n_2 > 0$ ; (b)  $n_2 < 0$ .  $\Delta\Phi_0$  – maksimalus Gauso pluošto fazių pokytis, atsirandantis dėl netiesinio Kero efekto.

Daugumos medžiagų (įskaitant ir orą)  $n_2 > 0$ , todėl sąveikos metu pluoštas yra fokusuojamas ir šis fokusavimasis atsveria difrakcinę skėstį, jei yra viršijama kritinė spinduliuotės galia, kuri išreiškiama taip:

$$P_{cr} = \frac{\lambda^2}{8n_0n_2}. \quad (1.3.1.2)$$

Tarkim, oro atveju  $P_{cr} \approx 2,9$  GW, kai  $\lambda = 800$  nm, o  $n_2 = 3,2 \times 10^{-19}$  W/cm<sup>2</sup>. Fokusuojamo pluošto intensyvumas didėja, todėl Kero efektas reiškiasi vis stipriau. Dėl netiesinio fokusavimo, didėjant pluošto intensyvumui, pradeda reikštis ir aukštesnių eilių netiesiniai procesai tokie kaip atomų ir molekulių daugiafotonė jonizacija, sąlygojanti laisvųjų krūvininkų ir plazmos atsiradimą. Spinduliuotei pralaidžios plazmos, kurios laisvųjų elektronų tankis  $N(I)$  daug mažesnis už kritinį elektronų tankį  $N_{cr}^{el}$ , lūžio rodiklis lygus:

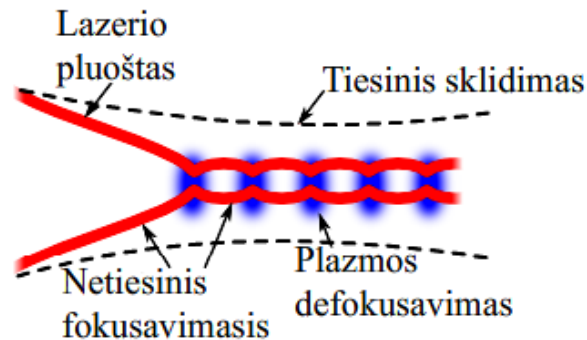
$$n_0 = \sqrt{1 - \frac{N(I)}{N_{cr}^{el}}}, \quad (1.3.1.3)$$

čia:  $N_{cr}^{el} = (\epsilon_0 m_e \omega_0^2) / e^2$  – kritinis plazmos tankis,  $e$  ir  $m_e$  – elektrono krūvis ir masė,  $\omega_0$  – elektromagnetinės spinduliuotės dažnis. Iš (1.3.1.3) formulės seka, kad plazmos lūžio rodiklis  $n_0$  yra mažesnis nei vienetą, todėl ji lazerio pluoštą defokusuoja. Be to, intensyviausia centrinė pluošto dalis dar yra ir slopinama dėl netiesinės sugerties, taigi pluošto diametras vėl padidėja. Jei pluošto galia dar viršija kritinę, po kurio laiko (ar sklidimo atstumo) pluoštas gali vėl imti fokusuotis. Fokusavimosi ir defokusavimosi ciklai kartosis tol, kol dėl energijos nuostolių viso pluošto galia taps mažesnė, nei  $P_{cr}$ . Taigi, iš lazerio pluošto susidaro šviesos gija, nes netiesinio fokusavimosi, plazmos defokusavimo ir difrakcijos procesai periodiškai kinta ir taip kompensuoja vienas kitą (1.3.1.2 pav.). Esant šioms sąlygoms, galioja lygybė:

$$n_2 I - \frac{N(I)}{2N_{cr}^{el}} - \frac{(0.61\lambda)^2}{4\pi n_0 w_0^2} = 0, \quad (1.3.1.4)$$

čia:  $w_0$  – šviesos gijos diametras. Jei pradinio pluošto galia  $P > 5P_{cr}$ , tai nusistovi beveik nekintantis šviesos gijos diametras, kuris yra lygus:

$$w_0 = \sqrt{\frac{2P_{cr}}{\pi I}}. \quad (1.3.1.5)$$



1.3.1.2 pav. Lazerio pluošto šviesos gijos susidarymas, kai pasiekiamas dinaminė pusiausvyra tarp difrakcijos, šviesos pluošto netiesinio fokusavimosi ir laisvųjų elektronų plazmos defokusavimo reiškinių.

Didelės galios impulsas, kurio trukmė  $\tau$ , dujose generuos laisvųjų elektronų plazmą, kurios tankis apytiksliai lygus:

$$N^{el}(I) \approx \sigma_K I^K N_0 \tau, \quad (1.3.1.6)$$

čia:  $K$  – fotonų skaičius reikalingas elektrono išlaisvinimo darbui atlikti (jonizacijai),  $\sigma_K$  –  $K$ -fotonės sugerties koeficientas,  $N_0$  – bendras atomų (jonizuotų ir ne) skaičius tūrio vienetu. Naudojant šį modelį galima įvertinti ir šviesos gijoje pasiekiamą maksimalų intensyvumą:

$$I_{max} \approx \left( \frac{0.76n_2 N_{cr}^{el}}{\sigma_K \tau N_0} \right)^{1/(K-1)}. \quad (1.3.1.7)$$

Tarkim, oro atveju  $I_{max} \approx 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , kai  $\lambda = 800 \text{ nm}$ ,  $\tau = 100 \text{ fs}$ ,  $K = 8$ ,  $\sigma_8 = 2.81 \cdot 10^{-96} \text{ cm}^{16}/(\text{W}^8\text{s})$ ,  $N_0 = 2.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ,  $N_{cr}^{el} = \frac{\varepsilon_0 m_e \omega_0^2}{e^2} = 1.7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ,  $n_2 = 3.2 \cdot 10^{-19} \text{ W/cm}^2$ . Įstatę  $I_{max} \approx 10^{13} \text{ W/cm}^2$  ir  $P_{crit} \approx 3 \text{ GW}$  vertes į (1.3.1.5) išraišką, gauname, kad nusistovėjęs ore susidariusios šviesos gijos diametras yra apie  $100 \mu\text{m}$ . Tada įrašę (1.3.1.7) į (1.3.1.6) gauname maksimalaus galimo elektronų tankio išraišką:

$$N_{max}^{el} \approx \sigma_K (I_{max})^K N_0 \tau \approx \sigma_K \left( \frac{0.76n_2 N_{cr}^{el}}{\sigma_K \tau N_0} \right)^{K/(K-1)} N_0 \tau. \quad (1.3.1.8)$$

Jei  $N_{max}^{el} < N_{cr}$ , tai plazma yra skaidri. Priešingu atveju plazma nepraleidžia naudojamo  $\lambda$  bangos ilgio šviesos. Tarkim, oro atveju  $N_{max}^{el}(I_{max}) \approx 5.4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , kai  $\lambda = 800 \text{ nm}$ , o  $\tau = 100 \text{ fs}$ . Naudojant gautą  $N_{max}^{el}(I_{max}) \approx 5.4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  vertę, galime įvertinti ir plazmos dažnį, kuris išreiškiamas:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{N(I)e^2}{\varepsilon_0 m_e}}. \quad (1.3.1.9)$$

Taigi gauname, kad  $\omega_p \approx 4.2 \text{ THz}$ , todėl  $800 \text{ nm}$  bangos ilgio spinduliuotei, kurios  $\omega \approx 2.3 \cdot 10^3 \text{ THz}$ , susidariusi oro plazma yra skaidri, nes  $\omega > \omega_p$ .

Susidarant šviesos gijai, be minėtų reiškinių taip pat reikia atsižvelgti ir kitus netiesinius procesus, tokius, kaip laisvųjų elektronų plazmos generavimas dėl daugiafotonės ar tunelinės sugerties, šviesos impulsų fazės moduliavimasis bei grupinių greičių dispersija [3, 17, 24, 82].



### 1.3.2. Lazerio impulsų fazės moduliavimasis ir kryžminė fazės moduliacija

Šviesos gijų susidarymo metu smarkiai išplinta sąveikaujančios spinduliuotės dažnių spektras. Šį plitimą sąlygoja tokie netiesiniai procesai, kaip laisvųjų elektronų plazmos generavimas, impulsų fazinė moduliacija (angl. *Self-Phase Modulation* – SPM) bei kryžminė fazinė moduliacija (angl. *Cross-Phase Modulation* – XPM)

Lazerio impulsų fazės moduliavimosi reiškinys yra pluoštų netiesinio fokusavimo laikinis analogas, dėl kurio šviesos gijų susidarymo metu smarkiai išplinta spinduliuotės dažnių spektras. Lazerio impulsui netiesinėje terpėje nusklidus atstumą  $L$ , atsiranda jo fazės pokytis, kuris aprašomas taip:

$$\Delta\phi(t) = -\frac{\omega_0}{c} n_2 I_0(t) L. \quad (1.3.2.1)$$

Priminsiu, jog dažnis yra laikinė fazės išvestinė, todėl jo pokytis gali būti išreiškiamas taip:

$$\Delta\omega(t) = \frac{\partial(\Delta\phi)}{\partial t} = -\frac{\omega_0}{c} n_2 \frac{\partial I_0(t)}{\partial t} L, \quad (1.3.2.2)$$

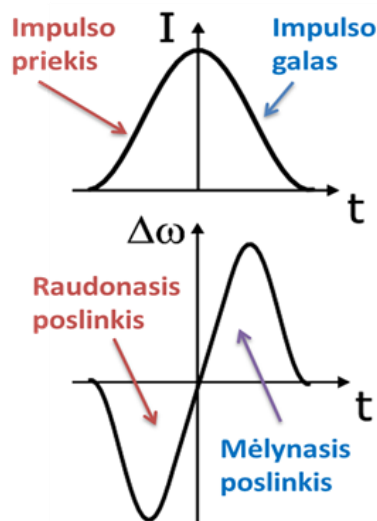
čia:  $L$  - sąveikos ilgis,  $\omega_0$  – spinduliuotės centrinis dažnis,  $I_0(t) = I_0 e^{-2(t/\tau)^2}$  – Gauso laikinės formos intensyvumo skirstinys,  $\tau$  – lazerio impulso trukmė. Kadangi dažnio pokytis (1.3.2.2 lygtis) yra proporcingas intensyvumo laikinei išvestinei, tai impulso priekinis frontas patiria raudonąjį spektrinį poslinkį ( $t > 0$ ). Impulso priekyje šviesos intensyvumas didėja, todėl fazė dėl teigiamos laikinės išvestinės yra vėlinama ir bangos ilgis didėja (o dažnis mažėja, 1.3.2.1 pav.). Impulso galinis frontas ( $t > 0$ ) atitinkamai patiria mėlynąjį spektrinį poslinkį. Toks lazerio impulsas vadinamas faziškai moduluotu (čirpuotu).

Netiesinėje terpėje sklindant dviem persiklojančioms elektromagnetinėms bangoms be savaiminio fazės moduliavimosi reiškinio stebimas ir kryžminės fazinės moduliacijos efektas. Esant šioms sąlygoms, faziniai poslinkiai dviem sąveikaujančioms bangoms išreiškiami taip:

$$\Delta\phi_1 = \frac{\omega_1 n_2}{c} (I_1 + 2I_2)L, \quad (1.3.2.3)$$

$$\Delta\phi_2 = \frac{\omega_2 n_2}{c} (I_2 + 2I_1)L, \quad (1.3.2.4)$$

čia indeksai 1 ir 2 atitinkamai žymi pirmąją ir antrąją sąveikaujančias bangas.



1.3.2.1 pav. Pluošto intensyvumo  $I$  ir dažnio pokyčio laikiniai kitimai, atitinkantys dažnio moduliaciją.

Jei intensyvumas  $I_2$  yra daug mažesnis nei  $I_1$ , tai (1.3.2.3–4) lygtyse galime atmesti nari, proporcingą  $I_2$ . Tada pirmosios bangos fazinis poslinkis bus dėl fazinio moduliavimo, o antrosios – dėl kryžminės fazinės moduliacijos.

THG atveju kryžminė fazinė moduliacija paprastai pasireiškia tik trečios harmonikos šviesos pluoštui. Tokios moduliacijos fazinis poslinkis užrašomas taip:

$$\Delta\phi_{3H} = \frac{3\omega_{1H} n_2^{XPM}}{c} (2I_{1H})L, \quad (1.3.2.4)$$

čia:  $3\omega_{1H} = \omega_{3H}$ ,  $n_2^{XPM}$  – kryžminės fazinės moduliacijos tarp pirmos ir trečios harmonikos pluoštų netiesinis lūžio rodiklis,  $I_{1H}$  – pirmosios harmonikos pluošto intensyvumas [17, 54-66].

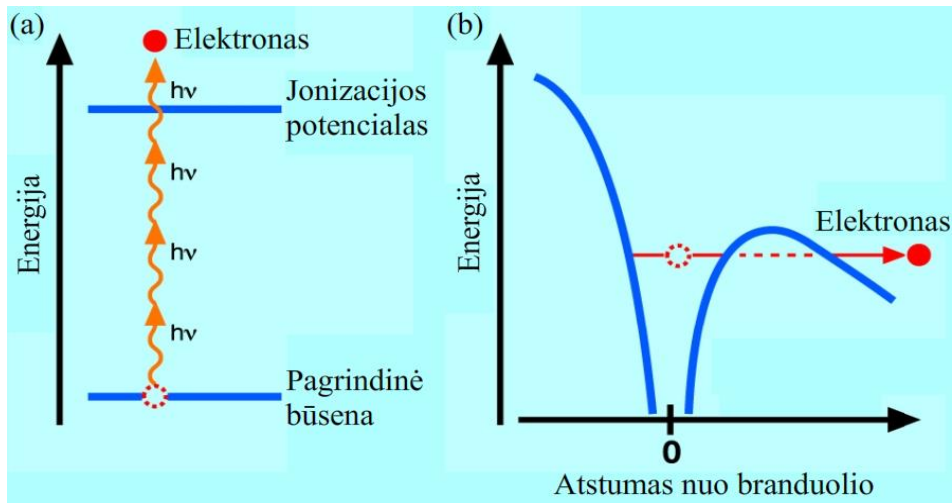
### 1.3.3. Spektro plitimas dėl pluošto sąveikos su plazma

Norint aptarti spektro plitimą elektronų plazmoje, pradžioje panagrinėkime, koks fizikinis mechanizmas sąlygoja laisvųjų elektronų plazmos atsiradimą šviesos gijose. Didėjant spinduliuotės intensyvumui, visose skaidriose medžiagose didėja tikimybė, kad vienu metu bus sugerta daugiau nei vienas fotonas. Jei vienu metu iš pagrindinės sistemos būsenos į sužadintąją per virtualų lygmenį sugeriami daugiau nei vienas fotonas, procesas vadinamas daugiafotone sugertimi (1.3.3.1 pav. (a)). Fotonai turi ateiti vienu metu, nes virtualaus lygmens gyvavimo trukmė labai trumpa, todėl daugiafotonė sugertis priklauso nuo spinduliuotės intensyvumo  $I$  (dvifotonės sugerties atveju sugerties koeficientas proporcingas  $I^2$ , trifotonės sugerties atveju –  $I^3$  ir t. t.). Elektronas yra išlaisvinamas, jei bendra sugertų fotonų energija viršija medžiagos jonizacijos potencialą (tada vyksta daugiafotonė jonizacija). Šis procesas dominuoja, kai vieno fotono dažnis ir energija yra pakankamai dideli, o spinduliuotės intensyvumas mažas. Jei fotono dažnis yra mažas, o spinduliuotės intensyvumas didelis, tada vyksta elektronų tuneliavimas (1.3.3.1 pav. (b)), kai stiprus spinduliuotės elektrinis laukas iškreipia potencinę duobę, laikančią elektroną prie atomo. Taip sudaromos sąlygos, kurios leidžia elektronui tuneliuoti pro potencinį barjerą. Būna ir tarpinis režimas, kai elektronas sugeria keletą fotonų ir tada tuneliuoja. Priklausomai nuo medžiagos ir spinduliuotės parametrų, koks fizikinis mechanizmas lemia laisvųjų krūvininkų generavimą, nusako Keldyšo parametras, kuris išreiškiamas taip:

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m_e c n_0 \varepsilon_0 E_g}{I}}, \quad (1.3.3.1)$$

čia  $E_g$  yra dujų jonizacijos potencialas. Jei  $\gamma > 1,5$ , vyksta daugiafotonė sugertis; jei  $\gamma < 1,5$ , vyksta tuneliavimas; jei  $\gamma \approx 1,5$ , būna tarpinis režimas. Pvz., oro šviesos gijose, kai  $\lambda = 800 \text{ nm}$ ,  $I = I_{max} \approx 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ,  $E_g =$

12,063 eV (deguonies jonizacijos potencialas), todėl  $\gamma \approx 2,8$  ir plazmos laisvieji krūvininkai yra generuojami dėl daugiafotonės sugerties.



1.3.3.1 pav. Energijos lygmenų diagramos, vaizduojančios jonizacijos režimus, kai vyksta: (a) daugiafotonė sugertis ir (b) tuneliavimas.

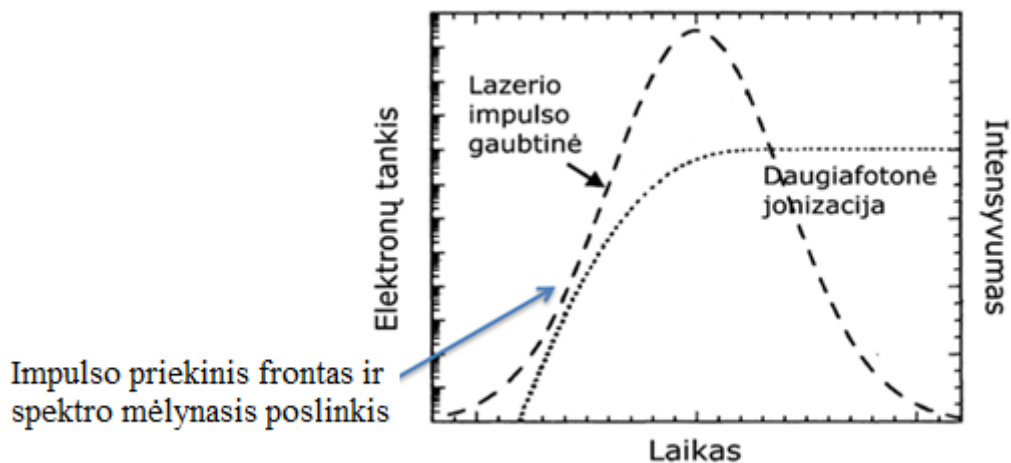
Jei Keldyšo parametras  $\gamma > 1,5$  ir vyksta daugiafotonė sugertis, laisvųjų plazmos elektronų tankio kitimas aprašomas taip:

$$\frac{dN^{el}}{dt} = N_0 \sigma_K I^K. \quad (1.3.3.2)$$

Šviesos impulso fazės ir dažnio pokyčiai proporcingi medžiagos lūžio rodiklio pokyčiui  $n_2 I_0(t)$  ((1.3.2.1–2) lygtys). Iš (1.3.1.3) formulės seka, kad plazmos lūžio rodiklis  $n_0 < 1$ , o  $n_2 < 0$ , todėl lazerio impulso priekinis frontas patirs mėlynąjį spektrinį poslinkį. Plazmos lūžio rodiklis  $n_0$  priklauso nuo plazmos dažnio  $\omega_p$  ((1.3.1.9) lygtis), kuris proporcingas  $N(I)$ , todėl plazmos elektronų sąlygojamas šviesos pluošto spektro mėlynasis poslinkis yra proporcingas elektronų tankio kitimui ((1.3.3.2) lygtis) ir gali būti išreikštas taip:

$$\Delta\lambda = -\frac{e^2 L \lambda_0}{2\pi m_e c^3} \frac{dN^{el}}{dt}, \quad (1.3.3.3)$$

čia:  $\Delta\lambda$  – bangos ilgio pokytis,  $\lambda_0$  – centrinis pluošto bangos ilgis,  $L$  – sąveikos ilgis.



1.3.3.2 pav. Lazerio impulso Gauso laikinė forma ir elektronų tankio kitimas.

Naudojant trumpus femtosekundinius impulsus, elektronų tankio pokyčiai yra tik impulso priekiniame fronte (1.3.3.2 pav.), kai vyksta laisvųjų elektronų generavimas, todėl tik impulso priekinė dalis patiria mėlynąjį spektrinį poslinkį. Tuo tarpu lazerio impulso galinėje dalyje laisvieji krūvininkai nespėja rekombinuoti, todėl čia spektrinių pokyčių nėra [17, 24, 54-59, 82].

### 1.3.4. Grupinių greičių nederinimas ir dispersija

Femtosekundinės trukmės lazerio impulsams šviesos gijose generuojant optines harmonikas, reikia atsižvelgti į tai, kad skirtingų bangos ilgių lazerio impulsai ir jų komponentai terpėje sklinda skirtingais grupiniais greičiais. Dėl šių priežasčių sumažėja optinių harmonikų generavimo efektyvumas, kai pasireiškia grupinių greičių nederinimas (GGN) ir dispersija (GGD). Dėl tų pačių reiškinių mažėja ir sąveikos ilgis kryžminės fazės moduliacijos atveju (1.3.2 skyrelis).

Lazerio impulso grupinis greitis  $v_g$ , priklauso nuo dažnio ir aprašomas taip:

$$v_g(\omega) = \left. \frac{d\omega}{dk} \right|_{\omega_0} = c \left[ n - \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \right]^{-1}, \quad (1.3.4.1)$$

čia  $\omega_0$  ir  $\lambda_0$  yra lazerio impulso centrinis dažnis ir bangos ilgis. Dviem skirtingo dažnio lazerio impulsams nusklidus tam tikrą atstumą, jie fiziškai išsiskiria ir nebesąveikauja. Šis atstumas vadinamas grupinių greičių nederinimo ilgiu ir yra užrašomas taip:

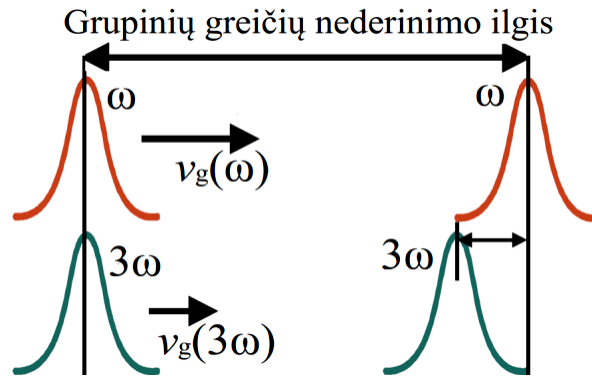
$$L_v = \left| \frac{\tau}{\frac{1}{v_g(\omega_1)} - \frac{1}{v_g(\omega_2)}} \right|, \quad (1.3.4.2)$$

čia:  $\tau$  – impulso trukmė,  $v_g(\omega_1)$  ir  $v_g(\omega_2)$  – impulsų grupiniai greičiai, atitinkantys centrinius dažnius  $\omega_1$  ir  $\omega_2$ . Atstumas  $L_v$  mažėja, mažėjant impulso trukmei  $\tau_0$  ((1.3.4.2) lygtis) bei mažėjant bangos ilgiui, nes tokiu atveju didėja terpės dispersija. Grupinių greičių nederinimo reiškinys THG atveju pavaizduotas 1.3.4.1 paveikslėlyje. Pirmosios ir trečiosios harmonikų impulsai skinda vienodais faziniais greičiais dėl fazinio sinchronizmo sąlygų, tačiau skiriasi jų grupiniai greičiai (TH impulsas yra lėtesnis), todėl TH impulso trukmė didėja.

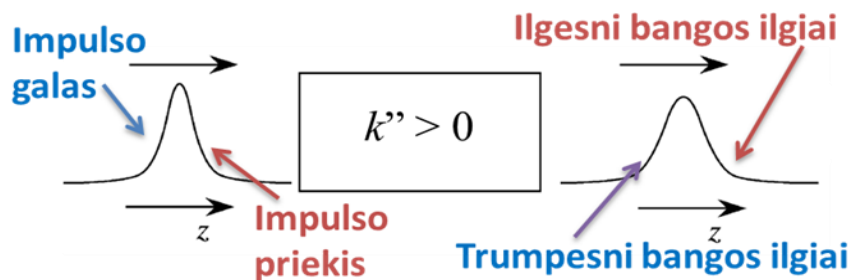
Femtosekundinių impulsų atveju reikia atsižvelgti ir į tai, kad netiesinėje dispersinėje terpėje plataus spektro impulsas ilgėja, kai dėl dispersinio plitimo išsifazuoja jo spektriniai komponentai. Apibūdinant šį reiškinį, naudojamas kitas parametras – dispersinis ilgis, t. y. atstumas, kuriame Gauso formos lazerio impulso trukmė padidėja  $\sqrt{2}$  karto. Dispersinis ilgis aprašomas taip:

$$L_{disp} = \frac{\tau^2}{2|d^2k/d\omega^2|} = \frac{\tau^2}{2|k''|}, \quad (1.3.4.3)$$

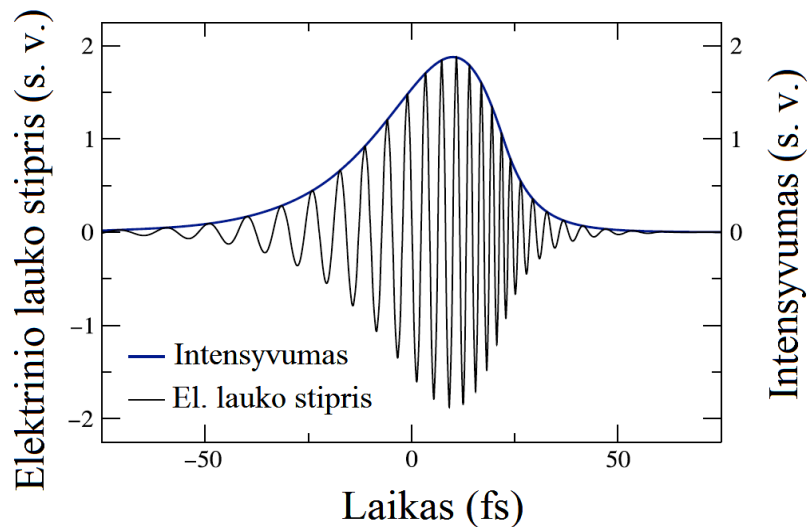
čia  $k'' = d^2k/d\omega^2$  yra grupinių greičių dispersijos koeficientas.



1.3.4.1 pav. Pirmosios ir trečiosios harmonikų impulsų grupinių greičių nederinimas.



(a)



(b)

1.3.4.2 pav. (a) Lazero impulso plitimas, esant normaliajai grupinių greičių dispersijai ( $k'' > 0$ ). (b) Spinduliuotės elektrinio lauko stiprio ir intensyvumo laikinės priklausomybės, impulsui sklindant dispersinėje terpėje ( $k'' > 0$ ), kai vyksta fazės moduliavimosi ir grupinių greičių dispersijos reiškiniai.

Femtosekundiniams impulsams sklindant medžiagoje, pasižyminčiose normaliaja grupinių greičių dispersija ( $k'' > 0$ ), trumpesni bangos ilgiai yra

vėlinami, o ilgesni atsiranda impulso priekyje (1.3.4.2 pav., a). Tokiu būdu grupinių greičių dispersija sąlygoja impulsų dažnių komponentių laikinį atsiskyrimą (1.3.4.2 pav., b) [17, 24, 102, 83].

#### 1.4. TREČIOSIOS HARMONIKOS GENERAVIMAS ŠVIOSOS GIJOSE

Kaip buvo rašoma 1.2.2 skyrelyje, fokusuojant Gauso pluoštą ((1.2.2.9) lygtis), THG signalas lygus nuliui, kai  $\Delta k \leq 0$  (fazinio sinchronizmo ( $\Delta k = 0$ ) atveju ir normaliosios dispersijos srityje ( $n_3 > n_1$ )), nes, kai žadinimo pluoštas kerta židinio plokštumą, atsiranda Gauso pluošto Guoji fazės  $\Phi$  poslinkis, lygus  $\pi$ , todėl generuojamos TH bangos prieš ir už židinio interferuoja destruktiviai. Tačiau pastebėta, kad fokusuojant Gauso pluoštą ir normaliosios optinės dispersijos srityje THG visgi vyksta, kai pluošto galia viršija kritinę galią ((1.3.1.2) lygtis), reikalingą netiesinio fokusavimosi reiškiniui, ir susiformuoja šviesos gija, todėl yra generuojama centrinė ir kūginė TH dalys [1, 2].

Taigi, siekiant išsiaiškinti priežastis, kodėl normaliosios dispersijos srityje dėl netiesinių optinių reiškinių generuojama TH, yra naudojamos lygtys, kurias pasiūlė F. Théberge su bendraautoriais [1, 2]. Šiame teoriniame modelyje be THG aprašomi ir kiti netiesiniai reiškiniai, tokie, kaip netiesinis pluoštų fokusavimasis, plazmos generavimas, impulsų fazės moduliavimasis, grupinių greičių nederinimas ir dispersija. 1.2.2 skyrelyje aprašytas teorinis modelis ((1.2.2.9) lygtis) neįvertina visų netiesinių femtosekundinių lazerio impulsų ir oro sąveikų ir tinkamai neaprašo lazerio spinduliuotės sklidimo bei jos ir TH erdvių, spektrinių ir energinių charakteristikų. Siekiant įvertinti šias charakteristikas bei trečios eilės netiesines sąveikas, įvedama koordinačių sistema, judanti grupiniu greičiu  $v_g(\omega)$  ( $t = t' - z/v_g(\omega)$ ), o lygtys užrašomos taip:



$$\begin{aligned} \frac{\partial A_1}{\partial z} &= \frac{i}{4} \nabla_T^2 A_1 - i \frac{L_d}{4L_{disp1}} \frac{\partial^2 A_1}{\partial t^2} - \frac{L_d}{L_{abs1}} |A_1|^{2K_1-2} A_1 \\ &+ i \frac{L_d}{L_{NL}} (|A_1|^2 A_1 + A_1^{*2} A_3 + 2|A_3|^2 A_1) - i \frac{L_d}{L_{Pl}} N_e A_1, \end{aligned} \quad (1.4.1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_3}{\partial z} &= \frac{i}{12} \nabla_T^2 A_3 - i \frac{L_d}{4L_{disp3}} \frac{\partial^2 A_3}{\partial t^2} - \frac{L_d}{L_{abs3}} |A_3|^{2K_3-2} A_3 \\ &+ i \frac{3L_d}{L_{NL}} \left( |A_3|^2 A_3 + \frac{A_1^2}{3} + 2|A_1|^2 A_3 \right) - i \frac{L_d}{3L_{Pl}} N_e A_3 \\ &- \frac{L_d}{L_v} \frac{\partial A_3}{\partial t} + i \frac{L_d}{L_{\Delta k}} A_3 - i \frac{L_d}{L_{Pl}} N_e A_1, \end{aligned} \quad (1.4.2)$$

čia: indeksai 1 ir 3 atitinkamai žymi pirmąją ir trečiąją harmonikas, skersinės koordinatės  $x$  ir  $y$  normuojamos į pradinį pluošto spindulį ( $1/e^2$  lygyje)  $\rho$ , laikas  $t$  – į impulso trukmę  $\tau$  (pusė smailės pločio  $1/e^2$  lygyje), o sklidimo atstumas  $z$  – į difrakcijos ilgį  $L_d = k_1 \rho^2 / 2$ . Be to,  $k_1 = n_1 2\pi / \lambda_1 = n_1 k_0$  ir  $k_3 = 3n_3 k_0$  – banginiai vektoriai,  $n_1$  ir  $n_3$  yra pirmosios ir trečiosios harmonikų tiesiniai lūžio rodikliai,  $\lambda_1 = 2\pi c / \omega_1 = 800$  nm – pirmosios harmonikos bangos ilgis.  $A_1$  ir  $A_3$  – elektrinio lauko gaubtinės funkcijos, normuotos į maksimalią vertę  $A_0 = \sqrt{2P_0 / \pi \rho^2}$ .  $f$  – lęšio židinio nuotolis.  $L_{disp1,3} = \tau^2 / (2k_{1,3}''')$  yra dispersinis ilgis, o grupinių greičių dispersijos koeficientai lygūs:  $k_1''' = \left. \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right|_{\omega_1} = 0,2$  fs<sup>2</sup>/cm ir  $k_3''' = \left. \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right|_{\omega_3} = 1$  fs<sup>2</sup>/cm (čia ir toliau pateiktos koeficientų vertės yra skirtos orui). Grupinių greičių nederinimo ilgis lygus:  $L_v = \tau / v = \tau [v_g^{-1}(\omega_3) - v_g^{-1}(\omega_1)]^{-1}$ , čia  $v_g(\omega)$  yra grupinis greitis, o  $v^{-1} = 0,4$  cm/fs. Fazės nederinimo ilgis  $L_{\Delta k} = 1 / \Delta k$ , čia  $\Delta k = 3k_1 - k_3 = \frac{6\pi}{\lambda_1} (n_1 - n_3) = 3k_0 (n_1 - n_3) = -5,268$  cm<sup>-1</sup> yra bangos vektorių nederinimas. Netiesinės sąveikos ilgis  $L_{NL} = 1 / (n_2 I_0 k_1)$ , čia  $n_2 = 8 \cdot 10^{-23}$  m<sup>2</sup>/W yra netiesinis lūžio rodiklis, kai  $\lambda_1 = 800$  nm,  $I_0 = |A_0|^2 = E / (\rho \tau)^2 \cdot 2\sqrt{2} / (\pi \sqrt{\pi})$ , – maksimalus pirmosios harmonikos intensyvumas, kai jos impulsų energija yra  $E$ . Sugerties ilgis  $L_{abs1,3} = 2 / (\beta_{K1,3} K_{1,3} \hbar \omega_1 I_0^{K_{1,3}-1} N_0)$ , čia:  $K_{1,3}$  – fotonų skaičius, reikalingas elektrono

išlaisvinimo darbui (jonizacijai) atlikti ( $K_1 = 8$  ir  $K_3 = 3$ ),  $\beta_{K_1} = 2.81 \cdot 10^{-96} \cdot 10^{-4K_1} (\text{cm}^2/\text{W})^{K_1} \text{s}^{-1}$ ,  $\beta_{K_3} = 1.35 \times 10^{-28} \times 10^{-4K_3} (\text{m}^2/\text{W})^{K_3} \text{s}^{-1}$ ,  $N_0 = 0,21N_{air}$  ir  $N_{air} = 2,5 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-3}$  – bendras deguonies ir oro atomų (jonizuotų ir ne) skaičius tūrio vienetė,  $\hbar$  – Planko konstanta. Netiesinės sugerties koeficientai  $\gamma_{1,3} = \beta_{K_{1,3}} I_0^{K_{1,3}} \tau$ . Plazmos ilgis  $L_{Pl} = N_{Pl}/(k_1 N_0)$ , čia  $N_{Pl} = 1,8 \cdot 10^{27} \text{m}^{-3}$ . Laisvųjų plazmos elektronų tankio laikinis kitimas dėl deguonies  $\text{O}_2$  ir azoto  $\text{N}_2$  molekulių daugiafotonės sugerties išreiškiamas tokia lygtimi:

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = (0.2\gamma_1 |A_1|^{2K_1} + 0.8\gamma_{N_2} |A_1|^{2K_{N_2}})[1 - N_e], \quad (1.4.3)$$

čia:  $K_{N_2} = 11$ ,  $\gamma_{N_2} = \beta_{N_2} I_0^{K_{N_2}} \tau$ ,  $\beta_{N_2} = 6.31 \cdot 10^{-140} (\text{cm}^2/\text{W})^{K_{N_2}} \text{s}^{-1}$ . Tada kraštinės sąlygos užrašomos taip:

$$A_{10}(t) = \exp(-\rho^2 - t^2) \exp\left(-i \frac{L_d}{f} x^2\right), \quad (1.4.4)$$

$$A_{30}(t) = 0. \quad (1.4.5)$$

Elektrinio lauko gaubtinės funkcijos  $A_1$  ir  $A_3$  kinta priklausomai nuo sklidimo atstumo  $z$  ((1.4.1–2) lygčių kairėje pusėje esantys nariai), nes veikia įvairūs efektai, aprašomi (1.4.1–2) lygčių dešinėje pusėje esančiais nariais, kurie paeiliui (iš kairės į dešinę) yra:

1. Pluošto skėstis dėl difrakcijos.
2. Laikinis impulso plitimas dėl grupinių greičių dispersijos.
3. Nuostoliai dėl netiesinės sugerties.
- 4-6. Skliaustuose esantys trys nariai aprašo trečios eilės netiesines sąveikas (netiesinis pluoštų fokusavimas bei spektro plitimas dėl fazės moduliavimo ir dėl kryžminės fazės moduliacijos (tarp pirmosios ir trečiosios harmonikų)).
7. Laisvųjų elektronų, kuriuos generuoja aprašomo dažnio šviesa, plazmos įtaka (pluošto defokusavimas ir mėlynasis spektrinis poslinkis).  
TH atveju prisideda dar trys nariai, aprašantys šiuos reiškinius:
8. Pirmosios ir trečiosios harmonikų grupinių greičių nederinimas.

9. Pirmosios ir trečiosios harmonikų bangos vektorių nederinimo įtaka THG faziniam sinchronizmui.

10. Laisvųjų elektronų, kuriuos generuoja pirmoji harmonika (nes jos įtaka didesnė dėl didelio intensyvumo), plazmos įtaka (pluošto defokusavimas ir mėlynasis spektrinis poslinkis).

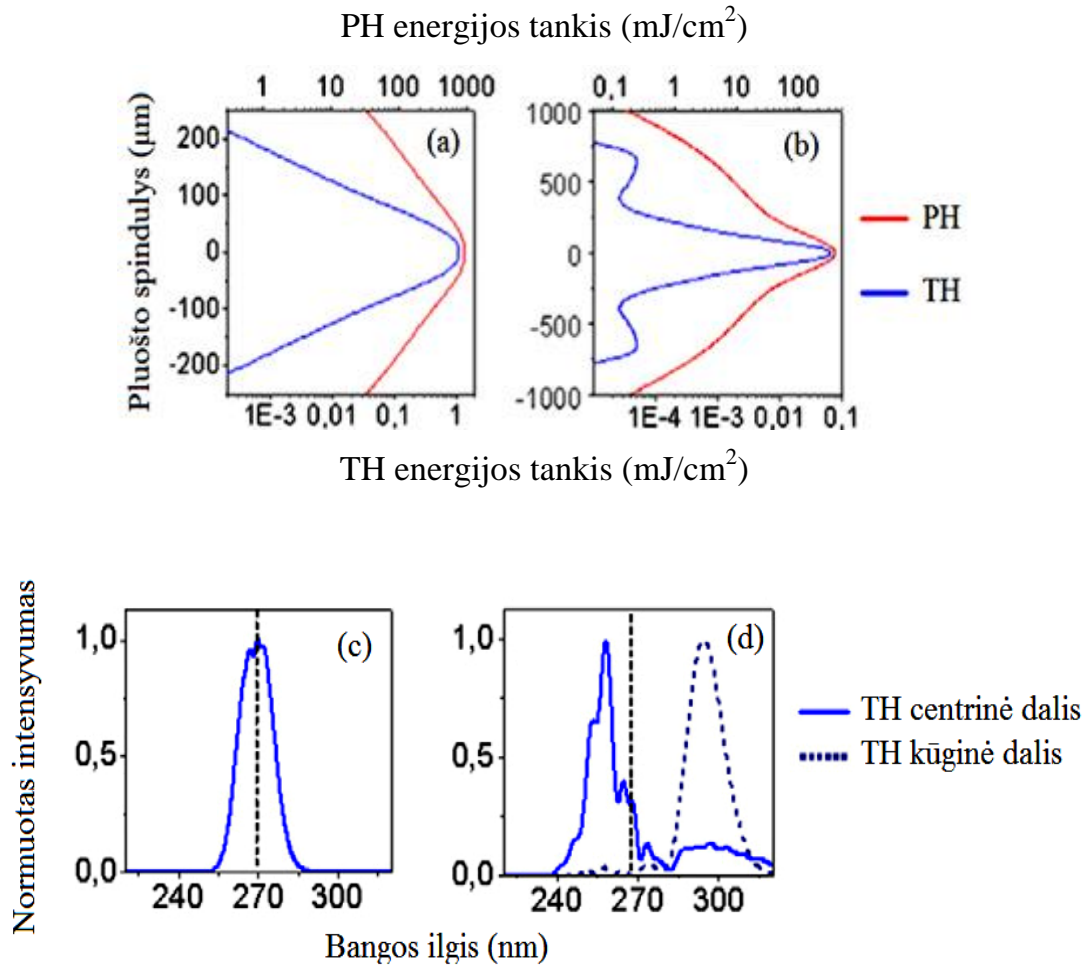
Esant fiksuotam sklidimo atstumui  $z$  ir naudojant (1.4.1–5) lygčių sistemą, skaitmeniškai randamos elektrinio lauko gaubtinės  $A_{1,3}(x, t)$ . Tada pirmosios ir trečiosios harmonikų impulsų spektrinis pasiskirstymas surandamas  $A_{1,3}(x = \text{const}, t)$  atlikus Furjė transformaciją:

$$|A_{1,3}(\omega)|^2 = \left| \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} A_{1,3}(x = \text{const}, t) e^{-i\omega_{1,3}t + i\omega t} dt \right|^2. \quad (1.4.6)$$

Naudojant elektrinio lauko funkcijas  $A_{1,3}(x = 0, t)$ , apskaičiuojami centrinės pluošto dalies spektrai, o su  $A_3(x = \rho_{\text{kūg}}, t)$  – TH pluošto kūginės dalies spektrai ( $\rho_{\text{kūg}}$  yra kūgio žiedo spindulys) [1, 2].

Teorinė THG ore analizė atlikta, naudojant (1.4.1–5) lygčių sistemą. Rezultatai yra pavaizduoti 1.4.1 paveikslėlyje, kai impulsų smailinė galia  $P_{SM} > P_{cr}$ . PH ir TH erdviniai spektrai (1.4.1 pav., a) rodo, kad prieš židinį (šviesos gijos pradžioje) yra generuojama tik centrinė TH pluošto dalis, kurios bangos ilgis nėra pasislinkęs (1.4.1 pav., c). Kadangi visoje šviesos gijoje yra beveik nekintantis intensyvumas, tai beveik nekintanti ir lūžio rodiklio pokyčiai dėl netiesinio lūžio rodiklio (Kerro efektas), t. y., dėl PH pluošto kryžminės fazinės moduliacijos, kuri veikia TH pluoštą, TH spinduliuotei atsiranda pastovus lūžio rodiklio pokytis ((1.3.2) skyrelis). Dėl šių priežasčių PH ir TH pluoštams lūžio rodikliai tampa beveik vienodi, o PH ir TH impulsų sklidimo greičiai tampa beveik lygūs ir pastovūs, o jų fazės skirtumas yra taip pat pastovus, t. y. neatsiranda Guoji fazės poslinkis, lygus  $\pi$ , dėl kurio nevyko THG. Šis mechanizmas yra vadinamas netiesiniu fazių surišimu (angl. *nonlinear phase-locking*) ir dėl jo susidaro tinkamos sąlygos generuoti ašinę (centrinę) TH dalį (1.4.1 pav., a, c) [4]. Dėl šių priežasčių susiformuoja dviejų

spalvų šviesos gija (angl. *two-color filament*), nes PH ir TH impulsai sklinda kartu, o jų suformuotos šviesos gijos sąveikauja tarpusavyje [4, 23].



1.4.1 pav. (a, b) PH ir TH energijos srautų erdviniai skirstiniai. (c, d) TH pluošto centrinės ir kūginių dalių spektrai. Duomenys gauti, esant skirtingiems pluošto sklidimo atstumams  $z$ : (a, c) 20 cm prieš židinį ( $z = 80$  cm) ir (b, d) 10 cm už židinio ( $z = 110$  cm), kai lęšio židinio nuotolis  $f = 100$  cm. Naudoti Gauso formos PH pluošto parametrai yra tokie: bangos ilgis  $\lambda_1 = 807$  nm, impulsų trukmė  $\tau_{FWHM} = 40$  fs, pradinis spindulys  $\rho = 2$  mm, kritinė galia  $P_{cr} = \sim 4$  GW, o impulsų smailinė galia  $P_{SM} = 2,5P_{cr}$ . Vertikali brūkšninė linija (c) ir (d) paveikslėliuose žymi centrinę TH bangos ilgį ( $\lambda_1/3$ ) [1, 2].

Už židinio (bei už šviesos gijos) TH pluošto erdviniai skirstiniai turi dvi dalis: centrinę ir kūginę, sklindančią kampu optinės ašies atžvilgiu (1.4.1

pav., b). TH pluošto spektrai (1.4.1 pav., d) rodo, kad kūginės TH dalies centrinis bangos ilgis yra pasislinkęs į ilgesnių bangų pusę, o centrinės dalies – į trumpesnių bangų sritį [1, 2]. Taigi, šviesos gijos pradžioje susiformavus plazmai, dėl jos elektronų įtakos PH ir TH impulsų galinės dalys patiria spektrinį poslinkį į trumpesnių bangos ilgių sritį bei difraguoja, todėl PH ir TH impulsų galai tampa panašūs į „sparnų“ formą. Toliau sklindant PH impulsui šviesos gijoje, jo galinė dalis, kuri difragavo dėl sąveikos su elektronų plazma, pradeda generuoti atskirą TH. Be to, šviesos gijos gale šis PH impulso galas dėl netiesinio Kerro efekto susifokusuoja, o tai lemia impulso skilimą į du sub-impulsus. Dėl šių priežasčių už šviesos gijos sklinda centrinė TH pluošto dalis, kurios spektras yra pasislinkęs į trumpesnių bangų sritį (1.4.1 pav., d). Kita vertus, šviesos gijoje TH impulso priekis difraguoja, nes TH erdviniam skirtinyje atsiranda status erdvinis TH profilio gradientas, todėl ši spinduliuotė yra besiformuojančios TH kūginės dalies pagrindas. Jos spektras yra pasislinkęs į ilgesnių bangų pusę (1.4.1 pav., d), nes efektyviausia THG vyksta PH impulso priekyje, kur dėl fazės moduliavimosi atsiranda spektrinis poslinkis į ilgesnių bangų sritį. Šiuo atveju TH generuoja jau padidėjusio bangos ilgio PH komponentės, todėl atitinkamai padidėja ir TH bangos ilgis. Nėgana to, kadangi TH impulsas yra pačiame PH impulso priekyje, PH indukuota kryžminė fazės moduliacija dar labiau padidina TH spektro poslinkį į ilgesnių bangų sritį. Priekinė TH impulso dalis dėl statuso erdvinio gradiento difrakcijos generuoja TH kūginę spinduliuotę (1.4.1 pav., b) [1, 2].

Kadangi šiame skyrelyje aptartas teorinis modelis ((1.4.1–5) lygčių sistema) [1, 2] gerai paaiškina tiek THG, tiek PH bei TH erdvines ir spektrines charakteristikas, jis bus naudojamas ir TH erdvinių, spektrinių savybių tyrimų, aprašytų 2-ame skyriuje, analizei.

## 1.5 FEMTOSEKUNDINIŲ LAZERIO IMPULSŲ LAIKINIO CHARAKTERIZAVIMO METODAI

Tiriant reiškinius su laikine skyra, matavimams naudojami metodai pagrįsti procesais, greitesniais, nei tiriamieji reiškiniai. Tarkim, lazerio impulsų laikinėms charakteristikoms tirti plačiausiai taikomi optoelektroniniai detektoriai, kai jų atsako trukmė yra kur kas mažesnė nei tiriamo lazerio impulso trukmė. Tačiau optoelektroninių prietaisų mažiausios atsako trukmės yra kelių šimtų femtosekundžių eilės, todėl, tiriant itin trumpų femtosekundinių lazerio impulsų laikines charakteristikas, šios optoelektroninės metodikos nėra tinkamos. Todėl femtosekundinių lazerio impulsų atveju taikomi netiesioginiai registravimo metodai, kurie remiasi koreliaciniais matavimais. Taip naudojant koreliacinius metodus, detektoriaus atsako trukmės gali būti ir kur kas didesnė nei tiriamo lazerio impulso trukmė. Be to, taikant tokias matavimo metodikas tyrimų metu būna registruojamos lazerio impulsų koreliacinės funkcijos, kurioms pritaikius matematikos transformacijas, galima gauti tiek lazerio laikinę formą, tiek ir trukmę. Šiuo metu tokiai femtosekundinių impulsų diagnostikai plačiausiai naudojamos antrosios eilės lazerio impulsų intensyvumo autokoreliacinės funkcijos, registruojamos, naudojant netiesinės optikos reiškinį – antrosios harmonikos (AH) generaciją [84-92]. Nepaisant antrosios harmonikos generacijos (AHG) metodo paprastumo ir populiarumo, antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos iš esmės leidžia rasti tik impulso trukmę, kai tuo tarpu aukštesnių eilių intensyvumo autokoreliacinių funkcijų matavimai, suteikia informaciją apie galimą matuojamo impulso laikinės formos asimetriją.

Teoriškai pirmosios eilės (elektrinio lauko) koreliacinės funkcijos  $G^{(1)}(\tau)$  aprašomos taip:

$$G^{(1)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_1(t)E_2^*(t - \tau)dt, \quad (1.5.1)$$

čia:  $E_1(t) = E_{10}(t)\exp(i\omega t)$  ir  $E_2(t) = E_{20}(t)\exp(i\omega t)$  yra kompleksiniai elektriniai laukai, aprašantys du lazerio impulsus, kurių amplitudės atitinkamai

yra  $E_{10}$  ir  $E_{20}$ ,  $\tau$  – vėlinimo trukmė tarp dviejų lazerio impulsų,  $\omega$  – spinduliuotės dažnis. Naudojant du vienodus lazerio impulsus, kai  $E_1(t) = E_2(t) = E(t)$ , gaunama funkcija vadinama pirmosios eilės autokoreliacija  $A^{(1)}(\tau)$ , ir aprašoma taip:

$$A^{(1)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)E^*(t - \tau)dt. \quad (1.5.2)$$

Verta paminėti, kad pirmosios eilės autokoreliacijos Furjė transformacija yra proporcinga lazerio impulso spektriniam intensyvumui. Be to, elektrinio lauko autokoreliaciją  $A^{(1)}(\tau)$  galima užregistruoti, naudojant Maikelsono interferometrą. Kita vertus, kaip jau minėta, pirmosios eilės autokoreliacinės funkcijos suteikia tik informaciją apie lazerio impulso spektrą. Todėl, norint išmatuoti lazerio impulso laikinę formą ir trukmę, yra naudojamos antrosios eilės intensyvumo koreliacinės funkcijos, kurios aprašomos taip:

$$G^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(t)I_2(t - \tau)dt, \quad (1.5.3)$$

čia:  $I_1(t)$  ir  $I_2(t)$  yra lazerio impulsų intensyvumo laikinės formos, kai intensyvumas yra lygus  $I(t) = |E(t)|^2$ . Užregistravus antrosios eilės intensyvumo koreliacinės funkcijos duomenis, ir žinant vieno iš impulsų intensyvumo laikinį pasiskirstymą  $I_2(t)$ , galima atstatyti kito impulso laikinę formą  $I_1(t)$  bei iš jos rasti impulso trukmę. Be to, jei žinomo intensyvumo laikinės formos impulso trukmė būtų žymiai mažesnė nei tiriamojo impulso atveju, tai šį atraminį impulsą ( $I_2(t)$ ) galima būtų aprašyti Dirako delta funkcija  $\delta(t)$ , o tada antrosios eilės koreliacinė funkcija užrašoma taip:

$$G^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(t)\delta(t - \tau)dt = I_1(\tau). \quad (1.5.4)$$

Kaip matome iš (1.5.4) išraiškos, šiuo atveju antrosios eilės koreliacinė funkcija tiksliai atkartoja impulso laikinę formą  $I_1(t)$ . Tačiau trumpų femtosekundinių lazerio impulsų atveju, negalima turėti dar trumpesnių, nei tiriamieji, atraminių impulsų, todėl pats tiriamas impulsas kartu naudojamas ir kaip atraminis. Tokiu atveju  $I_1(t) = I_2(t) = I(t)$ , o registruojama funkcija yra

vadinama antrosios eilės intensyvumo autokoreliacine funkcija, kuri aprašoma taip:

$$A^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t - \tau)dt. \quad (1.5.5)$$

Antrosios eilės (kaip ir aukštesnių lyginių eilių) intensyvumo autokoreliacinė funkcija ((1.5.5) išraiška) visada yra simetrinė, todėl tą pačią  $A^{(2)}(\tau)$  formą atitinka daug skirtingų simetrinių ir asimetrinių lazerio impulsų laikinių skirstinių. Dėl šios priežasties antrosios eilės intensyvumo autokoreliacinė funkcija nesuteikia tikslios informacijos apie impulso laikinę formą. Tačiau antros eilės autokoreliacijų  $A^{(2)}(\tau)$  registravimu grįsti metodai dėl savo paprastumo ir greitumo yra plačiai naudojami, norint nustatyti, ar impulsas yra vienas, ar jų daugiau, bei tiriamo lazerio impulso apytikslei trukmei įvertinti. Taigi, norint rasti lazerio impulso trukmę, naudojant antrosios eilės intensyvumo autokoreliaciją, tariama, kad tiriamo impulso intensyvumo laikinis skirstinys turi tam tikrą formą, pvz., dažniausiai naudojami skirstiniai yra Gauso arba  $\text{sech}^2$  funkcijos. Tada užregistruotos antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos plotį pusės aukštyje (FWHM)  $\tau_A$  ir lazerio impulso trukmę (FWHM)  $\tau_L$  sieja šie sąryšiai:  $\tau_A = \tau_L/\sqrt{2}$  (Gauso atveju) ir  $\tau_A = \tau_L/1,54$  ( $\text{sech}^2$  atveju). Esant šioms sąlygoms, lazerio impulso trukmė priklauso nuo pasirinktos impulso intensyvumo laikinio skirstinio formos. Taigi, tokiems antrosios eilės intensyvumo autokoreliacinių funkcijų matavimams yra naudojama antroji optinė harmonika, nes ją sąlygojantis greitas nerezonansinis optinis netiesiškumas leidžia matuoti iki  $10^{-14}$  s trukmės lazerio impulsus. Tam tikslui yra naudojami netiesiniai antrosios harmonikos generacijos kristalai, o žadinimo pluoštas padalinamas į dvi lygias dalis. Tada kristale šie pluoštai turi persikloti erdvėje, o, keičiant vėlinimo trukmę  $\tau$  ir laikinį persiklojimą tarp šių dviejų impulsų, registruojama generuojamos AH priklausomybė  $A^{(2)}(\tau)$ . Verta paminėti, kad ir nesant laikinio impulsų persiklojimo, atskirai kiekvienas pluoštas savo ruožtu generuoja AH spinduliotę, kuri įvertinama, esant kolineariniams AHG schemoms, veikia kaip fonas, mažinantis signalo ir triukšmo santykį. Naudojant nekolinearias AHG



schemas, šio efekto galim išvengti, į detektorių siunčiant tik reikalingą AH signalą, generuojamą tik dėl abiejų žadinimo impulsų laikinio persiklojimo (nekoloniaros sąveikos atveju AH, generuojamos kiekvienu pluoštu atskirai ir abiem impulsais kartu, kryptys būna skirtingos).

Siekiant įvertinti ne tik lazerio impulso trukmę, bet ir jo tikslią laikinę formą bei galimą impulso asimetriją, naudojamos aukštesnių (nei antroji) autokoreliacinės funkcijos. Esant asimetriškiems tiriamiems impulsams, šios autokoreliacijos taip pat yra atitinkamai asimetriškos, o jų forma tuo panašesnė į impulso laikinį skirstinį, kuo aukštesnės autokoreliacijos eilės funkcijos yra naudojamos. Taigi,  $n$ -osios eilės intensyvumo koreliacinės funkcijos aprašomos taip:

$$G^{(n)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1^{n-1}(t)I_2(t - \tau)dt, \quad (1.5.6)$$

čia:  $n$  – yra autokoreliacinės funkcijos eilė (pvz., trečiosios eilės funkcijoms  $n = 3$ , o penktosios –  $n = 5$ ),  $I_1(t)$  ir  $I_2(t)$  yra žadinimo pluoštų intensyvumo laikinės formos. Analogiškai, kaip ir antrosios eilės koreliacijų atveju, jei  $I_1(t) = I_2(t) = I(t)$ , tai gauname  $n$ -osios eilės intensyvumo autokoreliacinę funkciją, aprašomą taip:

$$A^{(n)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I^{n-1}(t)I(t - \tau)dt. \quad (1.5.7)$$

Kaip matome iš (1.5.7) išraiškos, kuo didesnis  $n$ , tuo autokoreliacinė funkcija  $A^{(n)}(\tau)$  panašesnė į lazerio impulso laikinę formą  $I(t)$ .

Paprastai, siekiant išmatuoti aukštesnių eilių autokoreliacines funkcijas, naudojami galingi femtosekundiniai lazerio impulsai, kurie dėl didelio intensyvumo sąlygoja tokius netiesinius optinius reiškinius, kaip daugiafotonė sugertis, trečiosios optinės harmonikos generacija [93-96], keturbangis dažnių maišymas arba net kaskadiniai procesai, t. y. AHG kombinacija su keturbangiu dažnių maišymu [97-103]. Tačiau minėti aukštesnių eilių metodai nėra plačiai naudojami dėl jų sudėtingumo ir painios eksperimentinių duomenų interpretacijos [8].

Kita vertus, šiame skyrelyje aprašytos AHG ir aukštesnių eilių intensyvumo autokoreliacijos nesuteikia informacijos apie tiriamo lazerio impulso fazę bei galimą impulso fazinę (arba dažninę) moduliaciją. Taigi, siekiant gauti kuo išsamesnę informaciją apie lazerio impulso elektrinį lauką (fazę, dažnių pasiskirstymą laike ir t. t.), naudojami kiti, sudėtingesni, impulsų charakterizavimo metodai, pavyzdžiui, optinės sklendės su dažnine skyra matavimai (angl. *Frequency-Resolved Optical Gating* – FROG) [104-113].

Naudojant FROG metodus, galima tiksliai charakterizuoti femtosekundinių lazerio impulsų erdvines-dažnines savybes. Eksperimentų metu tinka tos pačios schemos, kaip ir autokoreliacinių matavimų atveju, o pagrindinis skirtumas yra tai, jog, registruojant FROG duomenis, vietoj detektoriaus yra naudojamas spektrometras. Tokiu būdu vietoj dėl netiesinių optinių reiškinių generuojamos spinduliuotės impulsų energijos yra registruojama jos spektrų priklausomybė nuo vėlinimo trukmės tarp dviejų žadinimo impulsų. Taip yra užregistruojamas eksperimentinis FROG pėdsakas, t. y. lazerio impulso laikinės-dažninės charakteristikos.

Praktikoje yra naudojami skirtingi FROG metodai, priklausomai nuo to, koks netiesinis optinis reiškinys atsakingas už generuojamą signalą. AHG FROG yra plačiausiai naudojamas FROG variantas. Deja, AHG FROG metodo pėdsakas visada yra simetrinis vėlinimo trukmės atžvilgiu, todėl, naudojant šią metodiką, negalima tirti asimetrinės laikinės formos lazerio impulsų. Kita vertus, THG FROG metodo pėdsakas, kuris, skirtingai nei AHG FROG atveju, gali būti asimetriškas vėlinimo trukmės atžvilgiu, todėl teikia tikslesnę informaciją apie tiriamo lazerio impulso dažnių pasiskirstymą laike.

Naudojant FROG metodais gautus pėdsakus, galima skaitmeniškai atstatyti (rekonstruoti) tiriamo lazerio impulso laikines-dažnines charakteristikas. Po to, remiantis atstatytu lazerio impulso FROG pėdsaku, galima rasti ir jį atitinkančias impulso laikinę gaubtinę, spektrą ir laikinę bei spektrinę fazes. Siekiant rekonstruoti tiriamo impulso FROG pėdsaką, laikoma, kad dviejų atskirų žadinimo impulsų elektriniai laukai atitinkamai yra  $E(t)$  ir  $E(t - \tau_{VL})$ , čia  $\tau_{VL}$  yra vėlinimo trukmė tarp žadinimo impulsų. Vykstant

netiesinei sąveikai, šie impulsai sąveikauja tarpusavyje, todėl generuojamo signalo elektrinis laukas  $E_{sig}$  yra proporcingas tokioms funkcijoms:

$$E_{sig}(t, \tau_{VL}) \propto \begin{cases} E(t)E(t - \tau_{VL}) & \text{(SHG FROG)} \\ E^2(t)E(t - \tau_{VL}) & \text{(THG FROG)}. \end{cases} \quad (1.5.8)$$

FROG matavimų metu atitinkamai registruojamas signalo spinduliuotės intensyvumo pėdsakas, t. y. laikinės-dažninės charakteristikos, kurios aprašomos taip:

$$I_{FROG}(\omega, \tau_{VL}) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E_{sig}(t, \tau_{VL}) \exp(-i\omega t) dt \right|^2. \quad (1.5.9)$$

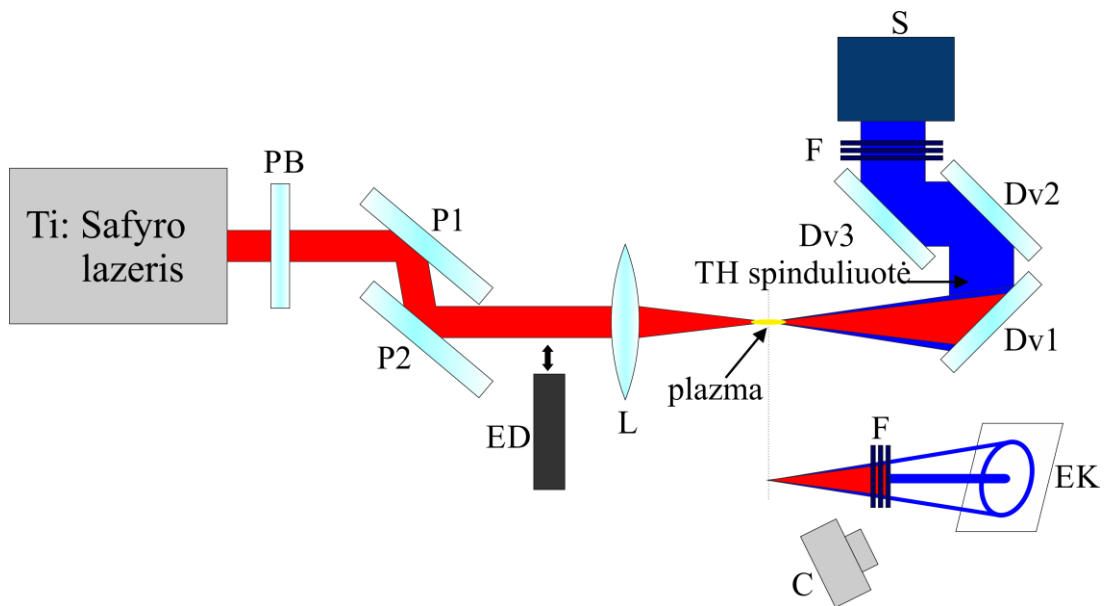
Taigi, naudojant eksperimentinių duomenų masyvą  $I_{FROG}$  bei (1.5.8–9) lygtis, skaitmeniškai galima rasti  $E_{sig}(t, \tau_{VL})$  sprendinį. Tada, naudojant šį sprendinį ir (1.5.8) lygtį, taip pat skaitmeniškai galima nustatyti ir ieškomą kompleksinį elektrinį lauką  $E(t)$  [106-113].

## 2. TREČIOSIOS HARMONIKOS GENERACIJA ORE

### 2.1. TYRIMO METODAI

Siekiant tirti trečiosios harmonikos generaciją ore, eksperimentų metu kaip šviesos šaltinis buvo naudojamas titano safyro lazeris (2.1.1 pav.), kurio spinduliuotės centrinis bangos ilgis – 800 nm, maksimali impulsų energija – 3 mJ, impulsų pasikartojimo dažnis – 1 kHz, o impulso trukmių  $\tau$  (FWHM) vertės, naudotos eksperimentams, buvo tokios: 35 fs, 100 fs arba 120 fs. Lazerio impulsų energiją buvo galima keisti, naudojant atenuatorių, kurį sudarė pusės bangos ilgio fazinė plokštelė PB bei du poliarizatoriai P1 ir P2. Lazerio impulsų energiją buvo galima registruoti fotodiodiniu detektoriumi ED („Ophir 30A-SH“), kuris esant reikalui įstatomas į lazerio pluošto kelią. Glaudžiamasis lęšis L sufokusuodavo lazerio Gauso pluoštą, kurio diametras ( $1/e^2$  lygyje) yra apie 8 mm. Sufokusavus lazerio pluoštą, lęšio židinio srityje buvo stebima švytinti šviesos gija, kurioje buvo generuojama TH. TH signalas buvo atskiriamas nuo žadinimo pirmosios harmonikos (PH) spinduliuotės, naudojant dielektrinius TH veidrodžius (Dv1, Dv2 ir Dv3) bei filtrų sistemą F. TH spektrinės charakteristikos buvo registruojamos spektrometru S „Ocean Optics HR2000“. Šių eksperimentų metu TH centrinės ir kūginės dalių spinduliuotės buvo fokusuojamos į šviesolaidį, kuriuo šviesa buvo perduodama į spektrometrą. Be to, TH erdviniai skirstiniai buvo stebimi fluorescuojančiame ekrane EK ir registruojami, naudojant skaitmeninę kamerą C.

THG spektrinių charakteristikų tyrimai buvo atliekami, naudojant ilgo židinio nuotolio lęšį ( $f = 2000$  mm), nes tada buvo stebėti didesni tiek PH, tiek TH spektriniai poslinkiai todėl, kad formuodavosi ilgesnės šviesos gijos (iki 50 cm, kai  $E = 3$  mJ), nei naudojant trumpesnio židinio nuotolio lęšius. Tokiu atveju spektriniai poslinkiai yra proporcingi šviesos gijos ilgiui, nes atitinkamai didėja sąveikos ilgis bei didelio intensyvumo sritis netiesiniams reiškiniams, t. y. plazmos generacijai, fazės moduliavimuisi bei kryžminei fazės moduliacijai.



2.1.1 pav. THG eksperimento schema, kurioje: PB – pusės bangos ilgio fazinė plokštelė; P1 ir P2 – poliarizatoriai; ED – fotodiodinis detektorius (PH impulsų energijai registruoti); L – fokusuojantis lęšis; Dv1, Dv2 ir Dv3 – dielektriniai TH veidrodžiai; F – filtrų sistema, praleidžianti TH bei sugerianti PH; S – spektrometras; EK – fluorescencuojantis ekranas; C – skaitmeninė kamera.

Naudoti dar ilgesnio židinio nuotolio lęšį (nei 2 m) THG eksperimentams mūsų laboratorijoje techniškai nebuvo sąlygų, tačiau šviesos gijos ilgio priklausomybės nuo žadinančių impulsų energijos ir tolimojo lauko TH skirstiniai buvo registruojami, naudojant įvairių židinio nuotolių lęšius ( $f = 300\text{--}2000$  mm), tam, kad būtų galima šias charakteristikas palyginti tarpusavyje. Negana to, esant ilgo židinio lęšiui (2 m) buvo stebėtas ir pluoštų refokusavimo reiškinys, kurio metu susidarydavo antra šviesos gija. Kadangi buvo siekiama tirti šio reiškinio įtaką dideliems TH spektriniams poslinkiams, tiriant šį reiškinį, buvo naudojamas toks pat (2 m) židinio nuotolio lęšis.

Kadangi, mažėjant lazerio impulso trukmei  $\tau$ , didėja šviesos gijoje pasiekiamas maksimalus intensyvumas  $I_{max}$  ((1.3.1.7) lygtis), atitinkamai vyksta efektyvesnė THG (1.4 skyrelis). Dėl šių priežasčių TH spektrinių, erdvinių, ir energinių charakteristikų (2.2. skyrelis) tyrimo eksperimentams

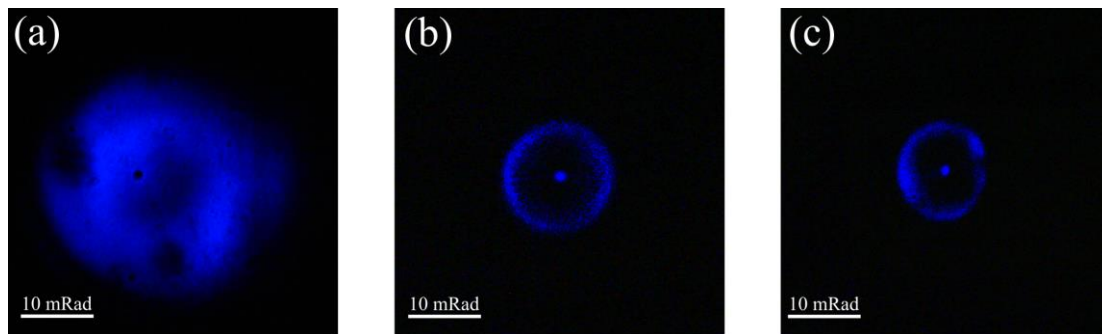
buvo naudotos mažiausios trukmės (120 fs) lazerio impulsai, generuojami „Coherent“ firmos titano safyro femtosekundiniu lazeriu „Libra“. Šis lazeris generuodavo 100 fs trukmės lazerio impulsus, tačiau dėl grupinių greičių dispersijos šie galingi (impulsų energija iki 3 mJ) femtosekundiniai impulsai išplisdavo optiniuose elementuose (lęšiuose, pusės bangos ilgio fazinėse plokštelėse ir pan.), todėl mūsų eksperimentų metu (už fokusuojančio lęšio L, 2.1.1 pav.) gautos trumpiausios žadinimo impulsų trukmės būdavo 120 fs. Vėliau buvo gautas „Coherent“ firmos titano safyro femtosekundinis lazeris „Legend Elite Duo HE+“, kurio generuojamų trumpiausių impulsų trukmė buvo 35 fs, todėl pluoštų refokusavimo reiškinį jau buvo galima tyrinėti tiek esant itin trumpiems lazerio impulsams (35 fs), tiek ir panašioms į „Libros“ lazerio impulsų trukmes (100 fs, gautos išderinus lazerio „Legend Elite Duo HE+“ vidinį kompresorių). Esant šioms sąlygoms, buvo galima tiek tyrinėti pluoštų refokusavimo charakteristikas, esant skirtingoms  $\tau$ , tiek tirti šio reiškinio įtaką TH spektrams (2.3. skyrelis).

## **2.2. TREČIOSIOS HARMONIKOS ERDVINĖS, SPEKTRINĖS IR ENERGINĖS SAVYBĖS**

Naudojant THG eksperimento schemą (2.1.1 pav.), kai impulsų trukmė  $\tau$  buvo 120 fs, o  $E = 0,55$  mJ, smailinė impulsų galia  $P_{SM} = E / \tau \approx 4,5$  GW yra didesnė nei kritinė galia  $P_{cr} \approx 2,9$  GW, apskaičiuojama pagal (1.3.1.2) išraišką, todėl vyko THG, o TH pluošto erdviniai skirstiniai turėjo centrinę (ašinę) dalį. Taigi, TH centrinės dalies generacija yra aprašyta 1.4 skyrelyje, kai, fokusuojant Gauso pluoštus normaliosios optinės dispersijos srityje, THG visgi vyksta dėl netiesinio fazių surišimo, kai  $P_{SM} > P_{cr}$ . Be to, esant didesnėms nei 1 mJ impulsų energijoms, TH pluošto erdviniuose skirstiniuose atsirasdavo ir kūginė dalis (žiedas apie centrinę TH spektro dalį, 2.2.1 pav.). Šiuo atveju, kai  $E > 1$  mJ,  $P_{SM} > 8$  GW bei  $P_{SM} > 2,7P_{cr}$ . Taigi, TH kūginės dalies generacijos  $P_{SM}$  slenktinės vertės yra panašios į atvejį, aprašytą 1.4 skyrelyje ir pavaizuota

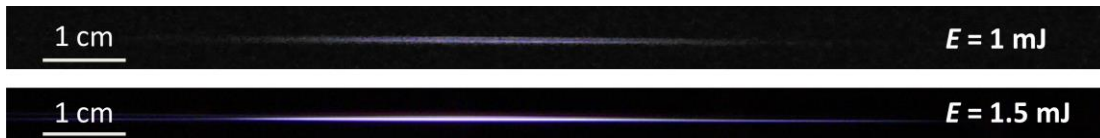
1.4.1 paveikslėlyje, kuriame pateikti teoriniai duomenys (TH kūginė dalis gaunama, kai  $P_{SM} = 2,5P_{cr}$ ).

Kūginės dalies skėsties kampas nepriklausė nuo žadinančio pluošto impulsų energijos, tačiau mažėjo, didinant lęšio židinio nuotolį. Esant trumpo židinio nuotolio (300 mm) lęšiui (2.2.1 pav., a), kūginė ir centrinė TH dalys yra persiklojusios erdvėje, todėl tolimojo lauko erdviniame skirstinyje šių dalių atskirti neįmanoma.

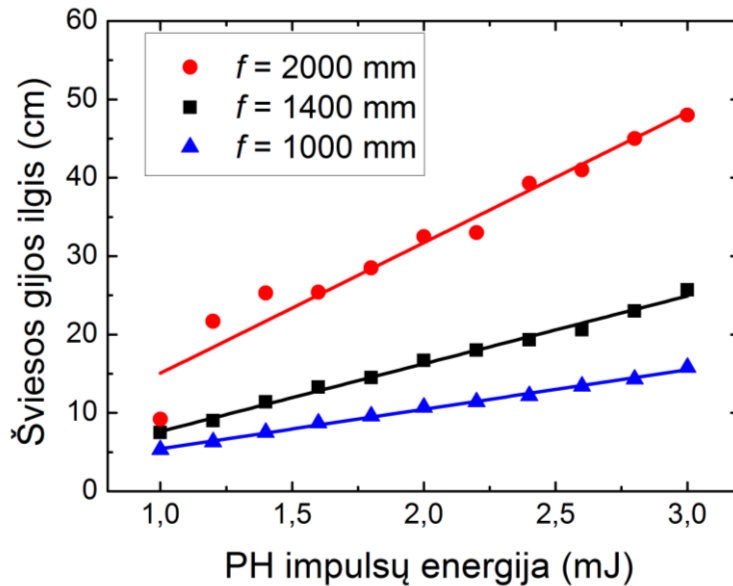


2.2.1 pav. Tolimojo lauko TH erdviniai skirstiniai, fokusuojančio lęšio židinio nuotoliams esant: (a) 300 mm, (b) 1000 mm ir (c) 1400 mm. Impulsų trukmė  $\tau = 120$  fs.

Siekiant nustatyti sąveikos ilgį tarp PH ir TH impulsų, buvo išmatuota šviesos gijos ilgio priklausomybė nuo PH impulsų energijos  $E$ , esant įvairiems fokusuojančio lęšio židinio nuotoliams  $f$ . Kai susidarydavo akimi matoma šviesos gija CCD kamera užfiksuotos šviesos gijos ilgis buvo apie 5 cm ( $E = 1$  mJ,  $f = 1000$  mm, 2.2.2 pav., a). Be to, esant 1 mJ PH energijai, su CCD kamera galima užfiksuoti mažiausią šviesos gijos ilgį, tačiau verta atkreipti dėmesį, kad tai nėra slenkstinė šviesos gijos susiformavimo energija, kuri gali būti ir mažesnė. Tuo tarpu Relėjaus ilgis  $z_R = \pi w_0^2 / \lambda \approx 6,3$  cm, kai bangos ilgis  $\lambda = 800$  nm, o sąsmaukos spindulys  $w_0 = 127 \mu\text{m}$ , esant židinio nuotoliui  $f = 1000$  mm. Didinant žadinimo impulsų energiją  $E$ , šviesos gijos ilgis didėjo tiesiškai (2.2.2 pav., b). Eksperimentines šviesos gijų ilgio priklausomybes nuo  $E$  aproksimuojant teorine kreive, apskaičiuotos tiesinės funkcijos polinkio



(a)



(b)

2.2.2 pav. (a) Eksperimentiškai užregistruoti šviesos gijos vaizdai, esant skirtingoms žadinimo energijoms  $E$  ( $f = 1000$  mm). (b) Šviesos gijos ilgio  $L(E)$  priklausomybė nuo žadinimo impulsų energijos  $E$ , esant skirtingiems lęšio židinio nuotoliams  $f$  (taškai yra eksperimentiniai duomenys, o linijos yra tiesinė taškų aproksimacija). Impulsų trukmė  $\tau = 120$  fs.

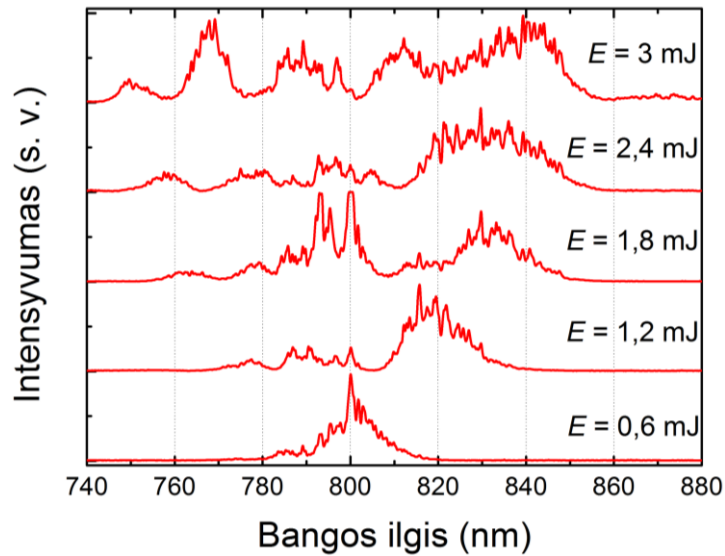
vertės yra tokios: 15,9 cm/mJ ( $f = 2000$  mm), 8,2 cm/mJ ( $f = 1400$  mm) ir 5,2 cm/mJ ( $f = 1000$  mm). Taigi, didinant impulsų energiją, šviesos gijos ilgis didėja sparčiau, kai yra naudojamas ilgesnio židinio nuotolio lęšis. Be to, kai  $E = 1$  mJ, smailinė impulsų galia  $P_{SM} = E / \tau \approx 8$  GW yra didesnė nei kritinė galia  $P_{cr} \approx 2,9$  GW, ir akimi matomos šviesos gijos susidarė, esant visiems naudotiems židinio nuotolio lęšiams (2.2.2 pav., b). Taigi, mūsų eksperimentų metu akimi matomų šviesos gijų susidarymas priklausė nuo žadinimo impulsų energijos ir beveik nepriklausė nuo lęšio židinio nuotolio  $f$ . Nėgana to, susiformavus šviesos gijai ( $E = 1$  mJ), jos ilgio kitimas buvo nedidelis, t. y. mažiau nei 5 % visiems naudotiems lęšio židinio nuotoliams  $f$ . Esant



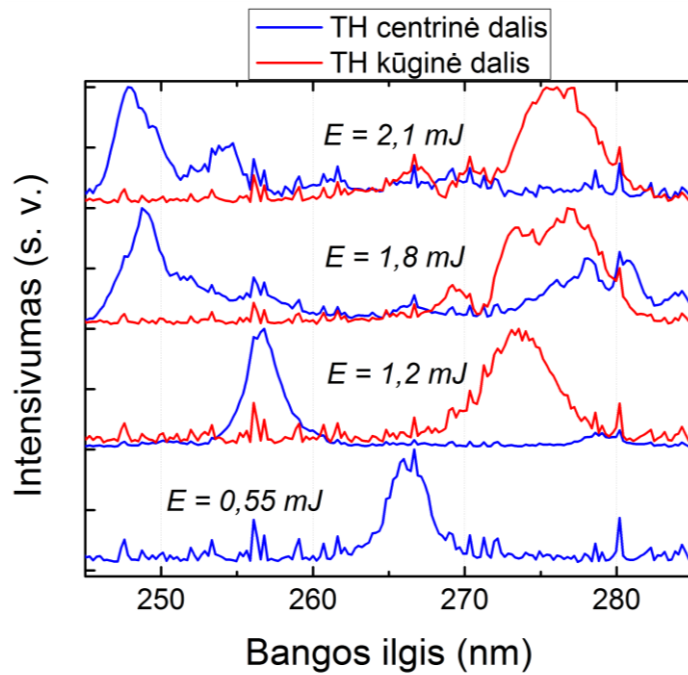
didžiausiai lazerio impulsų energijai ( $E = 3$  mJ), šios šviesos gijos ilgio fliuktacijos buvo tokios:  $\sim 7\%$  ( $f = 1000$  mm),  $\sim 10\%$  ( $f = 1400$  mm) ir  $\sim 15\%$  ( $f = 2000$  mm). Taigi, kuo ilgesnė šviesos gija susiformuoja, tuo labiau pasireiškia jos ilgio kitimai. Reikia paminėti, jog THG efektyvumas buvo  $10^{-6} - 10^{-5}$ , kai  $E = 2$  mJ,  $\tau = 120$  fs, ir  $f = 1000-2000$  mm. Tačiau naudojant trumpesnio židinio nuotolio lęšį ( $f = 200$  mm), kai  $\tau = 120$  fs ir  $E = 2$  mJ, THG efektyvumas buvo didesnis ir siekė  $10^{-4}$ . Literatūroje pateikto didžiausio THG efektyvumo ore vertės, gautos tiek teoriškai (1.4.1 pav., c), tiek eksperimentiškai [4] yra  $0,2\%$ , nes eksperimentams buvo naudojami femtosekundiniai impulsai, kurių trukmė buvo mažesnė ( $\tau = 45$  fs) nei mūsų eksperimentų atveju ( $\tau = 120$  fs). Taigi, mažėjant  $\tau$  vertėms, didėja šviesos gijoje pasiekiamas maksimalus intensyvumas  $I_{\max}$  ((1.3.1.7) lygtis), todėl atitinkamai vyksta efektyvesnė THG (1.4 skyrelis).

Kartu su THG, buvo stebimas ir PH spektrinis platėjimas. PH spektrai, esant įvairioms  $E$  (2.2.3 pav., a), buvo registruojami už židinio plokštumos ir šviesos gijos (2.1.1 pav.). Tyrimai buvo atliekami, naudojant ilgiausio židinio nuotolio lęšį ( $f = 2000$  mm), nes tada formuodavosi ilgiausia šviesos gija (iki 50 cm, 2.2.2 pav., b) ir buvo stebėti didesni spektriniai platėjimai, nei naudojant trumpesnio židinio nuotolio lęšius.

Esant didesnėms impulsų energijoms ( $E > 0,6$  mJ), PH spektrai centrinio bangos ilgio (800 nm) atžvilgiu plečiasi tiek į ilgesnių bangų sritį, tiek į trumpesnių bangų sritį (2.2.3 pav., a). TH pluošto centrinės ir kūginės dalių spektrinės charakteristikos pavaizduotos 2.2.2 (b) paveikslėlyje. Pastebėta, jog kūginės TH dalies centrinis bangos ilgis (apie 274 nm) yra pasislinkęs į ilgesnių bangų spektro pusę, lyginant su centriniu TH bangos ilgiu (kai PH bangos ilgis 800 nm). Tuo tarpu, kai  $E \leq 0,55$  mJ, maksimalus centrinės TH dalies spektro bangos ilgis paklaidų ribose sutampa su 266 nm, taigi, spektrinis poslinkis nėra stebimas. Tačiau, padidinus  $E$ , TH centrinės dalies spektro maksimumas pasislenka į trumpesnių bangų sritį. Panašūs TH spektrų kitimo dėsningumai yra aprašyti anksčiau [1, 2], tačiau ten TH centrinės ir kūginės dalių spektriniai pokyčiai yra tik 3–4 nm eilės ir greit



(a)



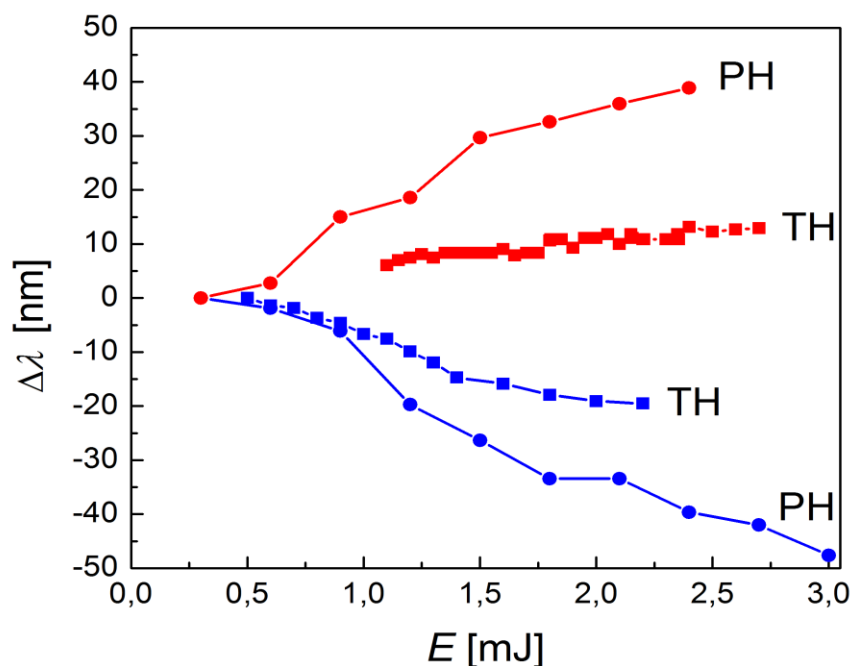
(b)

2.2.3 pav. (a) PH ir (b) TH spektrai, esant skirtingoms žadinančio pluošto impulsų energijoms  $E$ . Lęšio židinio nuotolis buvo 2000 mm, o impulsų trukmė  $\tau = 120$  fs.

įsisotina, didinant žadinimo pirmosios harmonikos pluošto galią, nes tų eksperimentų metu buvo naudojamas trumpesnio židinio nuotolio lęšis nei mūsų tyrimų atveju. Be to, pastebėta, kad mūsų eksperimentų metu tiek

centrinės, tiek kūginės TH spektriniai pokyčiai bei PH spektrinis plitimas auga tiesiškai ir neįsisotina,  $E$  didinant iki 3 mJ, t. y. iki maksimalios įmanomos vertės (2.2.4 pav.). Nėgana to, naudojant ilgo židinio nuotolio ( $f = 2000$  mm) lęšį, pavyko gauti itin dideles spektrinių pokyčių vertes: PH – iki 50 nm, o TH – iki 20 nm (2.2.4 pav.). Be to, verta atkreipti dėmesį, jog slenkstinės akimi matomos šviesos gijos susidarymo ir kūginės spinduliuotės atsiradimo impulsų energijos  $E$  yra labai panašios, kai  $f = 2000$  mm. Tą galima matyti, palyginus 2.2.2 pav. (b) ir 2.2.4 paveikslėlius, kur aiškiai matoma, kad, kai tik  $E$  tampa didesnė nei 1 mJ, atsiranda kūginė TH dalis (registruojamas pirmas jos spektras (2.2.4 pav.)). Nėgana to, tokia pati PH energija leidžia užfiksuoti ir mažiausią šviesos gijos ilgį (2.2.2 pav. (b)).

Be to, 2.2.2–4 paveikslėliuose pavaizduotus duomenis galima rasti [A2] straipsnyje, pateiktame įvado skuriuje.



2.2.4 pav. PH (apskritimai) ir TH (keturkampiai) centrinio bangos ilgio pokyčio  $\Delta\lambda$  (centrinio bangos ilgio atžvilgiu) priklausomybės nuo PH impulsų energijos  $E$ . Rezultatai gauti, naudojant 2000 mm ilgio židinio nuotolio lęšį ir impulsų trukmę  $\tau = 120$  fs. TH centrinė dalis yra pasislinkus į trumpesnių bangos ilgių sritį, o kūginė – į ilgesnių.

Buvo pastebėta, kad PH spektrų platėjimas nėra simetrinis (2.2.4 pav.), t. y. spektro pokyčiai į trumpesnių bangų sritį yra didesni nei į ilgesnių. Centrinio 800 nm bangos ilgio atžvilgiu šie spektrai tampa asimetriški, kai  $E > 0,6$  mJ. Tai reiškia, kad PH spektrus veikia ne vien lazerio impulsų fazės moduliavimasis (1.2.2. skyrelis), kuris moduliudamas PH spektrą vienas (be kitų reiškinų įtakos) indukuoja tik simetrinius spektrinius pokyčius [60, 61]. Vienas labiausiai žinomų reiškinų, sukeliančių tokius asimetrinių formų spektrų atsiradimus, yra impulso laikinės formos fronto statėjimas [64-66]. Siekiant įvertinti šio reiškinio įtaką registruojamiems spektrų pokyčiams, naudojamas asimetrijos parametras  $Q$ , kurio vertė mūsų eksperimentų sąlygomis yra labai maža:

$$Q = \frac{2n_2 I_{max} L_{max}}{c\tau} \approx 0,1 \ll 1, \quad (2.2.1)$$

čia:  $I_{max}$  – maksimalus intensyvumas šviesos gijoje, aprašomas (1.3.1.7) formule,  $L_{max} \approx 50$  cm – maksimalus sąveikos ilgis, t. y. maksimalus užregistruotas šviesos gijos ilgis (2.2.2 pav., b). Kadangi pastebima spektrų asimetrija pasireiškia, tik kai  $Q > 1$ , galima atmesti impulso laikinės formos fronto statėjimo įtaką PH spektrų asimetrijai. Todėl manome, jog ši asimetrija atsiranda dėl papildomo spektrinio poslinkio į trumpesnių bangų sritį, atsirandančio dėl lazerio pluošto sąveikos su elektronų plazma (1.3.3. skyrelis) [54-59].

### **2.3. TREČIOSIOS HARMONIKOS SPEKTRINIAI POSLINKIAI IR ŽADINIMO PLUOŠTŲ REFOKUSAVIMAS**

Siekiant nustatyti fizikinius mechanizmus, sąlygojančius itin didelius pirmosios ir trečiosios harmonikų spektrinius poslinkius, reikia ištirti lazerio impulso ir jo generuojamos trečiosios harmonikos sklidimo šviesos gijoje evoliuciją. Šių tyrimų metu buvo pastebėtas žadinimo pluošto refokusavimo reiškinys, turintis didelę įtaką TH ir PH spektriniam pokyčiams. Kadangi

literatūroje nėra aprašytos pluoštų refokusavimo įtakos TH spektrams, tai buvo siekiama šią sąveiką iširti.

Taigi, pluoštų refokusavimo reiškinys eksperimentų metu stebimas, kai šviesos gijos, formuojamos lęšiais papildomai fokusuojant femtosekundinio lazerio pluoštus. Įprastomis sąlygomis už tam tikro atstumo šviesos gijos suyra, o patys pluoštai defokusuojasi, tačiau neseniai buvo parodyta [51, 52], jog, jei pluošto galia yra pakankamai didelė, dėl netiesinio Kero efekto fokusavimosi procesas gali pasikartoti. Taip gali susidaryti sudėtinės iš kelių dalių sudarytos šviesos gijos, kurių matmenys nėra vienodi. Be to, buvo pastebėta, kad ir netiesiniai optiniai reiškiniai tokiose sudėtinėse šviesos gijose vyksta kitaip, nei įprastose. Mūsų THG tyrimai buvo atliekami, esant vidutinėms impulsų energijų ir pluošto intensyvumo vertėms, kai intensyvumas yra per mažas, kad būtų generuojamas superkontinuumas, nes tada jau nevyksta refokusavimo reiškinys, o yra generuojama vientisa ilga šviesos gija [6]. Pastebėjome, jog literatūroje aprašytuose PH ir TH impulsų sklidimo šviesos gijoje evoliucijos ir jų spektrų tyrimo eksperimentuose refokusavimo reiškinys nepasireiškėdavo, todėl TH spektriniai poslinkiai buvo tik 3–4 nm eilės [1, 2]. Tai mus motyvavo iširti, ar užregistruoti dideli TH ir PH spektriniai poslinkiai nėra sąlygojami šio pluoštų refokusavimo reiškinio.

Eksperimentų metu ilgo židinio nuotolio ( $f = 2000$  mm) lęšiu lazerio pluoštas buvo fokusuojamas ore, esant lazerio impulsų trukmei 35 fs, o lęšio židinio srityje buvo stebima švytinti šviesos gija, kai PH impulsų energija viršydavo 0,5 mJ vertę. Iš pradžių šviesos gija, didinant lazerio impulsų energiją, ilgėdavo (2.3.1 pav., a), o po to sutrūkdavo į dvi ar net tris atskiras dalis (2.3.1 pav., b). Šviesos gijos vaizdai buvo registruojami skaitmenine kamera fiksuojant jonizuoto oro fluorescenciją. Daugkartinis pluoštų refokusavimo reiškinys eksperimentiškai buvo stebėtas, esant vidutinei žadinimo impulsų energijai  $E = 2,2$  mJ (2.3.1 pav., b). Toliau didinant  $E$ , trūkios šviesos gijos ilgėdavo ir persiklodavo erdvėje, todėl vėl susidarydavo viena ilga šviesos gija (2.3.1 pav., c).



(a)



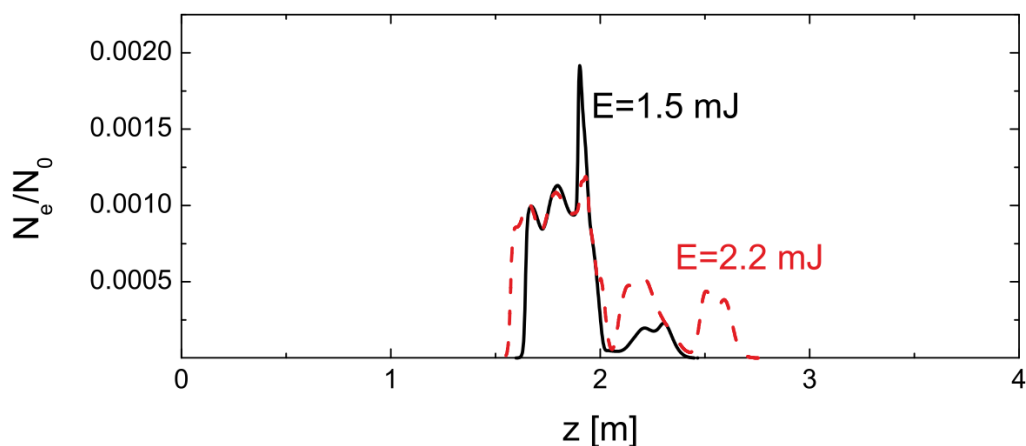
(b)



(c)

2.3.1 pav. Eksperimentiškai užregistruoti šviesos gijos vaizdai, kai PH impulsų energija  $E$  : (a) 1,5 mJ, (b) 2,2 mJ ir (c) 2,5 mJ. Eksperimento parametrai: impulsų trukmė  $\tau = 35$  fs,  $f = 2000$  mm.

Analizuojant eksperimentinius rezultatus, buvo naudojama plazmos elektronų kitimą laike aprašanti lygtis (1.4.3). 2.3.2 paveikslėlyje pavaizduotos plazmos elektronų tankio priklausomybės nuo atstumo  $z$  iki lęšio aiškiai parodo, kad gali vykti pluoštų refokusavimas: elektronų tankis yra didžiausias prieš židinį ( $z < 2$  m), po to elektronų tankis staigiai sumažėja ties lęšio židiniu ( $z = 2$  m). Už lęšio židinio pluošto intensyvumas būna pakankamai didelis refokusavimui ir elektronų tankis vėl padidėja, t. y. susidaro dar viena šviesos gija, kai  $z > 2$  m. Priklausomai nuo žadinimo impulsų energijos  $E$  pluoštų refokusavimo metu papildomai gali susidaryti dar viena ( $E = 1,5$  mJ) ar dar dvi šviesos gijos ( $E = 2,2$  mJ) (2.3.2 pav.).



2.3.2 pav. Skaitmeniškai sumodeliuota plazmos elektronų tankio  $N_e/N_0$  priklausomybė nuo atstumo iki lęšio  $z$ , esant skirtingoms žadinimo impulsų energijoms  $E$  (1,5 mJ – ištisinė linija; 2,2 mJ – punktyrinė linija), kai impulsų trukmė  $\tau = 35$  fs, o  $f = 2000$  mm.

Įdomu, jog, kai žadinimo impulsų energija  $E = 1,5$  mJ, smailinės impulsų galios  $P_{SM}$  ir kritinės galios  $P_{cr}$ , apskaičiuojamos pagal (1.3.1.2) išraišką, santykis  $P_{SM}/P_{cr} = \sim 10$ , o, kai  $E = 2,2$  mJ, tai  $P_{SM}/P_{cr} = \sim 15$ . Nefokusuojant, atstumas, kuriame dėl pluoštų fokusavimosi prasideda oro molekulių jonizacija, išreiškiamas taip [25]:

$$z_f = \frac{0,367ka_0^2}{\sqrt{(\sqrt{P_{SM}/P_{cr}} - 0,852)^2 - 0,0219}}, \quad (2.3.1)$$

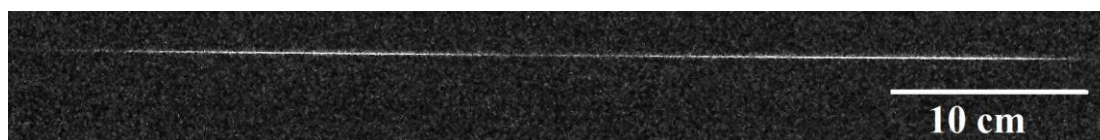
čia:  $k = 2\pi n/\lambda$  – banginis skaičius, o  $a_0$  – pluošto intensyvumo skirstinio spindulys ( $1/e^2$  lygyje). Kai naudojamas židinio nuotolio  $f$  fokusuojantis lęšis, minėtas atstumas  $z_f'$ , randamas iš šios lygties [25]:

$$\frac{1}{z_f'} = \frac{1}{z_f} + \frac{1}{f}. \quad (2.3.2)$$

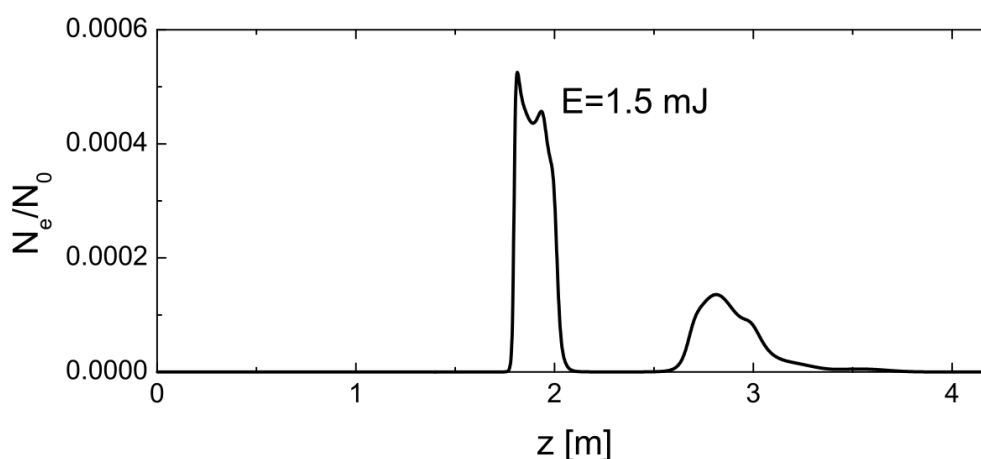
Kai  $f = 2$  m, o  $E = 1,5$  mJ ir 2,2 mJ, tai atitinkamai  $z_f' = 1,81$  ir 1,77 m. Panašius dėsningumus galima stebėti ir 2.3.2 paveikslėlyje, kai, esant didesnei impulsų energijai, jonizacija prasideda, esant mažesnei  $z$  reikšmei t. y. arčiau fokusuojančio lęšio.

Verta paminėti, kad pluoštų refokusavimo reiškinys eksperimentiškai jau yra tirtas [51, 52], tačiau skirtingai nei minėtuose darbuose mūsų tyrimai atlikti, naudojant ilgo židinio nuotolio (2 m) lęšį (lazerio pluošto parametrai buvo panašūs į tuos, kurie aprašyti 2.2 skyrelyje ( $\tau = 120$  fs,  $f = 2000$  mm, maksimali  $E = 3$  mJ)). Tokiomis sąlygomis stebimi itin dideli PH ir TH spektriniai poslinkiai. Taip 2.3.3–4 paveikslėliuose pavaizduoti eksperimentiškai ir teoriškai gauti šviesos gijų vaizdai, kai impulsų trukmė yra 100 fs, o  $E = 1,5$  mJ. Esant tokioms eksperimento sąlygoms,  $P_{SM}/P_{cr} = \sim 3,6$ , o atstumas, kuriame dėl pluoštų fokusavimosi prasideda oro molekulių

jonizacija,  $z_f' = 1,9$  m. Be to, palyginus teorinius ir eksperimentinius duomenis (2.3.2 pav. ir 2.3.4 pav.), esant skirtingoms lazerio impulso trukmėms, matyti, kad tiek naudojant 35 fs, tiek 100 fs trukmės lazerio impulsus vyksta efektyvus pluoštų refokusavimas. Paprastai galingesnė šviesos gijos dalis susidaro prieš židinį ( $z < 2$  m), o už jo ( $z > 2$  m) stebimas refokusavimas. Analizuojant teorinius duomenis pastebėta, jog, esant tai pačiai žadinimo impulsų energijai (1,5 mJ), ilgesnė šviesos gija susidaro, esant didesnei impulsų trukmei (2.3.4 pav. ir 2.3.2 pav.). Panašūs dėsningumai stebimi ir eksperimentų metu, esant tai pačiai  $E$  vertei (1,5 mJ), kai  $\tau = 100$  fs (2.3.3 pav.), formuojasi ilgesnė šviesos gija nei tada, kai  $\tau = 35$  fs (2.3.1 pav.).



2.3.3 pav. Eksperimentiškai užregistruotas šviesos gijos vaizdas, kai PH impulsų energija  $E = 1,5$  mJ, impulsų trukmė  $\tau = 100$  fs, o  $f = 2000$  mm.



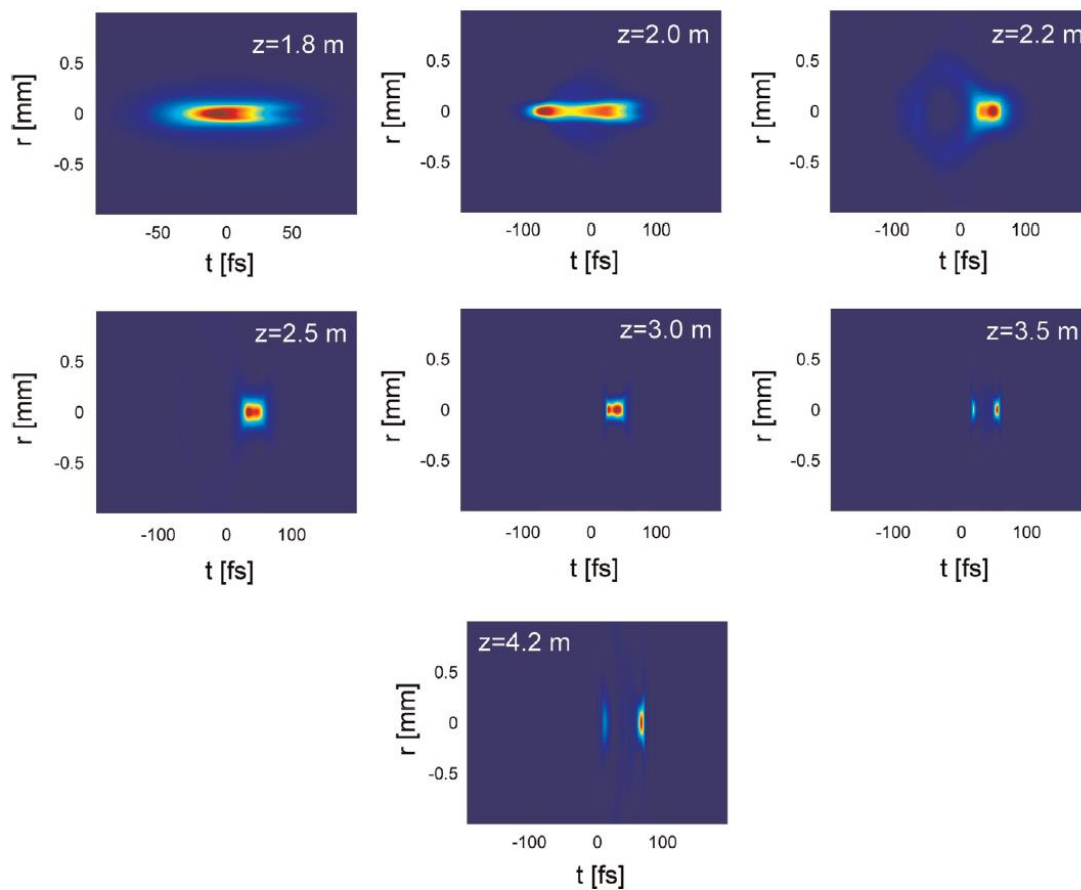
2.3.4 pav. Skaitmeniškai sumodeliuota plazmos elektronų tankio  $N_e/N_0$  priklausomybė nuo atstumo iki lęšio  $z$ , kai PH impulsų energija  $E = 1,5$  mJ, impulsų trukmė  $\tau = 100$  fs, o  $f = 2000$  mm.

Analizuojant eksperimentinius rezultatus, buvo skaitmeniškai sprendžiamos netiesinės šviesos impulsų sklaidimo lygtys, aprašančios PH ir

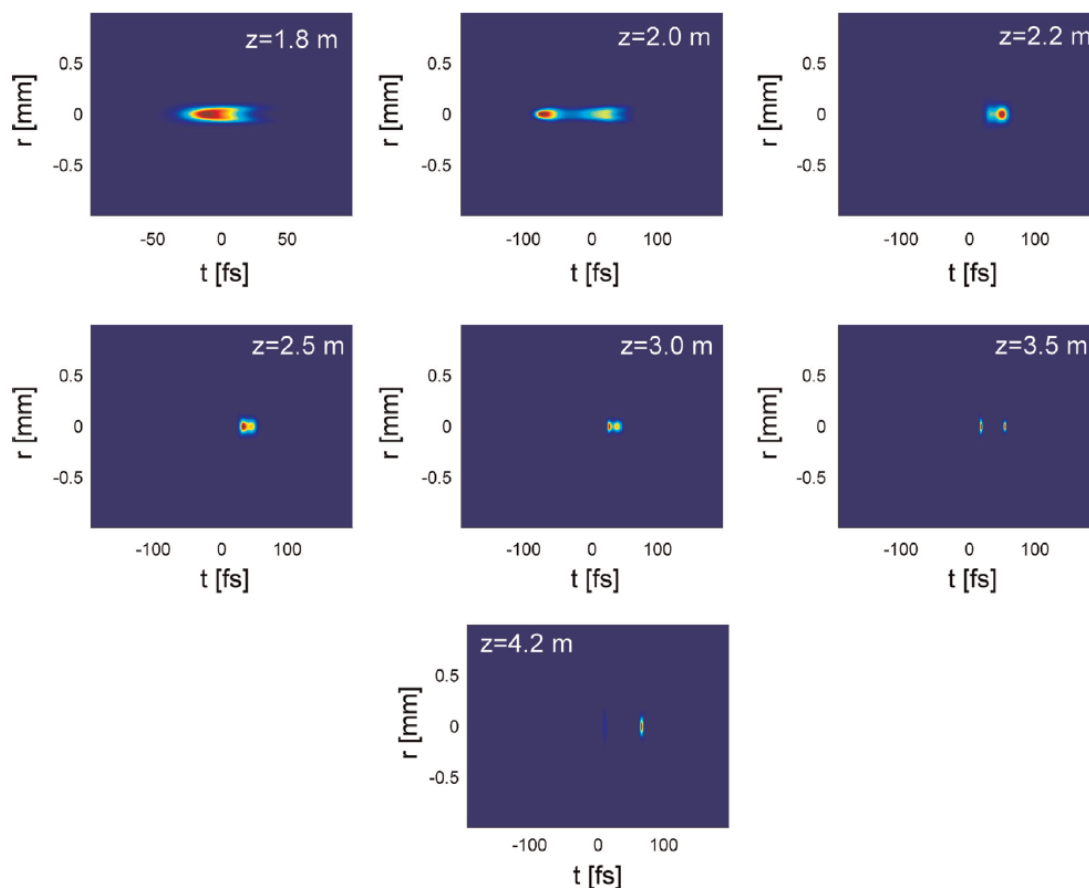


TH kompleksines amplitudes  $A_1$  ir  $A_3$ , atitinkamai naudojant (1.4.1) ir (1.4.2) išraiškas, kai  $\tau = 100$  fs, o  $f = 2000$  nm. Skaitmeninio modeliavimo rezultatai parodė, jog, esant mažoms lazerio impulsų energijoms, refokusavimas nevyksta ir TH bei žadinimo spinduliuotės kitimas yra analogiškas aprašytam [2] darbe. Po to buvo atliktas PH impulso (2.3.5 pav.) ir jo generuojamos TH (2.3.6 pav.) sklidimo šviesos gijoje evoliucijos modeliavimas, žadinimo impulsų energijai  $E = 1,5$  mJ. Pastebėta, kad tiek PH, tiek TH impulsų kitimas prieš refokusavimą ( $z < 2,5$  m) yra panašus į aprašytą [2] darbe. Abiem atvejais generuojama centrinė ir kūginė TH dalys (TH kūgio kampas buvo apie  $\sim 10$  mrad), o TH ir PH spektriniai pokyčiai buvo nedideli. Verta atkreipti dėmesį, kad 2.3.6 paveikslėlyje TH kūginė dalis nėra lengvai pastebima, todėl grafikuose ji randama skaitmeniškai, už centrinės TH dalies ieškant TH maksimumo.

Kai PH impulsas sklinda židinio aplinkoje ( $z = 2$  m), jis skyla į du impulsus (2.3.5 pav.). Kai  $z = 2,5$  m, prasideda refokusavimas ir vėl stebimas antro impulso formavimasis. Kai  $z = 3,5$  m, PH impulsas galutinai skyla į dvi dalis. TH impulso evoliucija atkartoja PH kitimo dėsninumus (2.3.6 pav.) – stebimi du TH impulso skilimai, kai  $z = 2$  m ir  $z = 3,5$  m. Šios dvi  $z$  vertės atitinka dviejų šviesos gijų pabaigas ir matomos 2.3.4 paveikslėlyje.

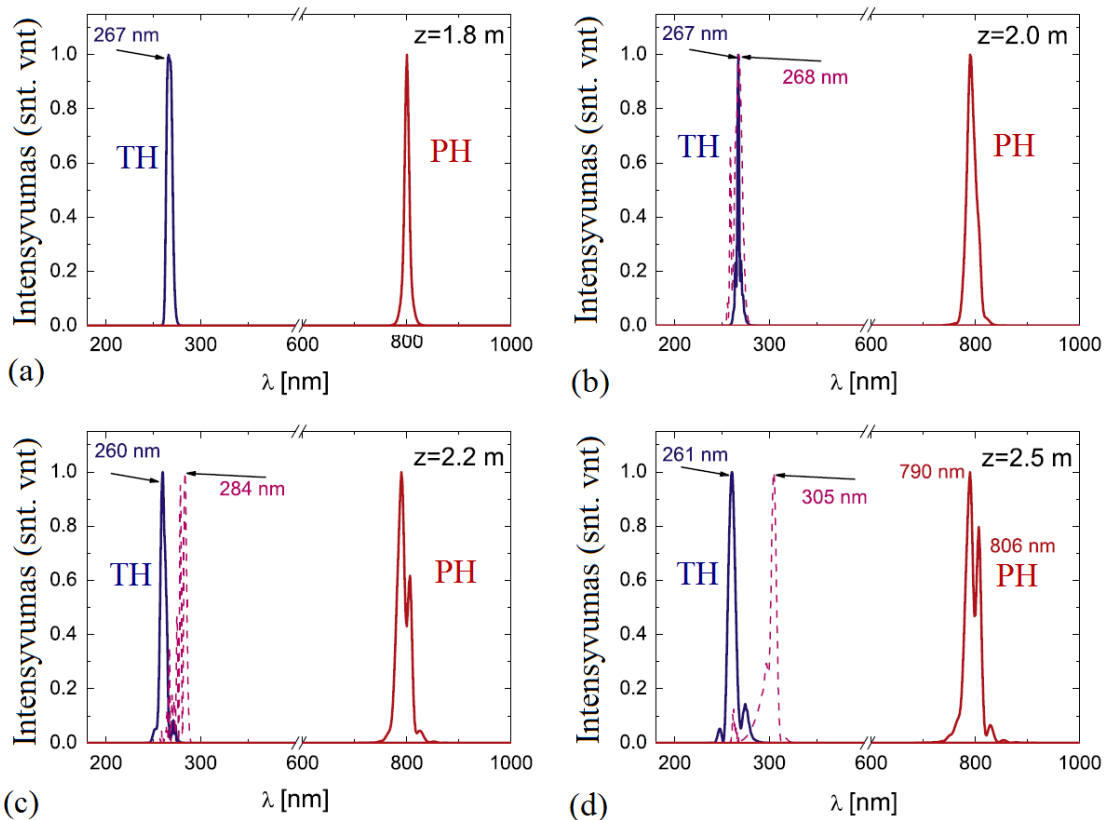


2.3.5 pav. PH impulso pluošto profiliai, esant skirtingiems atstumams iki lęšio  $z$ , kai PH impulsų energija  $E = 1,5$  mJ, impulsų trukmė  $\tau = 100$  fs, o židinio nuotolis  $f = 2000$  mm.



2.3.6 pav. TH impulso pluošto profiliai, esant skirtingiems atstumams iki lęšio  $z$ , kai PH impulsų energija  $E = 1,5$  mJ, impulsų trukmė  $\tau = 100$  fs, o židinio nuotolis  $f = 2000$  mm.

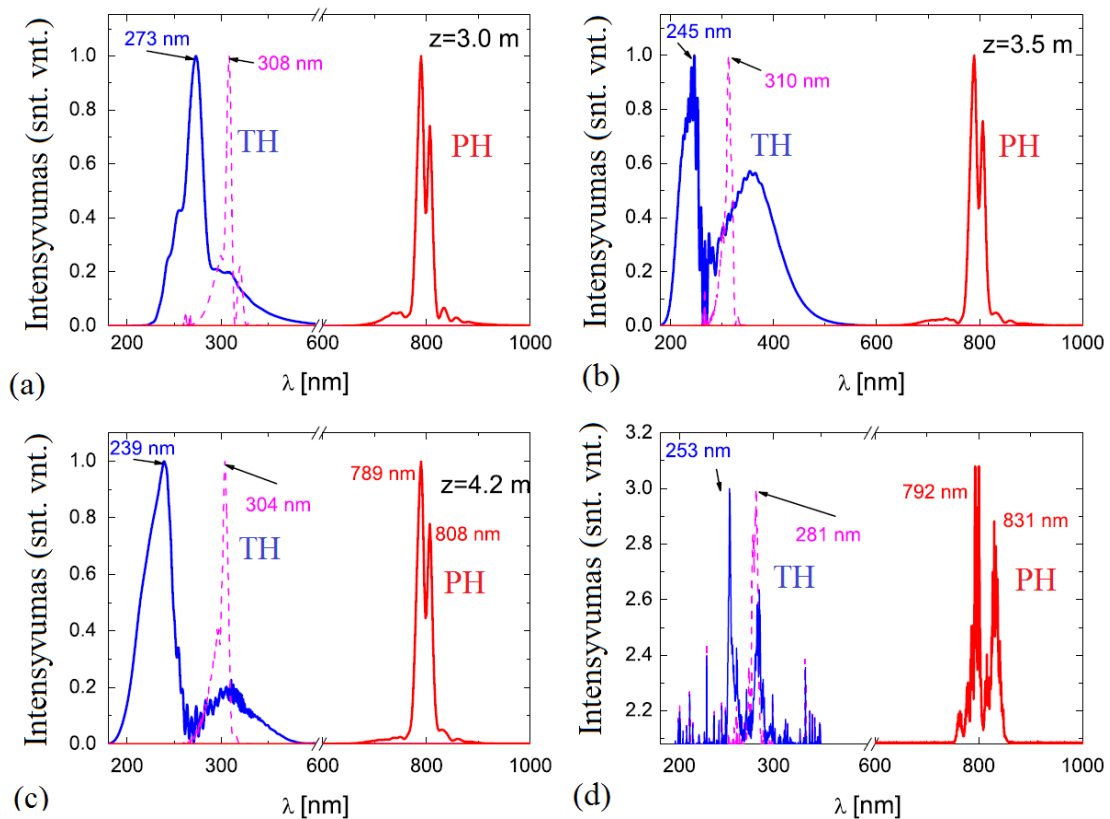
Teoriškai gautas PH ir TH spektrų kitimas pavaizduotas 2.3.7–8 paveikslėliuose. 2.3.7 paveikslėlyje matome, kad TH spektrų kitimo dėsningumai yra panašūs į tuos, kurie yra aprašyti 2.2 skyrelyje (2.2.3 pav., b), t. y. kūginės TH dalies centrinis bangos ilgis yra pasislinkęs į ilgesnių bangų pusę, o TH centrinės dalies – į trumpesnių bangų sritį centrinio TH bangos ilgio atžvilgiu ( $\sim 267$  nm, 2.3.7 pav., a). Kai  $z = 2.5$  m (2.3.7 pav., d), TH spektro poslinkis į trumpesnių bangų pusę yra nelabai didelis (apie 6 nm), o į ilgesnių bangų spektro pusę – net 38 nm.



2.3.7 pav. Teoriškai gauti PH ir TH impulsų, sklindančių ore, spektrai (ištininė linija atitinka centrinę, o brūkšninė – kūginę TH spinduliuotės dalis), esant skirtingiems atstumams iki lęšio  $z$ , kai PH impulsų energija  $E = 1,5$  mJ, impulsų trukmė  $\tau = 100$  fs, o lęšio židinio nuotolis  $f = 2000$  mm. Matome, jog spektriniai poslinkiai yra mažesni, kai refokusavimas dar neprasidėjęs.

Toliau sklindant impulsams (esant koordinatei  $z$  didesnei, nei 2,5 m), prasideda žadinimo pluošto refokusavimas (2.3.8 pav.) ir centrinė TH dalis patiria spektrinį poslinkį į ilgesnių bangų pusę (5 nm, kai  $z = 3$  m, 2.3.8 pav., a), o po to slenkasi į trumpesnių bangų pusę (22 nm, kai  $z = 3,5$  m, 2.3.8 pav., b). Tuo tarpu kūginės TH dalies spektriniai pokyčiai yra maži, nes pagrinde ji susideda iš tos pačios TH spinduliuotės, generuojamos dar prieš pluošto refokusavimą (2.3.8 pav., a ir b). Be to, kai  $z = 4,2$  m (2.3.8 pav., c), plazmos tankis jau būna smarkiai sumažėjęs ir dėl to atsiranda dar didesnis TH centrinės dalies spektro poslinkis į trumpesnių bangų pusę – iš viso apie 28 nm. Tuo tarpu kūginės TH dalies poslinkis į ilgesnių bangų pusę yra apie 37 nm (2.3.8 pav., c). Eksperimentiškai gauti PH ir TH spektrai yra pateikti 2.3.8

paveikslėlyje (d), kuriame pavaizduoti dideli TH spektriniai pokyčiai (po 14 nm tiek į ilgesnių, tiek į trumpesnių bangų spektro puses). Lyginant teorinius (2.3.8 pav., b ir c) ir eksperimentinius duomenis (2.3.8 pav., c), matomas tas pats dėsniumas: centrinės TH dalies spektras (ištininė linija) turi ne tik spektro komponentę, pasislinkusią į trumpesnių bangų sritį, bet ir mažiau intensyvią spektro dalį ilgesnių bangų diapazone. Ši centrinės TH dalies spektrą aiškiai galima pamatyti ir 2.2.3 pav. (b), kur pavaizduotas TH spektras, užregistruotas, kai  $E = 1,8$  mJ.



2.3.8 pav. (a), (b) ir (c) teoriškai gauti PH ir TH impulsų spektrai (ištininė linija atitinka centrinę, o brūkšninė – kūginę TH spinduliuotės dalis), gauti esant skirtingiems atstumams iki lęšio  $z$ , kai PH impulsų energija  $E = 1,5$  mJ, impulso trukmė  $\tau = 100$  fs, o židinio nuotolis  $f = 2000$  mm. Spektriniai poslinkiai tampa didesni po pluošto refokusavimo. (d) Eksperimentiškai gauti PH ir TH impulsų spektrai, kai  $z = \sim 4$  m, PH impulsų energija  $E = 1,8$  mJ, impulsų trukmė  $\tau = 120$  fs, o lęšio židinio nuotolis  $f = 2000$  mm.

Pluoštų refokusavimas padidina ne tik TH, bet ir PH spektrinius pokyčius. Tai galima pastebėti palyginus PH spektrą prieš refokusavimą, kai  $z = 2,2$  m (2.3.7 pav., c), ir kai refokusavimas jau vyksta ( $z = 4,2$  m, 2.3.8 pav., c). Pirmu atveju spektriniai pokyčiai yra 10 nm (į trumpesnių bangų pusę) ir 6 nm (į ilgesnių bangų pusę), lyginant su PH spektru po žadinimo pluošto refokusavimo. Antru atveju spektriniai pokyčiai atitinkamai yra 11 nm ir 8 nm. Be to, 2.3.2–8 paveikslėliuose pavaizduotus duomenis galima rasti [A3] straipsnyje.

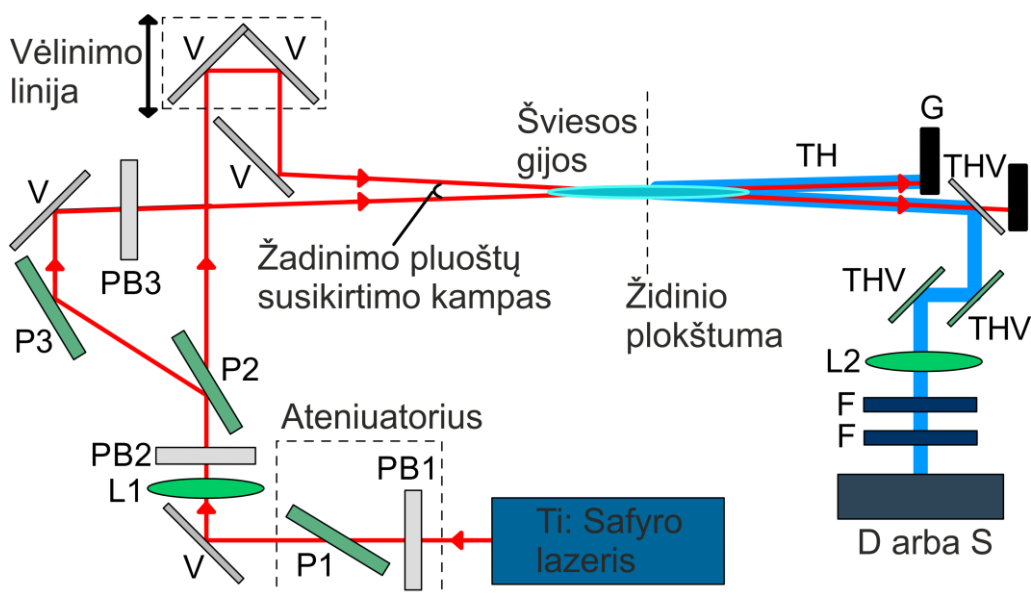
Taigi, tiriant lazerio impulso ir jo generuojamos trečiosios harmonikos sklidimo šviesos gijoje evoliuciją ir naudojant eksperimentinius bei skaitmeninius metodus, gauti tokie pagrindiniai rezultatai: femtosekundinius lazerio impulsus fokusuojant ilgo židinio nuotolio lęšiu (2 m) dėl jų refokusavimo gali formuotis trūkios šviesos gijos, kuriose vyksta itin dideli sąveikaujančių bangų (pirmosios ir trečiosios harmonikų) spektriniai poslinkiai, o pluoštų refokusavimas nepaveikia tik trečiosios harmonikos kūginės dalies spektro, nes ši dalis sukurama pirmoje šviesos gijoje ir kituose šviesos gijos fokusavimosi cikluose su žadinimu nesąveikauja.

### 3. NEKOLINEARUS ŠEŠIABANGIS DAŽNIŲ MAIŠYMAS ORE

#### 3.1. TYRIMO METODAI

Siekiant tirti nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo charakteristikas ore, eksperimentų metu kaip šviesos šaltinis buvo naudojamas titano safyro lazeris (3.1.1 pav.), kurio spinduliuotės centrinis bangos ilgis – 800 nm, maksimali impulsų energija – 3 mJ, Gauso pluošto diametras ( $1/e^2$  lygyje) – apie 8 mm, impulsų pasikartojimo dažnis – 1 kHz, o impulsų trukmių  $\tau$  (FWHM) vertės, naudotos eksperimentams, buvo tokios: 35 fs, 100 fs ir 130 fs. Lazerio impulsų energiją buvo galima keisti, naudojant atenuatorių, kurį sudaro pusės bangos ilgio fazinė plokštelė PB1 bei poliarizatorius P1. Poliarizatorius P2 lazerio pluoštą padalino į du statmenų poliarizacijų žadinimo pluoštus, kurių galių santykį buvo galima valdyti fazine plokštele PB2, impulso energiją perduodant iš vieno pluošto į kitą. Papildoma fazinė plokštelė PB3, įstatyta vieno iš žadinimo pluoštų kelyje, leido keisti šio pluošto poliarizaciją tarp  $p$  ir  $s$ -poliarizacijų, kai tuo tarpu kitas žadinimo pluoštas visada buvo  $p$ -poliarizacijos. Taigi, naudojant PB3, galima gauti tiek lygiagrečių, tiek statmenų poliarizacijų žadinimo pluoštus. Be to, žadinimo pluoštai buvo sufokusuoti 1 m židinio nuotolio lęšiu L1 ir dielektriniais veidrodžiais V sukryžiuoti ŠDM fazinio sinchronizmo kampu (apie 10 mrad). Pluošto spindulys sąsmaukoje  $w_0 = 100 \mu\text{m}$ . Be to, papildoma optinė vėlinimo linija, įstatyta vieno iš žadinimo pluošto kelyje, leido valdyti abiejų žadinimo impulsų laikinį persiklojimą. Kai žadinimo impulsai laike nebuvo persikloję, o lazerio impulsų energija buvo didesnė nei 0,7 mJ ( $\tau = 100$  fs), lęšio židinio aplinkoje buvo stebimos dvi 5–10 cm ilgio erdvėje persiklojančios ir švytinčios šviesos gijos. Abi šviesos gijos generavo silpną TH signalą, sudarytą iš centrinės ir kūginės dalių [1, 2]. Tačiau, kai žadinimo impulsai persiklojo ir

laike, dėl nekolinarus ŠDM buvo generuojami du TH pluoštai, esantys šalia žadinimo pluoštų. Dėl šios priežasties TH ir žadinimo pluoštai buvo atskiriami erdvėje. Papildomai TH signalas nuo žadinimo PH spinduliuotės buvo atskiriamas, naudojant dielektrinius TH veidrodžius THV bei filtrus F. TH impulsų energiją buvo galima užregistruoti fotodiodiniu detektoriumi D („Ophir PD10-pJ“). Be to, TH spektrinės charakteristikos buvo registruojamos spektrometru S („Ocean Optics HR2000“). Šių eksperimentų metu lęšiu L2 TH spinduliuotė buvo fokusuojama į šviesolaidį, kuriame šviesa sklido iki spektrometro. Papildomai žadinimo PH ir TH pluoštų erdviniai skirstiniai buvo stebimi fluorescuojančiame ekrane, pastatytame apie 1,5 m atstumu nuo židinio plokštumos, ir registruojami, naudojant skaitmeninę kamerą.



3.1.1 pav. Nekolinarus šešiabangio dažnių maišymo ore eksperimento schema, kurioje: PB1–3 – pusės bangos ilgio fazinės plokštelės; P1–3 – poliarizatoriai; V – dielektriniai veidrodžiai, atspindintys PH 800 nm bangos ilgio spinduliuotę; L1 ir L2 – fokusuojantys lęšiai; G – pluošto gaudyklė; THV – dielektriniai veidrodžiai, atspindintys TH ir praleidžiantys PH pluoštą; F – filtrai, praleidžiantys TH bei sugeriantys PH; D – fotodiodinis detektorius; S – spektrometras.



Kadangi ŠDM yra penktosios eilės netiesinis reiškiny, kurio metu generuojamų TH impulsų bendra energija yra proporcinga žadinimo intensyvumui, pekeltam penktuoju laipsniu, todėl, siekiant didesnio ŠDM ekfetyvumo, reiktų naudoti kuo trumpesnio žininio nuotolio lęšį L1 (3.1.1 pav.), nes kuo pluoštas yra aštriau fokusuojamas, tuo pluošto spindulys sąsmaukoje yra mažesnis, o pluošto intensyvumas didesnis. Kita vertus, norint kuo tiksliau valdyti ŠDM fazinio sinchronizmo sąlygas, keičiant dviejų žadinimo pluoštų susikirtimo kampą bei susikirtimo vietą židinio plokštumoje (3.1.1 pav.), kai ŠDM fazinio sinchronizmo kampai yra mrad eilės, reikia kuo ilgesnesnio židinio nuotolio lešio. Taigi, eksperimentiškai buvo nustatyta, kad optimalus lęšio židinio nuotolio variantas yra, kai  $f = 1000$  mm. Esant šioms sąlygoms, galima tiek tiksliai tenkinti ŠDM fazinio sinchronizmo sąlygas, tiek generuoti efektyvesnę TH, lyginant su atvejais, kai yra naudojami ilgesnio židinio nuotolio lęšiai.

Kadangi, mažėjant lazerio impulso trukmei  $\tau$ , didėja spinduliuotės intensyvumas ir atitinkamai vyksta efektyvesnė THG dėl ŠDM, eksperimentams buvo mažiosios lazerio impulso trukmės (100 fs), kai tyrimų pradžioje buvo naudojamas „Coherent“ firmos titano safyro femtosekundinis lazeris „Libra“. Šie ŠDM erdvinių, spektrinių ir energinių charakteristikų tyrimai pateikti 3.2. skyrelyje. Naudojant „Coherent“ firmos titano safyro femtosekundinį lazerį „Legend Elite Duo HE+“, kurio generuojamų trumpiausių impulsų trukmė buvo 35 fs, atsirado galimybė tyrinėti ŠDM taikymus, registruojant lazerio impulso laikines ir ŠDM FROG charakteristikas (3.3. skyrelis), esant itin trumpiems impulsams (35 fs). Buvo siekiama užregistruoti kuo trumpesnių impulsų charakteristikas, taip pademonstruojant, šių taikymų matavimų tikslumą ir galimybę tirti itin trumpus femtosekundinius impulsus. Be to, siekiant įsitikinti, ar ŠDM autokoreliacijų atveju tikrai gaunamos tikslios charakterizuojamų lazerio impulsų trukmių vertės, jas reikėjo palyginti su AHG autokoreliacijų išmatuotais rezultatais, o šis metodas tinka tirti tik simetriškus impulsus. Kadangi 35 fs trukmės impulsų laikinė forma nebuvo visiškai simetriška,

lazerio „Legend Elite Duo HE+“ vidinis kompresorius buvo šiek tiek išderintas, ir generavo simetriškus Gauso laikinės formos lazerio impulsus, kurių trukmė buvo 130 fs, ir jie buvo tinkami tyrimams.

Dvi šviesos bangos, kurių poliarizacijos yra tiesinės ir statmenos viena kitai, neinterferuoja, todėl jos nesukuria erdvinės intensyvumo moduliacijos, kuri lemia efektyvesnę oro molekulių jonizaciją. Dėl šių priežasčių visi nekolinearaus ŠDM tyrimo eksperimentai buvo atlikti esant statmenoms žadinimo pluoštų poliarizacijoms. Be to, verta paminėti, kad, esant trumpiausiai lazerio impulsų trukmei (35 fs), kai bendra abiejų žadinimo pluoštų impulsų energija pasiekdavo 1,5 mJ vertę, buvo stebėtas ŠDM metu generuojamos TH įsisotinimas, todėl atliekant eksperimentus su 35 fs trukmės impulsais, naudotos tik mažesnės impulsų energijų vertės (soties režimas nebūdavo pasiektas). Tuo tarpu, esant 100 fs ir 130 fs impulsų trukmėms, net ir naudojant maksimalią impulsų energiją (3 mJ), ŠDM metu generuojamos TH įsisotinimas nebuvo stebėtas.

### **3.2. ERDVINIŲ, SPEKTRINIŲ IR ENERGINIŲ ŠEŠIABANGIO DAŽNIŲ MAIŠYMO CHARAKTERISTIKŲ YPATUMAI**

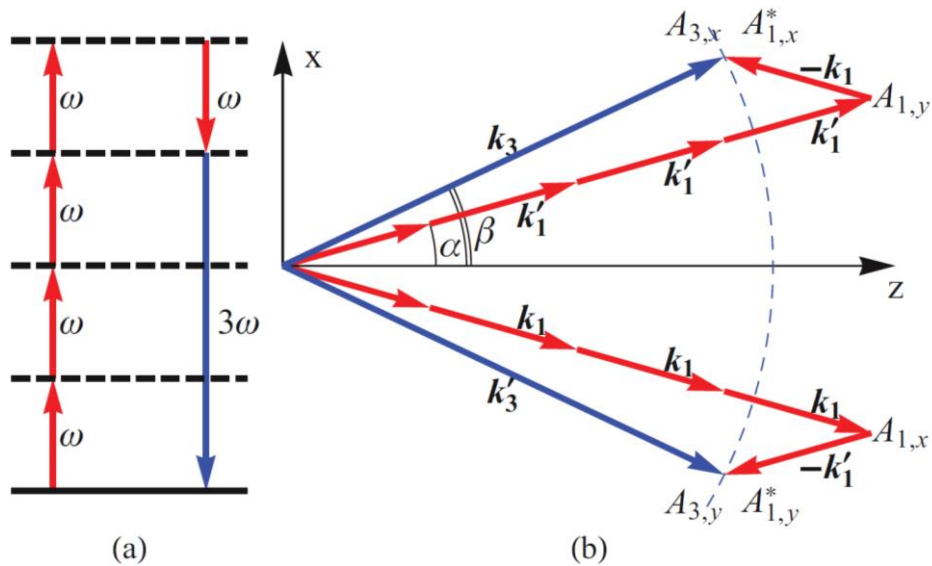
Siekiant teoriškai aprašyti nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo reiškinį ore tariama, kad du PH žadinimo pluoštai sklinda skirtingomis ir apibrėžtomis jų banginių vektorių  $\vec{k}_1$  ir  $\vec{k}'_1$  kryptimis. Tada netiesinio penktosios eilės optinio jautrio, aprašančio trečiosios harmonikos generavimą, tenzorius yra  $\chi_{q,p_1,p_2,p_3,p_4,p_5}^{(5)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$ , čia indeksai  $q$  ir  $p_j (j = 1, \dots, 5)$  nurodo atitinkamai generuojamos TH ir žadinimo pluoštų poliarizacijas, kurių reikšmės yra x arba y, t. y. atitinkamai  $p$ -poliarizacija arba  $s$ -poliarizacija. 3.2.1 paveikslėlyje yra pavaizduotos energijos lygmenų ir banginių vektorių diagramos, vaizduojančios faziškai sinchronizuotą žadinimo dažnio trigubinimą (TH), vykstantį nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo metu

ore – izotropinėje normaliosios dispersijos terpėje. Kaip matome (3.2.1 pav., b), šiuo atveju TH banginiai vektoriai  $\vec{k}_3$  ir  $\vec{k}'_3$  yra nukreipti į išorę sukirstų kampu ir sąveikaujančių žadinimo pluoštų atžvilgiu, todėl tolimojo lauko erdviniuose skirtiniuose TH yra matoma šalia žadinimo pluoštų. Naudojant plokščios bangos artinį ir banginių vektorių diagramą (3.2.1 pav., b) atitinkamos x ir y ašies projekcijos užrašomos taip:

$$n_1 \cos \alpha = n_3 \cos \beta, \quad (3.2.1)$$

$$5n_1 \sin \alpha = 3n_3 \sin \beta, \quad (3.2.2)$$

čia:  $n_1$  ir  $n_3$  yra PH ir TH lūžio rodikliai orui, o  $2\alpha$  ir  $2\beta$  – atitinkamai kampai tarp PH ir TH pluoštų. Taigi, iš (3.2.1–2) išraiškų galima rasti, kad nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo ore fazinio synchronizmo kampas  $2\alpha_0 \approx \sqrt{9\Delta n/2} \approx 10$  mrad, čia oro lūžio rodiklių skirtumas  $\Delta n = n_3 - n_1$ .



3.2.1 pav. (a) energijos lygmenų ir (b) banginių vektorių diagramos, vaizduojančios nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo reiškinių.

Be to, pagal izotropinių medžiagų netiesinio penktosios eilės optinio jautrio  $\chi^{(5)}$  tenzorių simetrijos savybes  $\chi_{xyyyyyyx}^{(5)} = \chi_{yxxxxxy}^{(5)}$  bei  $\chi_{xxxxxx}^{(5)} = \chi_{yyyyyy}^{(5)}$ . Tada mūsų eksperimentų atveju, kai žadinimo pluoštų poliarizacijos yra lygiagrečios, dažnio trigubinimas, naudojant ŠDM, galimas dėl tenzorius

komponentų  $\chi_{xxxxxx}^{(5)} = \chi_{yyyyyy}^{(5)}$ , o, kai poliarizacijos statmenos – dėl  $\chi_{xyyyyy}^{(5)} = \chi_{yxxxxx}^{(5)}$  komponentų. Taigi, esant lygiagrečioms žadinimo pluoštų poliarizacijoms, visų sąveikaujančių bangų poliarizacijos yra tos pačios. Tuo tarpu, kai žadinimo pluoštų poliarizacijos yra statmenos, generuojamų dviejų TH pluoštų poliarizacijos yra statmenos tiek viena kitai, tiek greta esančio žadinimo pluošto poliarizacijai.

Tikslus teorinis modelis, aprašantis galingų femtosekundinių lazerio impulsų sklidimą ore ir šviesos gijų susidarymą, reikalauja įskaityti daugybę tiesinių ir netiesinių optinių reiškinių tiek PH, tiek TH impulsams, kuriuos reikia aprašyti tiek erdviniais, tiek laikiniais parametrais. Tačiau mūsų eksperimentų sąlygomis reiškinių, susijusių su lazerio impulsų grupiniais greičiais ir dispersija, įtaka yra nedidelė, todėl į juos neatsižvelgiama. Be to, mūsų atveju nekolinearaus ŠDM teorinis modelis aprašomas, naudojant artinį – sąveika nesant kaupinimo bangos nuskurdinimo. Tada, naudojant lėtai kintančios amplitudės artinį ir įvedus koordinacių sistemą, judančią grupiniu greičiu  $v_g(\omega)$  ( $z \rightarrow z, t \rightarrow t - z/v_g(\omega)$ ), TH kompleksinės amplitudės  $A_{3,x}$  ir  $A_{3,y}$  užrašomos taip:

$$\frac{\partial A_{3,x}}{\partial z} + \frac{1}{2ik_3} \Delta_{\perp} A_{3,x} = i\sigma e^{i\Delta kz} A_{1,y}^4(\alpha) A_{1,x}^*(-\alpha), \quad (3.2.3)$$

$$\frac{\partial A_{3,y}}{\partial z} + \frac{1}{2ik_3} \Delta_{\perp} A_{3,y} = i\sigma e^{i\Delta kz} A_{1,x}^4(-\alpha) A_{1,y}^*(\alpha), \quad (3.2.4)$$

čia:  $A_{j,p}$  – PH ( $j = 1$ ) arba PH ( $j = 3$ ) lėtai kintanti kompleksinė amplitudė, o indeksas  $p$  nurodo pluošto poliarizaciją (jo reikšmės yra x arba y, t. y., atitinkamai  $p$ -poliarizacija arba  $s$ -poliarizacija). Tada  $\sigma = \frac{D^{(5)}k_3}{2n_3^2} \chi^{(5)}$ ,  
 čia:  $D^{(5)} = 5$  yra išsigimimo faktorius,  $\chi^{(5)}$  yra arba  $\chi_{xyyyyy}^{(5)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$  arba  $\chi_{yxxxxx}^{(5)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$ , o  $\Delta k = 3k_1 \cos \alpha - k_3$ . Be to, PH impulsas aprašomas Gauso funkcija:

$$A_{1,p}(x, y, z) = \frac{a_{1,p}}{1 + iz/L_d} \exp\left(-\frac{1}{1 + iz/L_d} \frac{x^2 + y^2}{w^2} - \frac{t^2}{\tau^2}\right), \quad (3.2.5)$$

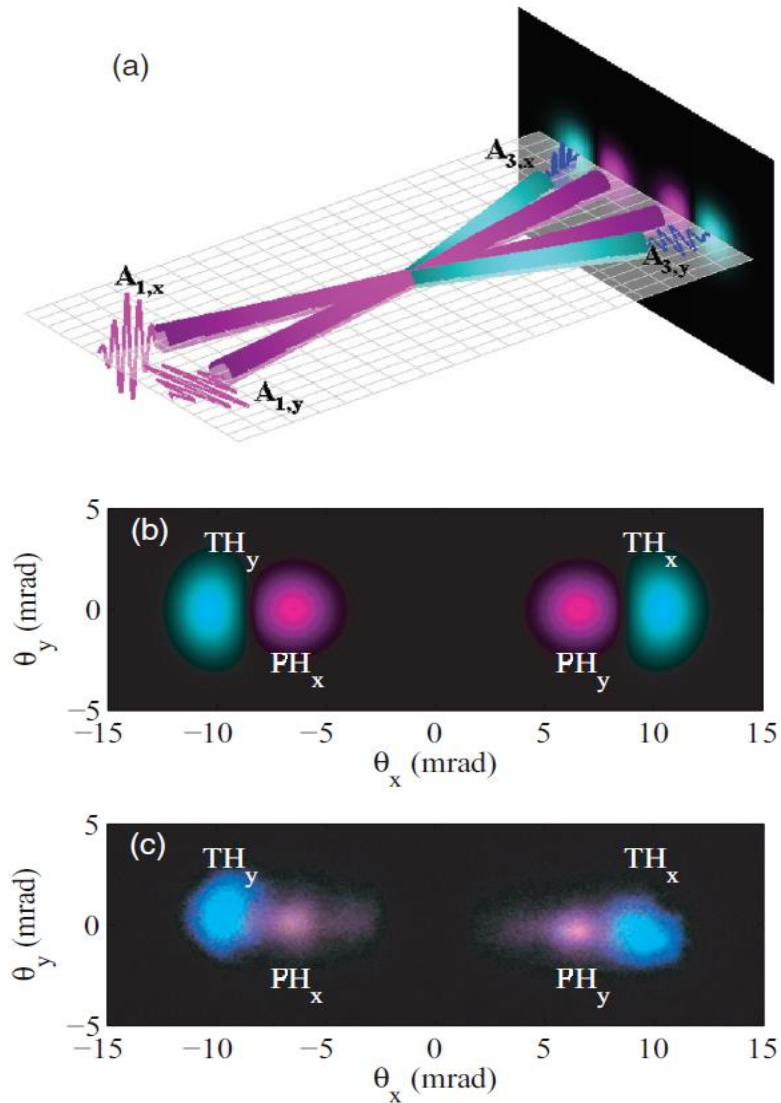
čia:  $a_{1,p}$  – amplitudė,  $L_d = k_1 w^2 / 2$  – difrakcijos ilgis, o  $w$  – pluošto spindulys sąsmaukoje. Tada lėtai kintanti pakreipto pluošto amplitudė aprašoma taip:  $A_{j,p}(\alpha) \equiv A_{1,p}(x \cos \alpha - z \sin \alpha, y, z \cos \alpha + x \sin \alpha)$ . Remiantis (3.2.3–4) lygtimis galima pastebėti, kad  $A_{3,x} \propto A_{1,y}^4 A_{1,x}$ , o  $A_{3,y} \propto A_{1,x}^4 A_{1,y}$ . Tada kiekvieno atskiro TH pluošto intensyvumai atitinkamai yra proporcingos  $I_{1,x} I_{1,y}^4$  ir  $I_{1,y} I_{1,x}^4$  nariams (čia  $I_{1,p}$  yra vieno žadinimo pluošto intensyvumas). Dėl šių priežasčių bendras TH efektyvumas yra proporcingas bendram žadinimo intensyvumui, pakeltam penktuoju laipsniu. Be to, tolimojo lauko TH struktūra apskaičiuojama taip: pradžioje skaitmeniškai sprendžiant (3.2.3–4) lygtis ir ieškant sprendinio  $A_{3,p}(p = x, y)$  žadinimo pluoštų persiklojimo regione  $0 \leq z \leq 2w / \sin \alpha$ , o tada skaičiuojant spektrą:

$$S_{3,p}(k_x, k_y) = \int_{-\infty}^{\infty} dx e^{-ik_x x} \int_{-\infty}^{\infty} dy e^{-ik_y y} A_{3,p}(x, y). \quad (3.2.5)$$

Naudojant šį teorinį modelį, gautas geras teorinių ir eksperimentinių duomenų sutapimas, net ir naudojant didesnes nei kritinę galia  $P_{cr}$  impulsų smailinės galias  $P_{SM}$  ( $P_{cr}$  apskaičiuojama, naudojant (1.3.1.2) išraišką).

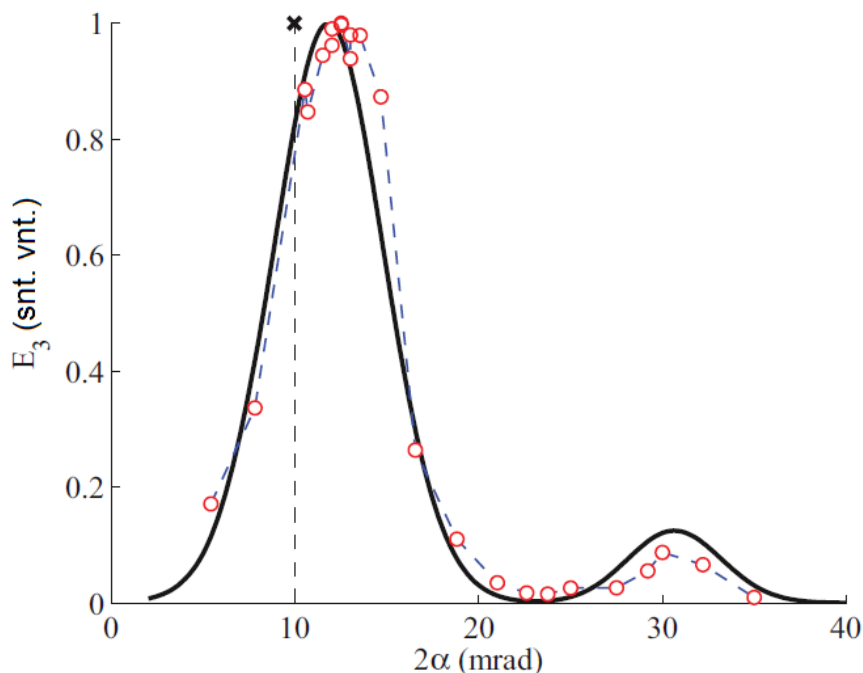
Kai du žadinimo PH pluoštai persiklojo ir erdvėje židinio aplinkoje, ir laike, dėl nekolinearaus ŠDM buvo stebima THG (3.2.2 pav., a). Kaip ir numato teorija (3.2.2 pav., b), du šviesūs TH pluoštai buvo generuojami žadinimo pluoštų išorėje (3.2.2 pav., c). Šis dėsningumas buvo stebimas, esant įvairiems žadinimo pluoštų susikirtimo kampams. Kaip matoma 3.2.2 paveikslėlyje (c), kai žadinimui naudojami statmenų poliarizacijų pluoštai, eksperimentinis erdvinis skirstinys susideda iš dviejų TH pluoštų, kurių poliarizacijos irgi yra statmenos, o šių TH pluoštų erdvinė vieta gerai sutampa su teoriškai numatyta (3.2.2 pav., b). Nėgana to, dar geresnis eksperimentinių ir teorinių duomenų sutapimas yra matomas grafike, kuriame pavaizduota generuojamos TH impulsų energijos  $E_3$  priklausomybė nuo žadinimo pluoštų suvedimo kampo (3.2.3 pav.). Taigi, tiek eksperimentiškai, tiek teoriškai gauti du THG maksimumai, esant žadinimo pluoštų susikirtimo kampui apie 13

mrad. Šiame grafike pavaizduota brūkšninė linija, kuri žymi 10 mrad kampą, gaunamą teoriškai plokščios bangos artinyje.



3.2.2 pav. (a) ŠDM ore, naudojant du statmenų poliarizacijų žadinimo pluoštus, suvestus mažu kampu, eksperimento schema. (b) teoriniai ir (c) eksperimentiniai PH ir TH pluoštų erdviniai skirstiniai tolimajame lauke. Eksperimento parametrai:  $\tau = 100$  fs, bendra žadinimo pluoštų impulsų energija – 1,9 mJ, o jų susikirtimo kampas – 13 mrad, PH pluoštų intensyvumų santykis 1:1. Indeksai žymi: 1 – žadinimo PH pluoštas, 3 – TH, x – s-poliarizacija, y – p-poliarizacija.

--



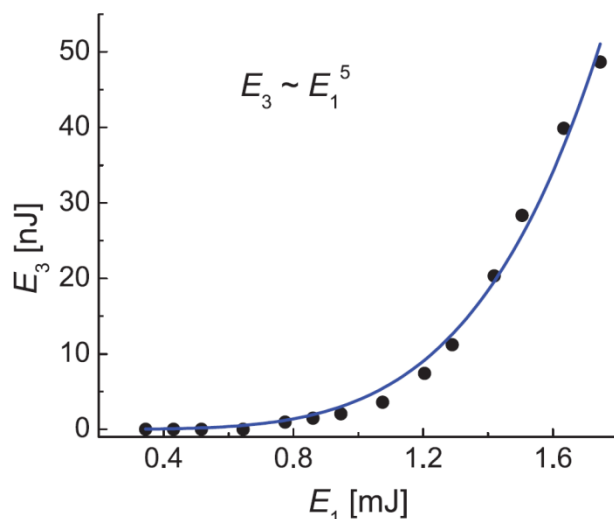
3.2.3 pav. Normuotos TH impulsų energijos  $E_3$  priklausomybė nuo žadinimo pluoštų suvedimo kampo  $2\alpha$ . Eksperimento parametrai:  $\tau = 100$  fs, bendra žadinimo pluoštų impulsų energija – 1,9 mJ, o jų intensyvumų santykis 1:1. Ištisinė linija – teorinė kreivė, o taškai – eksperimentiniai duomenys.

Be to, naudojant tiesioginį eksperimentinių (THG efektyvumas) ir teorinių ((3.2.3–4) lygtys) duomenų palyginimą, nustatyta oro penktosios eilės netiesinio optinio jautrio tenzoriaus  $\chi_{xyyyyx}^{(5)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$  vertė, kuri lygi  $2 \cdot 10^{-49} \text{ (m/V)}^4$ . Kadangi tenzoriaus  $\chi_{xyyyyx}^{(5)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$  vertę nustatyti pirmą kartą, todėl tiesioginių palyginimų su literatūroje aprašytomis vertėmis negalime daryti, nes jų nėra. Tačiau literatūroje yra eksperimentiškai nustatyti Kerro efekto aukštesnės eilės koeficientai įvairioms dujomis ir orui [115]. Taigi, minėtame straipsnyje [115] randame, kad, esant 800 nm bangos ilgiui, oro aukštesnės eilės netiesinis lūžio rodiklis  $n_4 = -0,45 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^4/\text{TW}^2$ , o oro penktosios eilės netiesinio optinio jautrio tenzorius  $\chi_{xyyyyx}^{(5)}(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega) = (8/5)(c\varepsilon_0 n)^2 n_4 \approx 2 \cdot 10^{-46} \text{ (m/V)}^4$ . Palyginus  $\chi_{xyyyyx}^{(5)}(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)$  ir

$\chi_{xyyyyx}^{(5)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$  vertes atrodo, kad pirmiausia turėtų pasireikšti kaupinimo bangos savimoduliacijos efektas, o ne THG dėl ŠDM, tačiau oro netiesinių lūžio rodiklių ženklai sudaro alternuojančią seką, t. y.,  $n_2 > 0$ ,  $n_4 < 0$ ,  $n_6 > 0$ ,  $n_8 < 0$  ir  $n_{10} > 0$ , todėl bendro lūžio rodiklio pokyčiai dėl netiesinių lūžio rodiklių yra artimi 0, kai intensyvumas  $I = 26 \text{ TW/cm}^2$  [115]. Taigi, ir mūsų eksperimentų atveju šie lūžio rodiklio pokyčiai buvo santykinai maži tam, kad įtakotų THG dėl ŠDM.

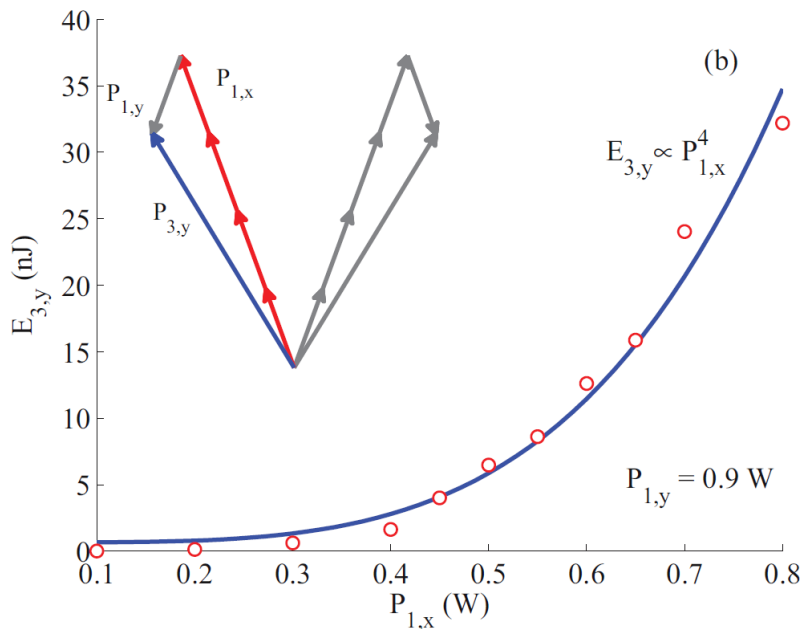
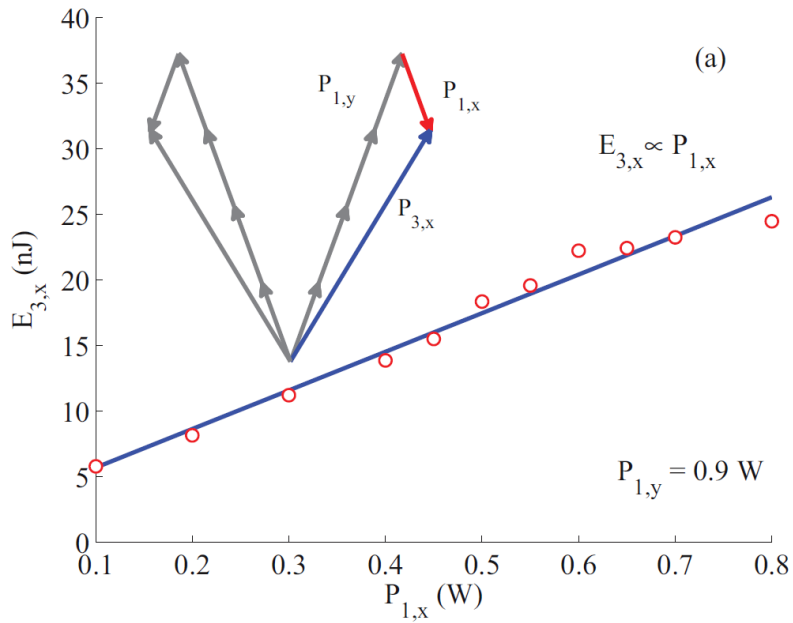
Verta paminėti, kad THG dėl ŠDM vyko net ir esant itin mažoms žadinančių impulsų energijoms (mažiau nei 0,2 mJ kiekvienam žadinimo pluoštui), kai nebuvo stebėti nei šviesos gijų susidarymo nei elektronų plazmos generacijos reiškiniai. Tai reiškia, kad su elektronų plazma susiję efektai mūsų eksperimentų metu neturėjo didelės įtakos. Be to, kaip matoma (3.2.3–4) lygtyse, bendras TH efektyvumas yra proporcingas bendram žadinimo intensyvumui, pakeltam penktuoju laipsniu (3.2.4 pav.). Tuo tarpu atskirai kiekvieno TH pluošto galios atitinkamai yra proporcingos  $I_{1,x}I_{1,y}^4$  ir  $I_{1,y}I_{1,x}^4$  nariams. Taigi, buvo galima tirti ir atskirai kiekvieno generuojamo TH impulso energijos priklausomybes nuo vieno iš žadinimo pluoštų galios, kai kito žadinimo pluošto galia buvo pastovi (3.2.5 pav.). Šiuo atveju taip pat buvo stebimas geras eksperimentinių ir teorinių duomenų sutapimas (3.2.5 pav.), nes gautuose grafikuose duomenys aproksimuoti tiesine ir ketvirtojo laipsnio funkcijomis. Tai reiškia, kad ŠDM metu vienas TH fotonas gaunamas, kai keturi fotonai iš vieno žadinimo pluošto sąveikauja su vienu fononu iš kito žadinimo pluošto.





3.2.4 pav. TH impulsų energijos  $E_3$  priklausomybė nuo bendros žadinimo pluoštų impulsų energijos  $E_1$ . Eksperimento parametrai:  $\tau = 100$  fs, žadinimo pluoštų susikirtimo kampas – 13 mrad, PH pluoštų intensyvumų santykis 1:1. Ištinė linija – teorinė penkto laipsnio funkcijos kreivė, taškai – eksperimentiniai duomenys.

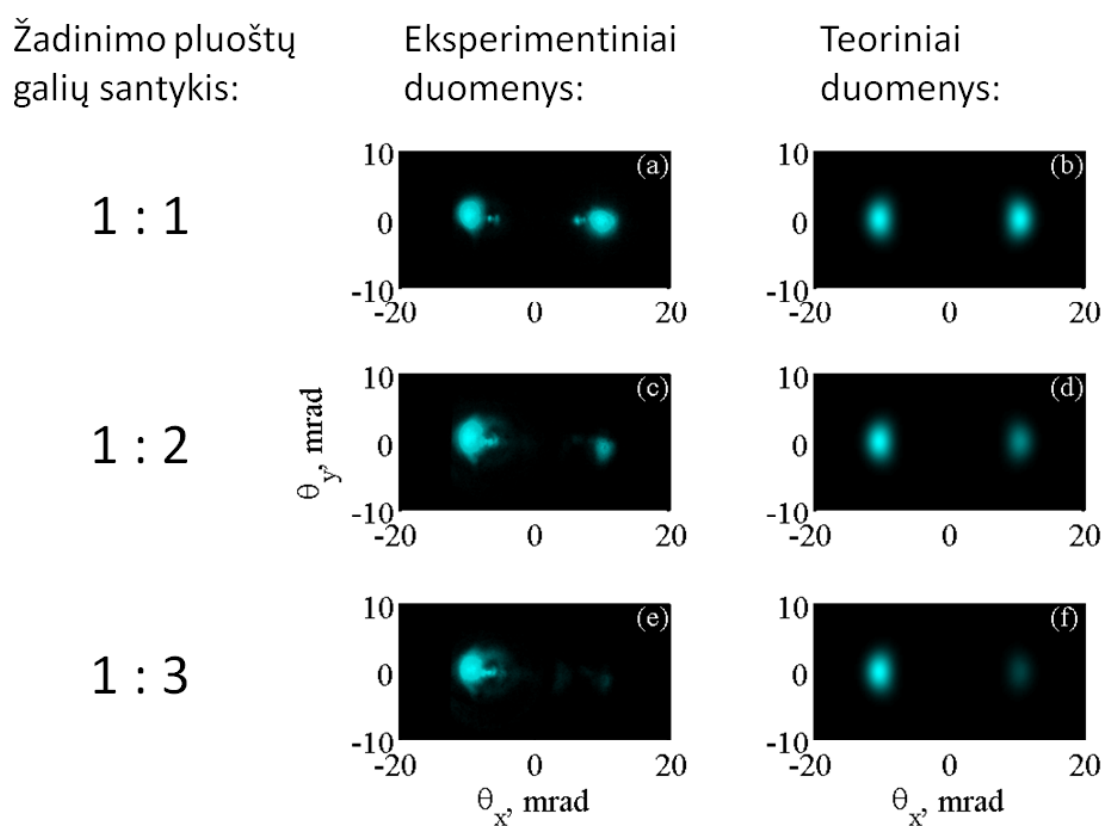
Naudojant 2 mJ energijos žadinimo impulsus, bendra dėl ŠDM generuojamos TH impulsų energija buvo apie 200 nJ, o generacijos efektyvumas atitinkamai buvo apie  $10^{-4}$ . Tuo tarpu, kai eksperimentams buvo naudojamas vienas žadinimo pluoštas (irgi 2 mJ impulsų energijos), sufokusuotas tokio pat ilgio židinio nuotolio (1 m) lęšiu, maksimali užregistruota trečiosios harmonikos, atsirandančios dėl trečios eilės optinio netiesiškumo, impulsų energija nesiekė kelių nJ. Tai reiškia, kad, esant šioms eksperimento sąlygoms ( $\tau = 100$  fs,  $E = 2$  mJ,  $f = 1$  m), dėl ŠDM generuojamos TH efektyvumas buvo daugiau, nei dviem eilėm didesnis nei tuo atveju, kai buvo naudojamas vienas žadinimo pluoštas. Negana to, literatūroje pateikti didžiausi dėl penktos eilės netiesiškumų dujose (argono) generuojamų harmonikų (penktosios) efektyvumai: eksperimentiškai užregistruota vertė –  $10^{-6}$  [74], o teoriškai gauta –  $10^{-4}$  [73]. Šie efektyvumai yra panašių verčių kaip ir ŠDM atveju ( $10^{-4}$ ). Be to, 3.2.2–5 paveikslėliuose pavaizduotus duomenis galima rasti [A1] straipsnyje.



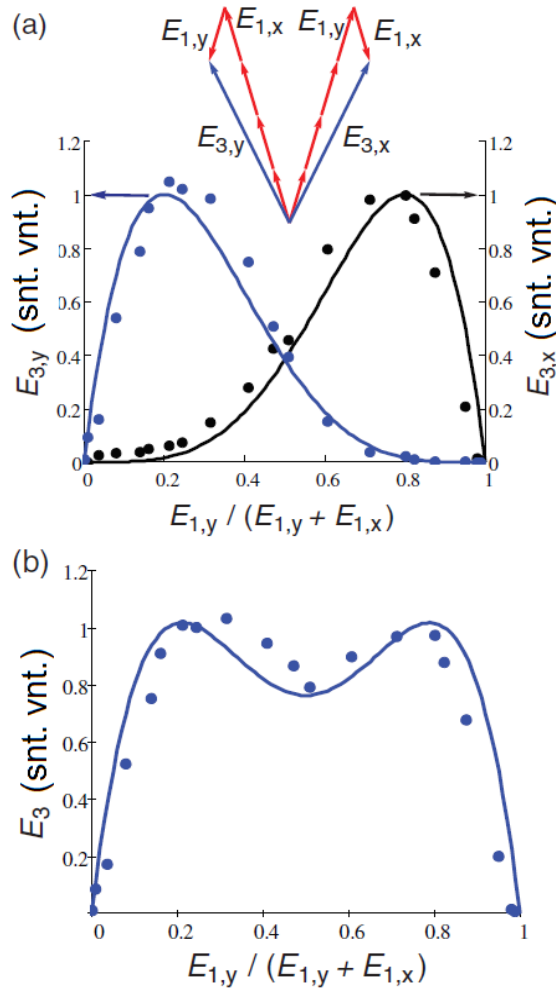
3.2.5 pav. TH impulsų energijos  $E_3$  priklausomybė nuo žadinimo pluošto galios  $P_{1,x}$ , kai kito pluošto galia  $P_{1,y}$  pastovi. Registruojama TH sklinda šalia žadinimo pluošto, kurio galia: (a) pastovi; (b) keičiama. Eksperimento parametrai:  $\tau = 100$  fs, žadinimo pluoštų susikirtimo kampas – 13 mrad, PH pluoštų intensyvumų santykis 1:1. Ištininės linijos – teorinės kreivės, taškai – eksperimentiniai duomenys.

Naudojant dviejų žadinimo pluoštų konfigūraciją ir siekiant optimizuotos energines bei erdvines nekolinarus ŠDM ore charakteristikas,

buvo atliktas eksperimentas, keičiant dviejų žadinimo pluoštų intensyvumų santykį. Taigi, kai žadinimo pluoštų intensyvumų santykis buvo 1:1 (3.2.6 pav., a), buvo generuojami du vienodos galios TH pluoštai. Tačiau, keičiant žadinimo pluoštų intensyvumų santykį, daugumą energijos buvo galima koncentruoti viename iš TH pluoštų (3.2.6 pav., c). Šie tyrimai parodė, kad beveik visą generuojamos trečiosios harmonikos energiją iš dviejų pluoštų galima perduoti į vieną Gausinės formos TH pluoštą. Šios nekolinearaus ŠDM savybės buvo patvirtintos ir atliekant teorinius skaičiavimus (3.2.6 pav., b, d).



3.2.6 pav. Tolimojo lauko TH pluoštų erdviniai skirstiniai, esant skirtingam žadinimų pluoštų galių santykiui, kai bendra žadinimo pluoštų impulsų energija yra 2 mJ, jų susikirtimo kampas – 13 mrad, o  $\tau = 100$  fs.



3.2.7 pav. (a) kiekvieno iš dviejų TH pluoštų impulsų energijų ( $E_{3,x}$  ir  $E_{3,y}$ ) bei (b) bendros TH impulsų energijos  $E_3$  priklausomybės nuo vieno iš žadinimo pluošto impulsų energijos  $E_{1,y}$ , kai yra keičiamas PH pluoštų intensyvumų santykis ( $E_{1,y} / E_{1,x}$ ), o bendra jų energija  $E_1$  yra pastovi ir lygi 2 mJ. Eksperimento parametrai:  $\tau = 100$  fs, o žadinimo pluoštų susikirtimo kampas – 13 mrad. Išsines linijos – teorinės kreivės, o taškai – eksperimentiniai duomenys.

Siekiant paaiškinti ŠDM energijos perdavimo efektą iš vieno TH pluošto į kitą, kai yra keičiamas žadinimo pluoštų intensyvumų santykis, pirmiausia tariama, kad bendra dviejų žadinimo pluoštų impulsų energija lygi  $E_1 = E_{1,x} + E_{1,y}$ , čia  $E_{1,x}$  ir  $E_{1,y}$  yra atskirų žadinimo pluoštų impulsų energijos, kaip pavaizduota vektorių diagramoje 3.2.7 paveikslėlyje (a), kur indeksai 1 ir 3 atitinkamai žymi PH ir TH impulsų energijas. Tada bendrą generuojamos

TH impulsų energiją galima išreikšti taip:  $E_3 = E_{3,x} + E_{3,y}$ , čia  $E_{3,x}$  ir  $E_{3,y}$  yra atskirų TH impulsų energijos, kurios, kaip yra matoma iš (3.2.3–4) lygčių, aprašomos taip:

$$E_{3,x} \propto E_{1,x}E_{1,y}^4 = (E_1 - E_{1,y})E_{1,y}^4, \quad (3.2.6)$$

$$E_{3,y} \propto E_{1,y}E_{1,x}^4 = E_{1,y}(E_1 - E_{1,y})^4. \quad (3.2.7)$$

(3.2.6–7) lygtys aiškiai parodo, kad ŠDM metu žadinimo energijos koncentravimas viename pluošte sąlygoja vieno galingo ir vieno silpno TH pluoštų generaciją. Skaitmeniniai skaičiavimai, remiantis (3.2.3–5) lygtimis, taip pat patvirtina šiuos nekolinearaus ŠDM dėsninumus (3.2.6 pav., b, d, f).

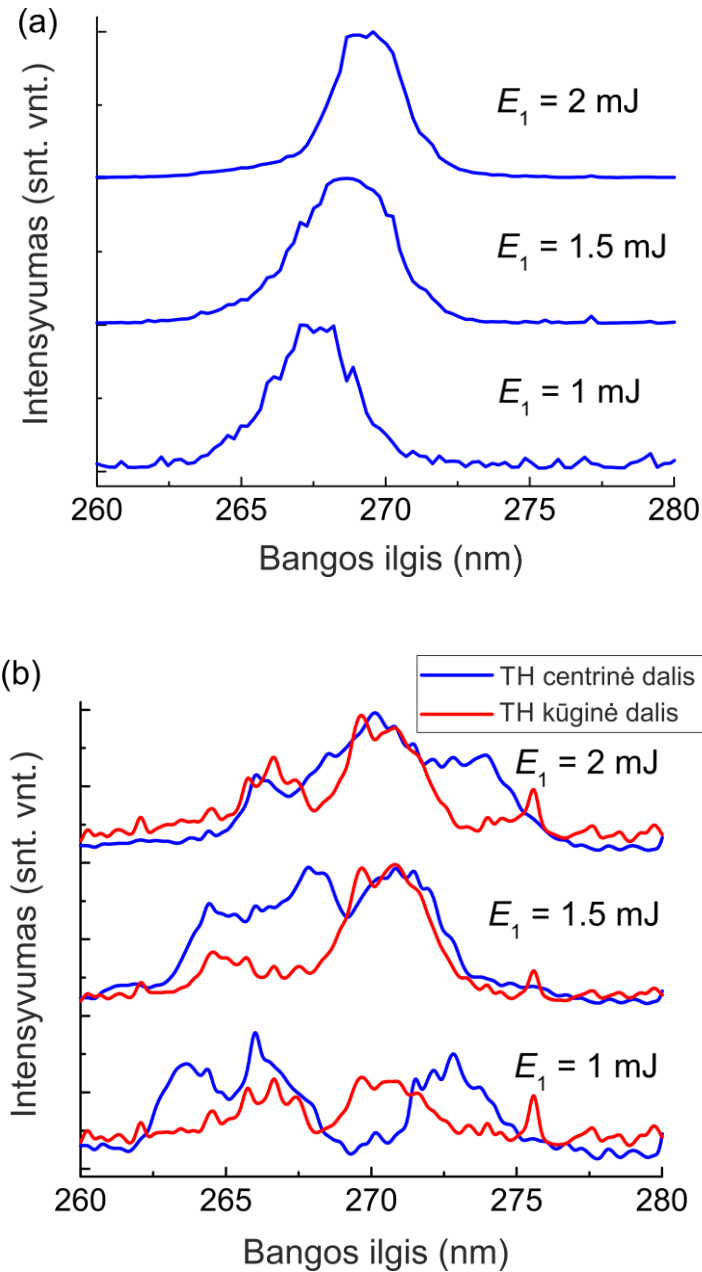
Eksperimentiškai užregistruotos nekolinearaus ŠDM reiškinių TH energinės charakteristikos, keičiant žadinimo pluoštų intensyvumų santykį, buvo palygintos su teoriniais duomenimis (3.2.7 pav.), gautais, naudojant (3.2.6–7) lygtis. Geras teorinių ir eksperimentinių duomenų sutapimas matomas tiek atskirų TH pluoštų (3.2.7 pav., a), tiek bendros generuojamos TH (3.2.7 pav., b) impulsų energijų priklausomybių nuo vieno iš žadinimo pluošto impulsų energijos  $E_{1,y}$  atvejais. Tačiau šių priklausomybių pradžioje (kai normuotos  $E_{1,y}$  vertės kinta nuo 0 iki 0,15) ir pabaigoje (kai normuotos  $E_{1,y}$  vertės kinta nuo 0,85 iki 1) eksperimentinių TH impulsų energijų vertės yra mažesnės nei teorinės, apskaičiuotos pagal (3.2.6–7) lygtis. Tai galima paaiškinti tuo, kad šiuose žadinimo pluoštų impulsų energijų diapazonuose vieno iš žadinimo pluoštų intensyvumas yra itin mažas, palyginus su kito pluošto intensyvumu (eksperimentų metu žadinimo pluoštų impulsų energija buvo perduodama iš vieno pluošto į kitą, o tuo tarpu bendra impulsų energija buvo pastovi, t. y. vienam žadinimo pluoštui tampant galingesniu, kitas pluoštas silpnėdavo). Dėl šių priežasčių vieno iš žadinimo pluoštų galia būdavo per maža ir neviršijo kritinės fokusavimosi galios, todėl šis pluoštas nesufurmudavo šviesos gijos, reikalingos efektyviai netiesinei sąveikai nekolineariam ŠDM.

(3.2.6–7) lygčių išvestines prilyginus nuliui, galima rasti, kad TH generacijos efektyvumo maksimumai gaunami, kai žadinimo impulsų energijų  $E_{1,y}$  vertės yra 0,2 ir 0,8. Tai atitinka žadinimo pluoštų intensyvumų santykio

$E_{1,y}/E_{1,x}$  vertės 1:4 bei 4:1. Šie maksimumai gerai matomi ir 3.2.7 paveikslėlyje (a). Negana to, kaip matoma iš (3.2.6–7) lygčių, esant maksimaliam THG efektyvumui (kai  $E_{1,y}$  vertės yra 0,2 ir 0,8), gaunamas papildomas generuojamų TH impulsų energijos padidėjimas iki 25%, lyginant su atveju, kai  $E_{1,y} = 0,5$ , t. y. kai žadinimo pluoštų intensyvumų santykis yra 1:1 (3.2.7 pav., b). Taigi, šie tyrimai (3.2.6–7 pav.) parodė, kad beveik visą generuojamos trečiosios harmonikos energiją iš dviejų pluoštų galima perduoti į vieną Gausinės formos TH pluoštą, kurio vienas TH fotonas gaunamas, kai 4 fotonai iš vieno žadinimo pluošto sąveikauja su 1 fotonu iš kito žadinimo pluošto, todėl maksimalus efektyvumas būna, kai santykis atitinkamai yra 4:1 (arba 1:4, jei beveik visa TH energija yra perduodama į kitos pusės TH pluoštą).

Verta paminėti, kad šviesos gijų susidarymo metu PH (žadinimo) ir TH pluoštų spektrai išplinta dėl tokių reiškinių, kaip plazmos generacija [54-59], fazės moduliavimasis [60, 61], kryžminė fazės moduliacija [62, 63] ir impulso laikinės formos fronto statėjimas [64-66]. Dėl šių priežasčių buvo eksperimentiškai tiriami ir nekolinearaus ŠDM ore generuojamos TH spektrai, esant įvairioms žadinimo pluoštų impulsų energijoms (3.2.8 pav., a). Pastebėta, kad, kai PH pluoštų impulsų energija  $E_1$  buvo mažesnė arba lygi 1 mJ, ŠDM metu generuojamos TH spektro maksimalus bangos ilgis buvo apie 267 nm, ir ši vertė atitinka TH centrinio teorinio bangos ilgio vertę, kai PH bangos ilgis yra 800 nm. Negana to, net esant dideliems intensyvumams, kai  $E_1$  buvo lygi 2 mJ, TH spektrų centrinis bangos ilgis buvo pasislinkęs į ilgesnių bangų pusę tik apie 1,6 nm. Be to, ŠDM metu generuojamos TH spektro plotis buvo apie 3 nm (FWHM) ir didinant impulsų energiją  $E_1$  iki 2 mJ liko nepakitęs, taigi, šiuo atveju spektrinis platėjimas nebuvo stebėtas. Be to, užregistruoti TH spektrai buvo Gauso formos, o didinant žadinimo impulsų energiją išliko beveik nepakitę. Tuo tarpu tiesioginės THG atveju, kai naudojamas vienas žadinimo pluoštas, esant tai pačiai žadinimo impulsų energijai, stebėti kur kas didesni spektriniai poslinkiai (3.2.8 pav., b). Be to, taip generuojamos TH spektrinė struktūra buvo sudėtinga net ir esant 1 mJ žadinimo impulsų energijai. Negana to, ŠDM metu generuojamos TH spektrinis plotis buvo daugiau nei 2 kartus

siauresnis, nei gautas, naudojant vieną žadinimo pluoštą. Daugiau informacijos apie tokius sudėtingus TH spektrus, gaunamus net ir naudojant mažas žadinimo impulsų energijas, pateikta tiek cituojamoje literatūroje [1, 2], tiek 2-ame šios disertacijos skyriuje.



3.2.8 pav. (a) nekolinearaus ŠDM metu ir (b) tiesiogiai generuojamos TH eksperimentiniai spektrai, esant skirtingoms PH žadinimo impulsų energijoms  $E_1$ . Eksperimento parametrai:  $\tau = 100$  fs,  $\omega = 1$  m. ŠDM atveju žadinimo pluoštų susikirtimo kampas – 13 mrad, o jų intensyvumų santykis 1:1.

Be to, 3.2.6–8 paveikslėliuose pavaizduotus duomenis galima rasti [A4] straipsnyje.

Reziumuojant, skaitmeninio modeliavimo rezultatai ir eksperimentiniai duomenys rodo, kad ore buvo gautas faziškai sinchronizuotas nekolinearus ŠDM ir tai sąlygojo efektyvų žadinimo spinduliuotės dažnio trigubinimą. Geras eksperimentinių ir teorinių duomenų atitikimas leidžia manyti, kad, esant mūsų eksperimento sąlygoms ( $\lambda = 800$  nm,  $\tau = 100$  fs,  $E \leq 2$  mJ,  $f = 1$  m), netiesinės optikos perturbacinis artinys galioja ir yra teisingas. Kita vertus, šis procesas turėtų būti stebimas ir esant itin dideliems lazerio pluošto intensyvumams, kai perturbacinis poliarizuojamumo artinys nebegalioja, ir aukštesnių eilių netiesinių optinių procesų tikimybės būtų tokias pačias kaip tiesioginės THG, sąlygojamos trečios eilės optinio netiesiškumo. Be to, pademonstruota, kad ŠDM metu erdvinės ir energinės TH charakteristikos buvo optimizuotos ir žymiai pagerintos, keičiant dviejų žadinimo pluoštų intensyvumų santykį. Kai šis santykis buvo 1:4 arba 4:1, šis metodas leido beveik visą generuojamos TH energiją iš dviejų pluoštų perduoti į vieną Gauso formos TH pluoštą. Tokiomis sąlygomis bendra trečiosios harmonikos energija padidėjo 25% lyginant su atveju, kai santykis yra 1:1. Nėgana to, naudojant ŠDM, buvo optimizuotos ir spektrinės TH charakteristikos: ŠDM metu generuojamos TH spektro plotis buvo daugiau nei 2 kartus siauresnis nei gautas, naudojant vieną žadinimo pluoštą. Dėl to galima teigti, kad ŠDM gali būti naudojamas kaip optinis derinamo dažnio pluošto daliklis, galintis tolygiai keisti TH pluoštų intensyvumų santykį bei poliarizaciją UV ir VUV spektro diapazonuose. Be to, kadangi dujų, įskaitant orą, optinė dispersija yra maža, fazinio sinchronizmo sąlygos nekolineariam ŠDM turėtų būti tenkinamos plačiuose eksperimento sąlygų diapazonuose (bangos ilgių, fokusavimo sąlygų, žadinimo impulsų energijų ir pan.). Taip pat dėl to, kad ŠDM fazinio sinchronizmo kampai yra nedideli (mrad eilės), fokusuojant vieną žadinimo pluoštą trumpo židinio nuotolio lęšiu dėl atsiradusios banginių vektorių skėsties, ŠDM fazinio sinchronizmo sąlygos turėtų būti tenkinamos automatiškai. Kadangi ŠDM fazinis sinchronizmas galimas plačiame bangos



ilgių diapazone, šis reiškinys turėtų būti tinkamas tiek generuoti, tiek tirti itin trumpus ir plataus spektro femtosekundinius lazerio impulsus. Be to, nekolinearaus ŠDM dviejų pluoštų žadinimo konfigūracija leidžia tiesiog erdvėje atskirti žadinimo ir generuojamos TH pluoštus, kas yra itin sudėtinga UV ir VUV spektro diapazonuose. Nėgana to, toks nekolinearus ŠDM gali būti naudojamas ir kaip optinis jungiklis, kontroliuojantis generuojamos UV spinduliuotės poliarizaciją. Taigi, ŠDM gali rasti taikymų ne tik kaip dažnio trigubinimas plačiame bangų diapazone, bet gali būti naudojamas ir daugybėje kitų mokslo ir technologijų sričių tokių kaip dujų spektroskopija, distancinė atmosferos teršalų detekcija ar lazerio impulsų charakterizavimas.

## 4. ŠEŠIABANGIO DAŽNIŲ MAIŠYMO NAUDOJIMAS FEMTOSEKUNDINIŲ LAZERIO IMPULSŲ LAIKINIAM IR SPEKTRINIAM CHARAKTERIZAVIMUI

Daugelyje technologinių ir mokslinių tyrimų sričių ultratrumpųjų lazerio impulsų laikinės formos ir trukmės matavimai yra itin svarbūs lazerio impulsų charakterizavimui. Tokiai impulsų diagnostikai plačiausiai naudojamos antrosios eilės lazerio impulsų intensyvumo autokoreliacinės funkcijos, registruojamos, naudojant antrosios harmonikos (AH) generaciją [84-92]. Nepaisant antrosios harmonikos generacijos (AHG) metodo paprastumo ir populiarumo, aukštesnių eilių intensyvumo autokoreliacinių funkcijų matavimai [93-103] yra jautresni, o gaunamų autokoreliacinių funkcijų forma yra panašesnė į laikinę lazerio impulso formą. Be to, skirtingai nei antrosios eilės autokoreliacijos, aukštesnių eilių autokoreliacinės funkcijos suteikia informaciją apie galimą matuojamo impulso laikinės formos asimetriją. Negana to, THG ir keturbangiui dažnių maišymui nereikia netiesinių kristalų, kurie yra būtini AHG atveju, nes nenulinius trečiosios eilės netiesinio optinio jautrio koeficientus turi visos terpės. Tačiau normaliosios dispersijos srityje THG nėra fazinio sinchronizmo (jis įmanomas tik itin siaurose dujų srityse prie rezonansinių šuolių dažnių), o kiti minėti aukštesnių eilių metodai [90-96] nėra plačiai naudojami dėl jų sudėtingumo ir painios eksperimentinių duomenų interpretacijos. Kita vertus, siekiant gauti kuo išsamesnę informaciją apie lazerio impulso elektrinį lauką (fazę, dažnių pasiskirstymą laike ir t. t.), naudojami kiti, sudėtingesni, impulsų charakterizavimo metodai, pavyzdžiui, optinės sklendės su dažnine skyra matavimai (angl. *Frequency-Resolved Optical Gating* – FROG) [104, 105] ir SPIDER (angl. *Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction*) [114]. Tačiau šie metodai taip pat yra sudėtingi, todėl paprastų impulso autokoreliacijų matavimo metodai vis dar yra plačiai naudojami. Šios

priežastys motyvavo mus ištirti nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo ore pritaikymo galimybes, registruojant penktosios eilės intensyvumo autokoreliacijas. Reikia pažymėti, jog tokias autokoreliacijas lengva gauti eksperimentiškai, o jų interpretacija yra pakankamai paprasta. Manome, kad šiuo metodu galima registruoti itin galingų ir trumpų femtosekundinių lazerio impulsų laikines formas, nes tokie eksperimentai gali būti atlikti izotropinėse medžiagose fokusuojant žadinimo pluoštus t. y. tiek kietuose kūnuose, tiek skysčiuose, tiek dujose, kuriose nėra optinių elementų pažeidimo galimybės ir nereikia naudoti brangių netiesinių optinių kristalų.

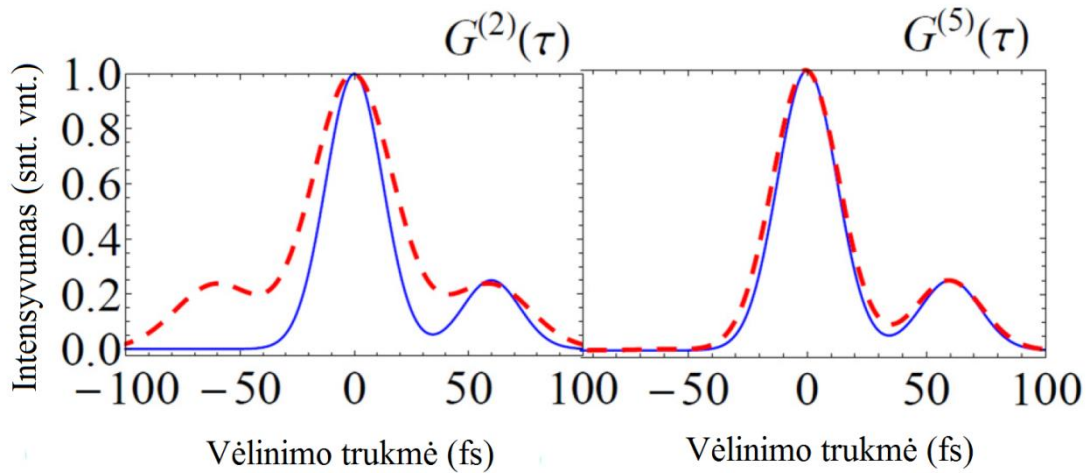
Siekiant pademonstruoti aukštesnių eilių autokoreliacinių funkcijų privalumus, pirmiausiai nubraižėme grafikus, vaizduojančius asimetrinę impulsų laikinę formą, kai naudojamos dvi Gauso funkcijos, bei šios formos antrosios ( $G^{(2)}(\tau)$ ) ir penktosios ( $G^{(5)}(\tau)$ ) eilių intensyvumo autokoreliacines funkcijas (4.1 pav.). Teorinės autokoreliacinių funkcijų kreivės buvo braižomos, naudojant šią lygtį:

$$G^{(n)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_L^{n-1}(t)I_L(t - \tau)dt, \quad (4.1)$$

čia:  $n$  – yra autokoreliacinės funkcijos eilė (antrosios eilės  $n = 2$ , o penktosios –  $n = 5$ ),  $\tau$  – vėlinimo trukmė tarp dviejų žadinimo impulsų, o  $I_L(t)$  yra žadinimo pluošto intensyvumo laikinė forma. Lengva pastebėti, jog skirtingai nuo antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos  $G^{(2)}(\tau)$ , penktosios eilės autokoreliacinė funkcija  $G^{(5)}(\tau)$  yra itin panaši į tiriamo impulso laikinę formą bei teikia informaciją apie jo asimetriją (4.1 pav.). Be to,  $G^{(2)}(\tau)$  atveju daug laikinių funkcijų turi lygiai tokią pačią autokoreliaciją, todėl sunku gauti informaciją apie tikslią impulso (ar impulsų) laikinę formą. Be to,  $n$ -osios eilės autokoreliacinės funkcijos plotis  $\tau_A$  ir impulso trukmė  $\tau_L$  yra tiesiogiai susiję. Lazerio impulso, turinčio Gauso laikinę formą, atveju šis sąryšis yra toks:

$$\tau_A = \sqrt{\frac{n}{n-1}}\tau_L. \quad (4.2)$$

Iš (4.2) išraiškos matome, kad kuo eilė  $n$  yra didesnė, tuo  $\tau_A$  vertė yra panašesnė į  $\tau_L$ .



4.1 pav. Dviejų Gauso funkcijų laikinė forma (ištisinės linijos) bei jos antrosios  $G^{(2)}(\tau)$  (kairėje) ir penktosios  $G^{(5)}(\tau)$  (dešinėje) eilės intensyvumo autokoreliacinės funkcijos (brūkšninės linijos).

Siekiant teoriškai įvertinti nekolinearaus ŠDM ore galimybes penktosios eilės intensyvumo autokoreliacijų registravimui, reikia aptarti pagrindines ŠDM charakteristikas bei atsakyti į šiuos klausimus:

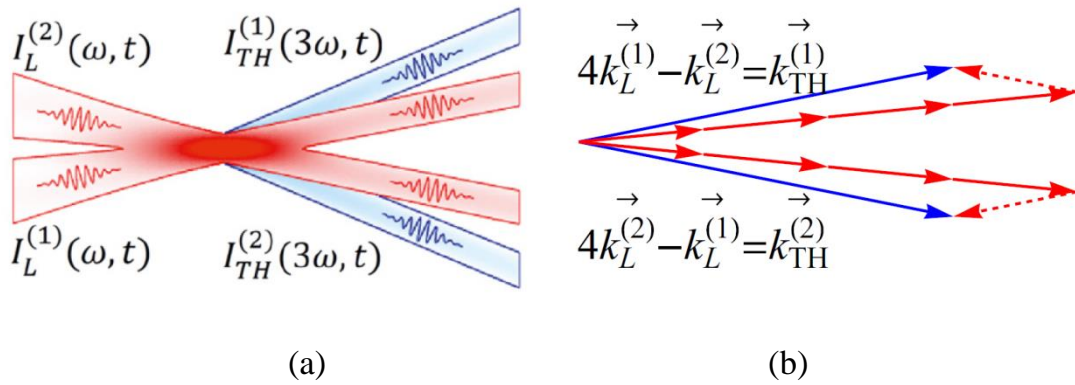
1. Koks yra ŠDM efektyvumas, esant mūsų eksperimentų sąlygomis?
2. Kiek kartų ŠDM efektyvumas yra didesnis už tiesioginės THG efektyvumą (nes ji taip pat gali būti naudojama autokoreliacijų registravimui)?
3. Kokiam spektriniame diapazone būtų įmanoma naudoti ŠDM dujose, registruojant autokoreliacines funkcijas?
4. Kokios mažiausios trukmės femtosekundinio lazerio impulsus galima būtų registruoti, naudojant nekolinearų ŠDM?

Taigi, aptarkime dviejų žadinimo pluoštų konfigūraciją, naudojamą ŠDM ore bei taip generuojant TH spinduliuotę, kurios pluoštai dėl fazinio sinchronizmo sąlygų atsiskiria erdvėje nuo PH žadinimo pluoštų (4.2 pav.). Toks erdvinis žadinimo ir generuojamų bangų atskyrimas leidžia registruoti autokoreliacijų funkcijas be foninio signalo, o tai padidina matavimo jautrumą.

Taigi, toli nuo dujų rezonanso, ŠDM metu generuojamos TH elektrinis laukas su kompleksine amplitude  $\varepsilon_{TH}$  aprašomas taip:

$$\varepsilon_{TH} = \varepsilon_{TH}^{(1)} + \varepsilon_{TH}^{(2)} \sim \chi^{(5)} (\varepsilon_L^{(1)4} \varepsilon_L^{(2)*} + \varepsilon_L^{(2)4} \varepsilon_L^{(1)*}), \quad (4.3)$$

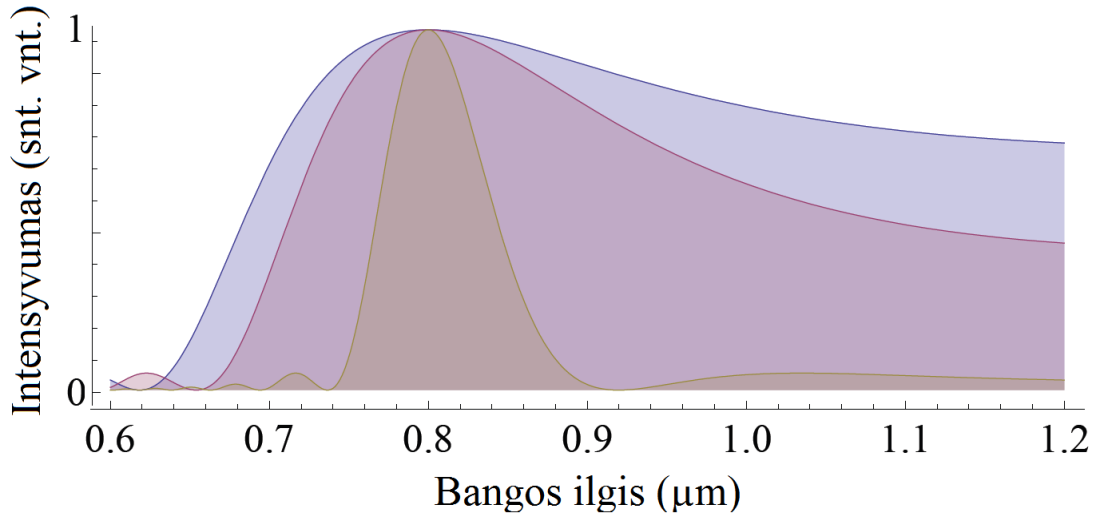
čia:  $\varepsilon_{TH}^{(1)}$  ir  $\varepsilon_{TH}^{(2)}$  yra dviejų generuojamų TH pluoštų elektriniai laukai su kompleksine amplitude,  $\chi^{(5)}$  – netiesinis nerezonansinis penktosios eilės optinis jautris, o  $\varepsilon_L^{(1)}$  ir  $\varepsilon_L^{(2)}$  atitinkamai yra dviejų skirtingų PH žadinimo pluoštų elektriniai laukai su kompleksine amplitude. Be to, ŠDM metu vyksta žadinimo pluoštų dažnio  $\omega$  trigubinimas t. y. generuojama TH spinduliuotė, kurios dažnis yra  $\omega_{TH} = 4\omega^{(1,2)} - \omega^{(1,2)}$ , čia indeksai 1 ir 2 atitinkamai žymi du skirtingus žadinimo pluoštus (4.2 pav.). Kadangi mūsų eksperimentų metu registruojama vieno iš TH pluoštų impulsų energija, tai, keičiant vėlinimo trukmę tarp dviejų žadinimo PH impulsų  $\tau$ , galima užregistruoti signalą proporcingą intensyvumui  $|\varepsilon_{TH}^{(1)}|^2$  (arba  $|\varepsilon_{TH}^{(2)}|^2$ ), kurio forma atitinka penktosios eilės autokoreliacinę funkciją  $G^{(5)}(\tau)$ .



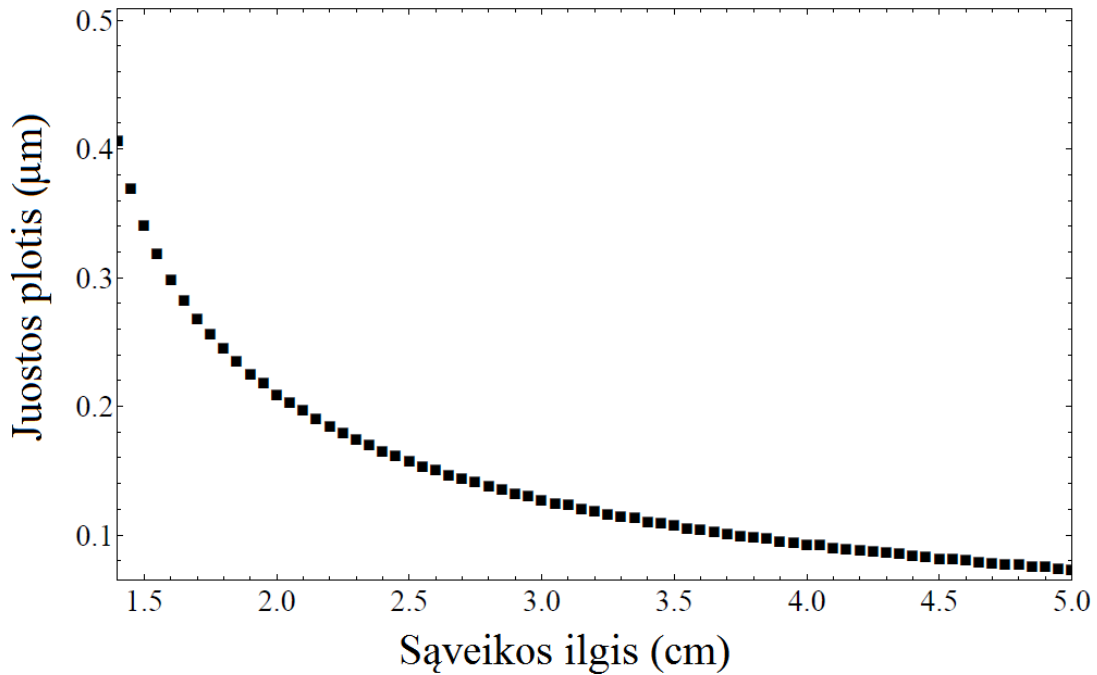
4.2 pav. (a) Dviejų žadinimo pluoštų, kurių intensyvumas  $I_L(t)$ , ŠDM konfigūracija, kai generuojami du TH pluoštai, kurių intensyvumas  $I_{TH}(t)$ . (b) banginių vektorių diagrama, vaizduojanti nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo ore reiškinių.

Norint aprašyti netiesinę bangų sąveiką, fazinio sinchronizmo juostos plotis aprašomas kaip funkcija  $\text{sinc}(\Delta k L / 2)$ , čia  $\Delta k$  yra banginių vektorių

nederinimas tarp sąveikaujančių bangų (mūsų atveju tarp PH ir TH spinduliuotės), o  $L$  yra sąveikos ilgis, kuris mūsų eksperimentų atveju yra  $\sim 1$  cm, nes toks yra persiklojimo erdvėje ilgis dviejų žadinimo pluoštų, kurių



(a)



(b)

4.3 pav. (a) Faziškai sinchronizuoto ŠDM juostos pločio forma, esant skirtingoms  $L$  vertėms: 4 cm (siauriausia kreivė), 1,5 cm (vidutinio platumo kreivė) ir 1 cm (plačiausia kreivė). (b) ŠDM ore fazinio sinchronizmo juostos pločio priklausomybė nuo sąveikos ilgio  $L$ .

suvedimo kampas yra apie 10 mrad. Taigi, dėl to, kad oras turi mažą dispersiją, o nekolinearaus ŠDM fazinio sinchronizmo kampai yra maži (mrad eilės), ŠDM sąveikai susidaro itin didelis fazinio sinchronizmo juostos plotis (4.3 pav.). Tipinėmis eksperimento sąlygomis (800 nm – centrinis PH bangos ilgis, o sąveikos ilgis apie 1 cm) šis fazinio sinchronizmo juostos plotis, kuris matuojamas ŠDM juostos pločio formos pusės aukštyje (4.3 pav., a), yra apie 340 nm (4.3 pav., b), o tai atitinka mažesnę nei 5 fs charakterizuojamų lazerio impulsų trukmę, t. y. trumpiausią impulso trukmę, kurią pavyktų užregistruoti eksperimentiškai.

Lyginant su tiesiogine TH generacija, nekolinearus ŠDM yra aukštesnių eilių optinių netiesiškumų sąlygojamas reiškinys, todėl dažniausiai tikimasi, kad ŠDM generacija turėtų būti mažiau efektyvi, nei tiesioginė THG. Tačiau, esant mūsų eksperimento sąlygoms, normaliosios dispersijos srityje nekolinearus ŠDM yra faziškai sinchronizuotas ( $\Delta k = 0$ , kai  $\lambda = 800$  nm), skirtingai nei tiesioginė THG. Nėgana to, pastebėjome, kad keturbangio dažnių maišymo (tai ir yra TH generacija) bei nekolinearaus ŠDM netiesinių ilgių (atitinkamai  $L_{nl}^{FWM}$  ir  $L_{nl}^{SWM}$ ) santykis  $r_{nl}$  priklauso PH žadinimo spinduliuotės intensyvumo  $|\varepsilon_L|^2$  ir yra aprašomas taip:

$$r_{nl} = \frac{L_{nl}^{FWM}}{L_{nl}^{SWM}} = \frac{n_4}{n_2} |\varepsilon_L|^2, \quad (4.4)$$

čia:  $n_2$  ir  $n_4$  yra netiesiniai oro lūžio rodikliai atitinkamai keturbangiui dažnių maišymui ir ŠDM. Laikant, kad  $n_2 = 3 \cdot 10^{-10}$  cm<sup>2</sup>/GW, o  $n_4 = 10^{-14}$  cm<sup>4</sup>/GW<sup>2</sup> [115, 116], santykio  $r_{nl}$  ((4.4) išraiška) vertė yra apie vienetą, nes  $\varepsilon_L = 30$  TW/cm<sup>2</sup>, esant tokiems eksperimento parametrams: impulso trukmė  $\tau_L = 35$  fs, žadinimo PH impulsų energija – 0,6 mJ, pluošto spindulys sąsmaukoje  $w_0 = 100$  μm. Mūsų eksperimentų metu naudotos didesnės žadinimo impulsų energijos, todėl santykis  $r_{nl} \approx 7$ . Tai reiškia, kad nekolinearaus ŠDM reiškinio ore metu generuojama TH ir žymiai efektyvesnė lyginant su tiesiogine TH generacija.

Siekiant dar tiksliau teoriškai įvertinti nekolinearaus ŠDM ir tiesioginės THG efektyvumų skirtumą, reikia sumodeliuoti lygtys, aprašančias šių

reiškinių generaciją. Dėl šių priežasčių bangoms, sklindančioms  $z$  kryptimi, buvo atlikti modeliavimai, naudojant paraksialinį artinį. Be to, buvo laikoma, kad pluoštai, kurių poliarizacijos yra tiesinės, turi banginius vektorius  $k_L$  ir  $k_{TH}$  (4.2 pav., b), atitinkančius 800 nm bangos ilgį bei 267 nm TH bangos ilgį. Dėl paprastumo naudojama 3 pluoštų (žadinimo, tiesioginės THG ir ŠDM) kompleksinių skaliarinių gaubtinių cilindrinė simetrija. Be to, laikoma, jog reiškiniai susiję su impulsų grupiniais greičiais ir dispersija yra maži. Tada tiesioginės THG ir ŠDM efektyvumų palyginimas atliekamas, įskaičius ir netiesinio fokusavimo bei daugiafotonės sugerties efektus bei žadinimo bangai taikant tokį artinį: sąveika nesant kaupinimo bangos nuskurdinimo. Tokiu būdu žadinimo pluošto kompleksinė amplitudė  $\varepsilon_L(r, z, t)$  aprašoma taip:

$$\frac{\partial \varepsilon_L}{\partial z} = \left( \frac{i}{2k_L} \Delta_r + ik_L n_2 |\varepsilon_L|^2 - \frac{\beta^{(K)}}{2} |\varepsilon_L|^{2K-2} \right) \varepsilon_L, \quad (4.5)$$

čia:  $r$  ir  $\Delta_r$  atitinkamai yra radialinė koordinatė ir Laplaso operatorius,  $z$  – sklidimo atstumas,  $K = 8$  yra fotonų skaičius daugiafotonės sugerties metu,  $\beta^{(8)} = 4 \cdot 10^{-98} \text{ cm}^{13}/\text{W}^{-7}$  yra daugiafotonės sugerties koeficientas, o  $n_2 |\varepsilon_L|^2$  yra lūžio rodiklio pokytis dėl netiesinio fokusavimo reiškinio.

Tariant, kad optinius netiesiškumus indukuoja galingas žadinimo pluoštas, o silpnas generuojamas pluoštas to nedaro, atitinkamos tiesioginės THG ir ŠDM kompleksinės amplitudės  $\varepsilon_d$  ir  $\varepsilon_s$  yra aprašomos taip:

$$\frac{\partial \varepsilon_d}{\partial z} = \frac{i}{2k_{TH}} \Delta_r \varepsilon_d + ik_{TH} (n_2 |\varepsilon_L|^2 \varepsilon_d + n_4 \varepsilon_L^3), \quad (4.6)$$

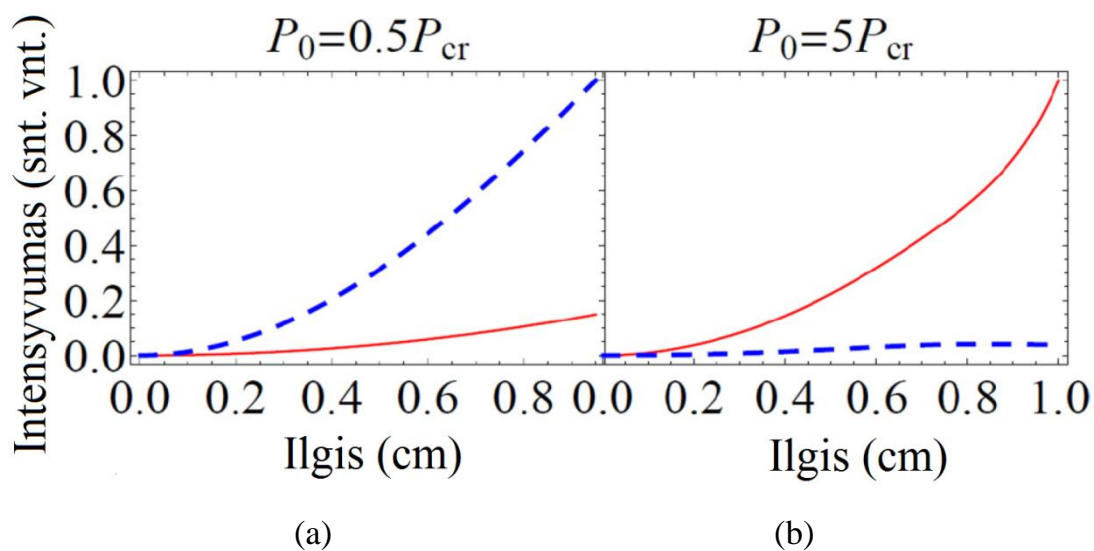
$$\frac{\partial \varepsilon_s}{\partial z} = \frac{i}{2k_{TH}} \Delta_r \varepsilon_s + ik_{TH} (n_2 |\varepsilon_L|^2 \varepsilon_s + n_4 \varepsilon_L^4 \varepsilon_s^*), \quad (4.7)$$

Verta paminėti, kad (4.6–7) lygtyse tariama, kad visų sąveikaujančių bangų grupiniai greičiai yra vienodi, o abiejų signalų vertės randamos, esant atstumui  $L = 1 \text{ cm}$ , kai žadinimo impulsų smailė galia aprašoma taip:  $P_0 = E_0/\tau_L \sqrt{\pi/2}$ , čia  $E_0$  yra žadinimo impulsų energija, o  $\varepsilon_L^0 = \sqrt{2P_0/\pi w_0^2}$ .

Skaitmeninio modeliavimo rezultatai gauti, naudojant (4.6–7) išraiškas, yra pavaizduoti 4.4 paveikslėlyje, kuriame pateikti tiek tiesioginės THG, tiek ŠDM efektyvumai, esant skirtingoms žadinimo impulsų smailinėms galioms



$P_0$ . Taigi, matome (4.4 pav., a), kad, esant santykinai mažoms žadinimo impulsų smailinėms galioms ( $P_0 < P_{cr}$ ), tiesioginės THG intensyvumas ir generacijos efektyvumas yra didesni, nei nekolinearaus ŠDM. Tačiau, esant santykinai didelėms žadinimo impulsų smailinėms galioms ( $P_0 > P_{cr}$ ) (4.4 pav., b), nekolinearus ŠDM pradeda dominuoti ir jo efektyvumas tampa žymiai didesnis nei tiesioginės TH generacijos. Mūsų eksperimento sąlygomis (impulso trukmė  $\tau_L = 35$  fs, žadinimo (PH) impulsų energija  $E_0 = 0,5$  mJ), kritinė galia  $P_{cr} \approx 2,9$  GW (apskaičiuojama pagal (1.3.1.2) išraišką), o smailinė impulsų galia  $P_0 = 5P_{cr}$ . Esant šioms sąlygoms, kai sąveikos ilgis  $z = 1$  cm, nekolinearaus ŠDM teorinis efektyvumas yra virš 20 kartų didesnis nei THG atveju (4.4 pav. (b)). Dėl šių priežasčių ir dėl to, kad ŠDM signalas generuojamas kita kryptimi, nei žadinimo pluoštai galima daryti išvadą, kad, naudojant nekolinearų ŠDM ore, plačiame žadinimo impulsų energijų verčių diapazone penktosios eilės autokoreliacines funkcijas galima registruoti be foninio signalo.

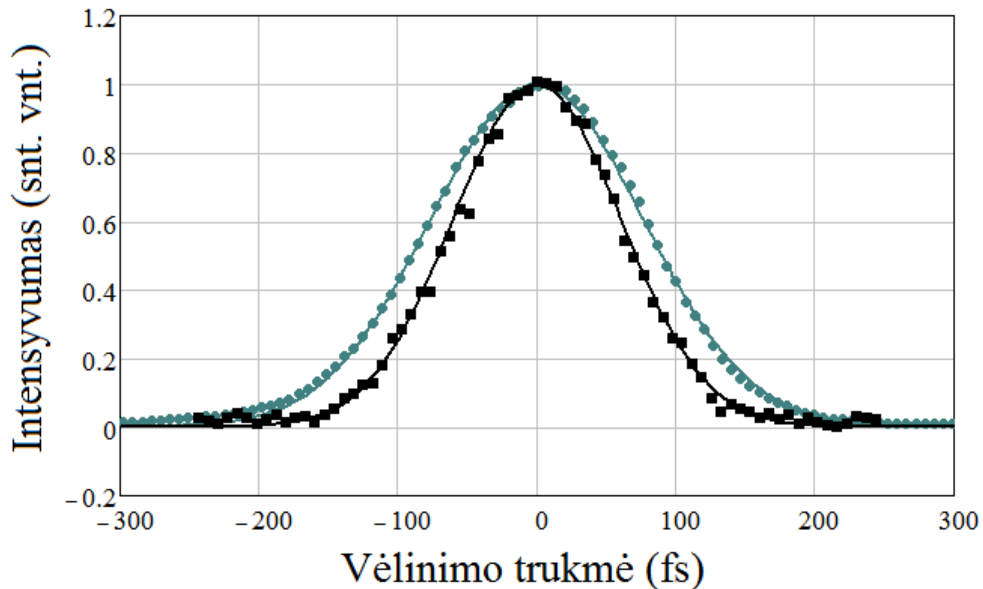


4.4 pav. Tiesioginės THG (brūkšninė linija) bei nekolinearaus ŠDM (ištisinė linija) efektyvumo priklausomybės nuo sąveikos ilgio. Rezultatai gauti, naudojant (4.6–7) lygtis skirtingoms žadinimo impulsų smailinėms galioms: (a)  $P_0 = 0,5P_{cr}$  ir (b)  $P_0 = 5P_{cr}$ . Rezultatai yra sunormuoti į maksimalią vertę, gaunamą, kai sąveikos ilgis  $z = 1$  cm.

Penktosios eilės autokoreliacinių funkcijų tyrimų, kuriems buvo naudojama dviejų žadinimo pluoštų konfigūracija, aprašyta 3.1 skyrelyje bei pavaizduota 3.1.1 paveikslėlyje, metu buvo registruojama vieno TH pluošto, generuojamo ŠDM metu, impulsų energijos priklausomybė nuo vėlinimo trukmės tarp dviejų PH žadinimo impulsų. Ši vėlinimo trukmė buvo kontroliuojama, naudojant optinę vėlinimo liniją, įstatytą vieno iš žadinimo pluoštų kelyje. Šių eksperimentų metu žadinimo pluoštų intensyvumų santykis buvo lygus 1:1. Tokiu būdu buvo gautos eksperimentinės penktosios eilės autokoreliacinių funkcijų kreivės. Be to, siekiant papildomai išmatuoti impulsų laikinę formą, dar buvo registruojamos ir antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos, gaunamos, naudojant antrosios harmonikos generaciją. AH buvo generuojama netiesiniame beta bario borato (BBO) kristale, patalpintame dviejų žadinimo pluoštų susikirtimo vietoje (židinio aplinkoje). Šių matavimų metu, siekiant išvengti netiesinio BBO kristalo optinių pažeidimų, žadinimo pluoštų galia buvo stipriai sumažinta. Registruojant AHG signalo priklausomybę nuo vėlinimo trukmės tarp dviejų žadinimo pluoštų, buvo registruojamos ir AH autokoreliacinės funkcijos.

Siekiant patikrinti nekolinearaus ŠDM matavimų tikslumą ir jo įtaką matuojamų impulsų formos bei trukmės nustatymui, buvo tiriami simetriniai Gauso laikinės formos ir 130 fs trukmės lazerio impulsai. Pirmiausia šių impulsų laikiniai parametrai buvo rasti, naudojant AHG autokoreliacinę funkciją (4.5 pav.). Tada buvo užregistruojama penktosios eilės autokoreliacinės funkcija, esant 1 mJ žadinimo impulsų energijai. Šie eksperimentiniai duomenys buvo aproksimuojami teorine kreive, gauta, naudojant (4.1) išraišką, o apskaičiuota Gauso laikinės formos impulso trukmės vertė buvo lygi 130 fs, ir gerai atitiko vertę, gautą, naudojant AHG autokoreliacijų metodą. Dėl šių priežasčių galima teigti, kad nekolinearus ŠDM tinka penktosios eilės autokoreliacinių funkcijų registravimui ir tiksliam lazerio impulsų laikinių charakteristikų (formos ir trukmės) nustatymui. Taip pat verta pastebėti, kad, kaip ir numato teorija ((4.1) ir (4.2) formulės), esant tai

pačiai žadinimo impulso trukmei, aukštesnių (penktosios) eilių intensyvumo autokoreliacinės funkcijos yra siauresnės t. y. panašesnės į tiriamo impulso laikinę formą (4.5 pav.), nei paprastai naudojamos antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos.



4.5 pav. Gauso laikinės formos lazerio impulso, kurio trukmė yra 130 fs, antrosios (pilka spalva) ir penktosios eilės (juoda spalva) intensyvumo autokoreliacinės funkcijos, esant statmenų poliarizacijų žadinimo pluoštams (taškai yra eksperimentiniai duomenys, o linijos – teorinės kreivės). ŠDM eksperimento parametrai: žadinimo pluoštų susikirtimo kampas – 13 mrad, PH pluoštų intensyvumų santykis 1:1, žadinimo pluoštų impulsų energija  $E_1$  – 1 mJ.

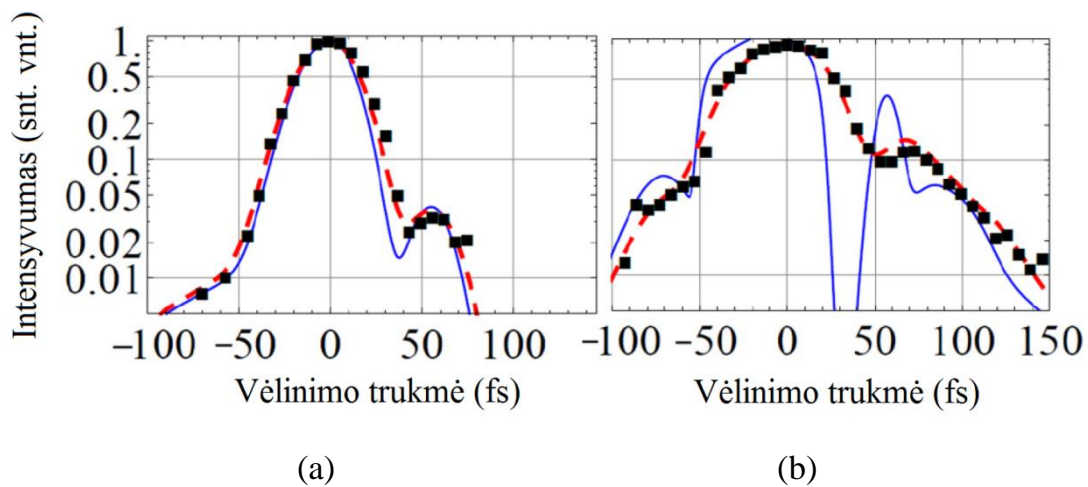
Siekiant padidinti žadinimo pluoštų intensyvumus ir generuoti lazerio impulsus su asimetrine laikine forma, atsirandančia dėl netiesinių optinių reiškinių šviesos gijose, buvo atlikti papildomi eksperimentai, žadinimui naudojant 35 fs trukmės lazerio impulsus. Jų energija eksperimentų metu buvo 0,6 mJ ir 0,8 mJ, taigi, naudojant ŠDM, buvo užregistruotos dvi penktosios eilės autokoreliacinės funkcijos (4.6 pav.). Naudojant šias autokoreliacijas ir (4.1) išraišką, buvo rastos ir impulsų laikinės formos. Kaip matome (4.6 pav.,

a), kai bendra žadinimo impulsų energija lygi 0,6 mJ, autokoreliacinė funkcija yra praktiškai simetriška (nuo intensyvumo maksimumo iki  $10^{-1}$  vertės). Tačiau, intensyvumui esant apie  $10^{-2}$ , impulso galiniame fronte (kai vėlinimo trukmė  $> 0$ ) buvo matomas ir antrasis silpnėsi impulsas, kuris apie 60 fs atsilieka nuo pagrindinio impulso. Tai reiškia, kad, žadinimo impulsų energijai esant tik 0,6 mJ, šviesos intensyvumas buvo pakankamai didelis tam, kad susidarytų šviesos gijos ir dėl netiesinių reiškinų prasidėtų lazerio impulsų skilimas. Ši prielaida buvo patikrinta, bendrą žadinimo impulsų energiją dar padidinus iki 0,8 mJ (4.6 pav., b). Šiuo atveju buvo stebimas lazerio impulso smailės plėtėjimas bei impulso skilimas, susiformuojant dviems papildomiems silpnėsi impulsams tiek galinėje, tiek priekinėje (kai vėlinimo trukmė  $< 0$ ) impulso dalyse t. y. buvo stebimos impulso transformacijos, būdingos toms, kurios registruojamos už šviesos gijos [24]. Be to, pagrindinio impulso gale papildomai susiformavęs impulsas yra itin trumpas t. y. jo trukmė yra tik 10 fs (4.6 pav., b). Tai reiškia, kad, kaip ir numatyta teoriškai, nekolinearus ŠDM ore gali būti naudojamas itin trumpų femtosekundinių lazerio impulsų autokoreliacinių funkcijų matavimui bei impulso laikinių charakteristikų (formos ir trukmės) registravimui.

Tačiau reikia paminėti, kad, kadangi nekolinearus ŠDM yra efektyvus tik esant dideliems žadinimo pluoštų intensyvumams, netiesinės sąveikos zonoje gali vykti ir kiti netiesiniai reiškiniai, o tai gali įtakoti lazerio impulsų laikinių formų kitimą net ir naudojant mažos energijos lazerio impulsus (4.6 pav., a). Siekiant sumažinti šių pašalinių reiškinų įtaką, eksperimentų metu reikėtų stengtis kaip galima sumažinti laisvo ir impulsų sklaidimo netiesinėje terpėje kelią bei netiesinės sąveikos ilgį.

Taigi, buvo pademonstruota, kad, naudojant dviejų žadinimo pluoštų konfigūraciją, nekolinearus ŠDM gali būti naudojamas galingų femtosekundinių lazerio impulsų laikiniam charakterizavimui, t. y. penktosios eilės autokoreliacinių funkcijų matavimams, kas ne tik leidžia nustatyti impulso trukmę, bet ir suteikia informaciją apie matuojamojo impulso formą ir galimą jo asimetriją t. y. tai, ko negalima nustatyti antrosios eilės

autokoreliacijų matavimais. Be to, maža oro dispersija trečiosios harmonikos signalą leidžia vienu metu generuoti plačiame žadinimo bangos ilgių diapazone (apie 340 nm), o tai atitinka mažesnę, nei 5 fs charakterizuojamų impulsų trukmę. Nėgana to, naudojant šį metodą dujose (ore), galima tirti itin trumpų ir galingų lazerio impulsų charakteristikas, kai lazerio pluoštų intensyvumai yra tokie aukšti, kad savo kelyje gali sugadinti bet kokius papildomus optinius elementus. Be to, 4.5–6 paveikslėliuose pavaizduotus duomenis galima rasti [A5] straipsnyje.



4.6 pav. Logaritminėje skalėje pateiktos lazerio impulso, kurio trukmė yra 35 fs, penktosios eilės intensyvumo autokoreliacinės funkcijos, gautos, naudojant ŠDM ir esant skirtingoms žadinimo pluoštų impulsų energijoms  $E_1$ : (a) 0,6 mJ ir (b) 0,8 mJ. Taškai yra eksperimentiniai duomenys, brūkšninės linijos yra teorinės ŠDM autokoreliacijų kreivės, o ištisinė linija žymi skaitmeniškai atstatytą lazerio impulso laikinę formą. Eksperimento parametrai: žadinimo pluoštų susikirtimo kampas – 13 mrad, PH pluoštų intensyvumų santykis – 1:1, žadinimo pluoštų poliarizacijos yra statmenos.

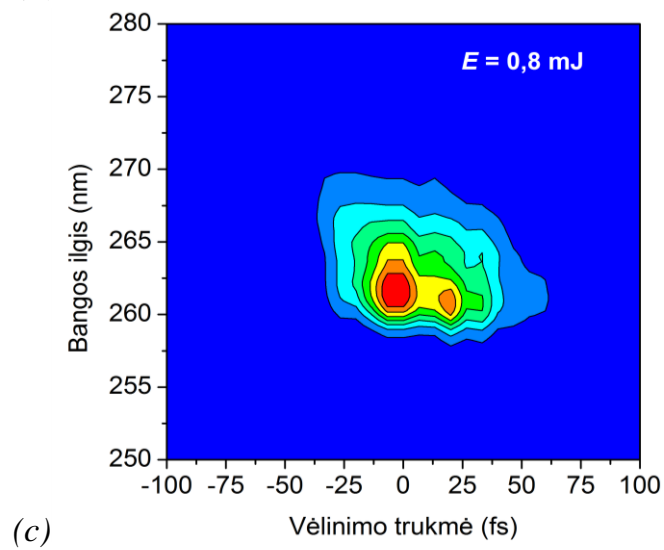
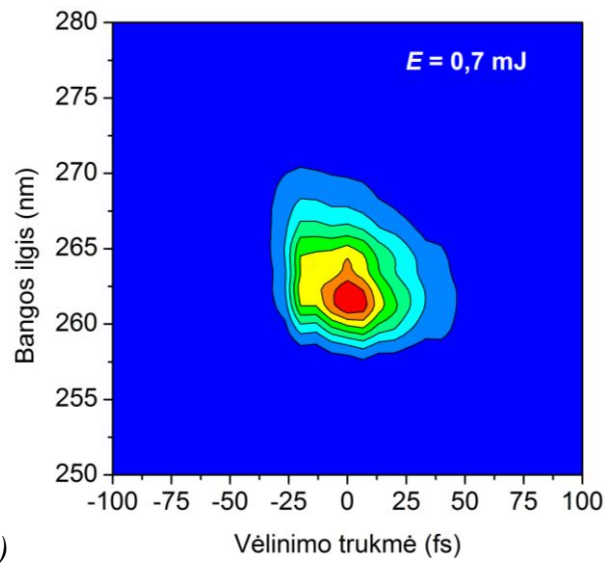
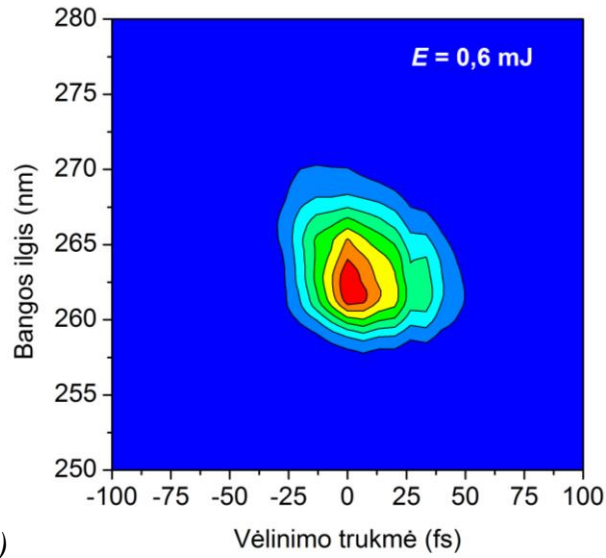
Be to, šiek tiek pakeitus penktosios eilės autokoreliacinių funkcijų matavimo metodiką (vietoj TH intensyvumo registruojant ŠDM metu generuojamos TH spektrų priklausomybę nuo vėlinimo trukmės) galima atlikti ŠDM FROG matavimus. Tai leistų gauti pilną informaciją apie lazerio impulso elektrinio lauko parametrus (fazę, dažnių pasiskirstymą laike ir t. t.). Toks

ŠDM FROG, kaip ir kiti FROG metodai, naudojantys trečiosios eilės netiesiškumus, leistų registruoti asimetriškas lazerio impulsų laikines-dažnines priklausomybes, skirtingai nei tais atvejais, kai naudojami antrosios eilės optiniai netiesiškumai (AHG FROG). Pastarieji (kaip ir autokoreliacijų atveju) leidžia registruoti tik simetriškas priklausomybes laiko (vėlinimo trukmės) atžvilgiu, todėl, jei tiriami asimetriškos laikinės formos lazerio impulsai, naudojant šiuos metodus, gali būti prarandama dalis informacijos, susijusios su laikiniu lazerio impulsų spektrinių komponentų išsidėstymu.

ŠDM FROG matavimai buvo atlikti, naudojant tą pačią eksperimento schemą kaip ir penktosios eilės autokoreliacinių funkcijų atveju. Ši dviejų žadinimo pluoštų ŠDM konfigūracija aprašyta 3.1 skyrelyje bei pavaizduota 3.1.1 paveikslėlyje. Pagrindinis skirtumas, lyginat su analogiškais autokoreliacijų matavimais, buvo tai, jog, registruojant ŠDM FROG pėdsaką, vietoj energijos ar galios detektoriaus buvo naudojamas šviesolaidinis spektrometras. Tokiu būdu vietoj generuojamos TH impulsų energijos buvo registruojama vieno TH pluošto spektrų priklausomybė nuo vėlinimo trukmės tarp dviejų žadinimo impulsų. Ši vėlinimo trukmė buvo valdoma, naudojant optinę vėlinimo liniją, įstatytą vieno iš žadinimo pluoštų kelyje. Kaip ir anksčiau, šių eksperimentų metu žadinimo pluoštų intensyvumų santykis buvo lygus 1:1, o jų susikirtimo kampas atitiko nekolinearaus ŠDM fazinio sinchronizmo kampą – 13 mrad. Tolygiai keičiant vėlinimo trukmę tarp žadinimo impulsų ir kiekvieną kartą registruojant generuojamos TH spektrus buvo registruojamas ŠDM FROG pėdsakas, t. y. spektrinio intensyvumo priklausomybės nuo vėlinimo trukmės, leidžiančios pilnai atstatyti impulso elektrinio lauko intensyvumą ir fazę.

Eksperimentų metu naudojant 35 fs trukmės bei skirtingų energijų  $E$  lazerio impulsus, buvo užregistruoti trys ŠDM FROG pėdsakai, kurie pavaizduoti 4.7 paveikslėlyje. Esant mažiausiai žadinimo impulsų energijai ( $E = 0,6$  mJ) buvo registruojamos simetriškos laikinės formos impulsai, kurių trukmė buvo panaši į žadinimo lazerio impulsų trukmę – apie 35 fs (4.7 pav., a). Šiuo atveju spektrinė ŠDM FROG pėdsako dalis taip pat yra simetriška.

Padidinus lazerio impulsų energiją iki 0,7 mJ (4.7 pav., b), jau buvo registruojamas santykinai mažas ŠDM FROG laikinių-dažninių charakteristikų asimetriškumas. Dar padidinus lazerio impulsų energiją (iki 0,8 mJ) atsirado aiškiai matomas tiek spektrinių, tiek laikinių parametrų asimetriškumas. Be to, impulso gale (kai vėlinimo trukmė  $> 0$ ) kaip ir autokoreliacinių matavimų atveju buvo stebimas impulso skilimo efektas, t. y. atsirasdavo apie kelias dešimtis femtosekundžių atsilikęs nuo pagrindinio antrasis silpnesnis impulsas. Be to, buvo pastebėta, jog šio lazerio impulso skilimo šviesos gijoje metu ŠDM FROG pėdsako (ir atitinkamai lazerio impulso) spektrai susiaurėja (4.7 pav., c), lyginant su atveju, kai ŠDM FROG pėdsakas dar turi simetriškas priklausomybes (4.7 pav., a). Be to, impulso sklidimo metu buvo stebimas ne tik spektro siaurėjimas, bet ir centrinio bangos ilgio poslinkis į trumpesnių bangų pusę (4.7 pav., c), Šis poslinkis siekė kelis nanometrus, bet to užteko, kad spektro forma taptų stipriai asimetrinė (didžiausia impulso energijos dalis koncentravosi trumpesnių bangos ilgių srityje, o ilgesnių bangų pusėje buvo stebimas šviesos spektrinio intensyvumo sumažėjimas. Įdomu, kad, kaip ir pagrindinio impulso atveju, centrinis papildomai susidariusio impulso bangos ilgis taip pat buvo pasislinkęs į trumpesnių bangų pusę. Taigi, abiejų impulsų spektrai yra panašios formos, nes atskilimo metu besiformuodamas papildomas impulsas nespėjo patirti jokių netiesinių sąveikų, keičiančių impulsų laikines ir dažnines savybes. Pažymėtina, jog aptartus lazerio impulsų spektrų kitimus galima paaiškinti netiesinių optinių efektų, kurie vyksta šviesos gijose, esant didesnėms žadinimo impulsų energijoms, įtaka. Taigi, šie spektrai išplinta dėl tokių reiškinių, kaip plazmos generacija [54-59], fazės moduliavimasis [60, 61] bei kryžminė fazės moduliacija [62, 63]. Be to, minėtus laikinius kitimus sąlygoja ir tokie tiesiniai reiškiniai, kaip grupinių greičių dispersija, kuri net normaliosios dispersijos terpėse sukelia impulso spektrinių komponentų persigrupavimą ir impulso skilimą [49, 50]. Taigi, naudojant ŠDM reiškinį galima užfiksuoti ŠDM FROG metodo pėdsaką, charakterizuojantį femtosekundinių lazerio impulsų erdvines-dažnines savybes, ir šią metodiką naudoti netiesinių optinių reiškinių tyrimui.



4.7 pav. ŠDM FROG metodu gautos laikinės-dažninės ŠDM signalo charakteristikos, esant skirtingoms žadinimo impulsų energijoms  $E$ .



Naudojant ŠDM FROG metodu gautą pėdsaką (4.7 pav.), galima skaitmeniškai atstatyti (rekonstruoti) tiriamo lazerio impulso laikines-dažnines charakteristikas. Remiantis atstatytu lazerio impulso FROG pėdsaku, taip pat nustatomi ir jį atitinkantys impulso laikinė gaubtinė, spektras ir laikinė bei spektrinė fazės. Siekiant rekonstruoti tiriamo impulso FROG pėdsaką, laikoma, kad dviejų atskirų žadinimo impulsų elektriniai laukai atitinkamai yra  $E(t)$  ir  $E(t - \tau_{VL})$ , čia  $\tau_{VL}$  yra vėlinimo trukmė tarp žadinimo impulsų [104]. Šie impulsai, vykstant nekolineariam ŠDM, sąveikauja tarpusavyje, todėl generuojamos TH elektrinis laukas  $E_{sig}^{6DM}$  yra proporcingas tokiai išraiškai:

$$E_{sig}^{6DM}(t, \tau_{VL}) \propto E^4(t) E^*(t - \tau_{VL}). \quad (4.8)$$

ŠDM FROG eksperimentų metu atitinkamai registruojamas TH intensyvumo pėdsakas t. y. laikinės-dažnines charakteristikos, kurios aprašomos taip:

$$I_{FROG}^{6DM}(\omega, \tau_{VL}) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E^4(t) E^*(t - \tau_{VL}) \exp(-i\omega t) dt \right|^2. \quad (4.9)$$

Naudojant eksperimentinių duomenų masyvą  $I_{FROG}^{6DM}$  bei (4.8–4.9) lygtis, skaitmeniškai galima rasti  $E_{sig}^{6DM}(t, \tau_{VL})$  sprendinį. Tada, naudojant šį sprendinį ir (4.8) lygtį, taip pat skaitmeniškai galima nustatyti ir kompleksinį elektrinį lauką  $E(t)$ .

Taigi, ŠDM FROG tyrimų ateities darbai yra panaudoti eksperimentinius duomenis (4.7 pav.) bei (4.8–4.9) lygčių sistemą tam, kad gauti tiriamo lazerio impulso laikines-dažnines charakteristikas bei nustatyti pilną informaciją apie lazerio impulso elektrinio lauko parametrus (fazę, dažnių pasiskirstymą laike ir t. t.). Šie ŠDM FROG metodo rezultatai leis tirti ne tik galingų femtosekundinių lazerio impulsų elektrinio lauko charakteristikas, bet taip pat ir šviesos gijose vykstančius netiesinius reiškinius.

Buvo pademonstruoti du nekolinearaus ŠDM reiškinio ore taikymai. Visų pirma šis reiškinys yra tinkamas registruoti penktosios eilės autokoreliacines funkcijas, kurios leidžia rasti žadinančių lazerio impulsų trukmę bei laikines formas, kurios gali būti tiek simetriškos, tiek asimetriškos.

Be to, buvo pastebėta, kad šis metodas gali būti panaudotas tiriant itin galingus ir trumpus femtosekundinius lazerio impulsus (minimali teoriškai apskaičiuota jų trukmė gali būti 5 fs, o eksperimentiškai pavyko užregistruoti 10 fs trukmės lazerio impulsus). Antrasis nekolinearaus ŠDM ore taikymas yra ŠDM FROG metodas, leidžiantis užregistruoti ŠDM signalo laikines-dažnines charakteristikas, kurios taip pat gali būti asimetrinės formos ir teikti daugiau informacijos, nei įprasti FROG metodai, pagrįsti antros eilės netiesiniais reiškiniais (AHG FROG).

ŠDM taikymų perspektyvos yra panaudoti tiek penktosios eilės autokoreliacijų matavimo, tiek ŠDM FROG metodus ne tik lazerio impulsų charakterizavimui, bet ir šviesos gijų bei jose vykstančių netiesinių reiškinų tyrimams. Kadangi, femtosekundinius lazerio impulsus fokusuojant ore ilgo židinio nuotolio lęšiais (2 m), susiformuoja santykinai ilgos šviesos gijos (iki 50 cm), o ŠDM eksperimentų metu dviejų sukirstų žadinimo pluoštų sąveikos ilgis yra santykinai mažas (apie 1 cm), tai manome, kad galima registruoti penktosios eilės autokoreliacijų ir ŠDM FROG pėdsako priklausomybes, esant skirtingoms dviejų žadinimo pluoštų sukirtimo vietoms, pvz., prieš šviesos giją (kai dar nėra kitų netiesinių reiškinų įtakos ŠDM), šviesos gijos pradžioje, viduryje, gale, už šviesos gijos bei įvairiuose tarpiniuose taškuose. Tokie rezultatai leistų stebėti šviesos gijoje vykstančius laikinius ir dažninius procesus bei tirti netiesinių reiškinų įtaką įvairiose šviesos gijos vietose. Be to, yra numatomos ir tolimesnės ŠDM tyrimų perspektyvos. Taigi, bus siekiama generuoti TH dėl ŠDM, naudojant tik vieną žadinimo pluoštą, fokusuojamą pakankamai aštriai, kad dėl atsiradusios PH banginių vektorių skėsties bus tenkinamos ŠDM fazinio synchronizmo sąlygos, nes ŠDM fazinio synchronizmo kampai yra itin maži (mrad eilės). Tokiais tyrimais bus siekiama įvertinti tiek tiesioginės, tiek dėl ŠDM generuojamų TH indėlius į bendrą THG, esant įvairioms eksperimento sąlygoms (fokusavimo, lazerio impulsų trukmių ir energijų). Taip bus siekiama įrodyti, kad ŠDM ir penktosios eilės netiesiškumų įtaką reikia įvertinti, modeliuojant THG charakteristikas, nes akivaizdu, kad dabar naudojami teoriniai modeliai (tame tarpe ir modelis

pateiktas 1.4. skyrelyje [1, 2]) apsiriboja tik trečios eilės netiesiniais reiškiniais, tačiau, vykstant femtosekundinės trukmės lazerio impulsų ir dujų sąveikai, gali pasireikšti ir penktos eilės optiniai netiesiškumai, todėl tikslesnė analizė turėtų įskaityti ir šiuos aukštesnių eilių netiesiškumus.

## IŠVADOS

1. Femtosekundinius Ti:Safyro lazerio impulsus fokusuojant ore ilgo židinio nuotolio lęšiais (2 m), buvo stebimos ilgos šviesos gijos (iki 50 cm) ir dideli žadinančių ir generuojamos trečiosios harmonikos impulsų spektriniai poslinkiai (atitinkamai 50 nm ir 20 nm). Nustatyta, jog šių spektrinių poslinkių augimas nesisotina ir jie auga tiesiškai, didinant žadinimo impulsų energiją (iki 3 mJ) ir yra proporcingi šviesos gijos ilgiui, taip pat tiesiškai priklausančiam nuo žadinimo impulsų energijos. Spektriniai poslinkiai didėja, nes, ilgėjant šviesos gijai, didėja didelio šviesos intensyvumo sritis, kurioje vyksta plazmos generacija, fazės moduliavimasis bei kryžminė fazės moduliacija, t.y., reiškiniai, sąlygojantys didelius spektrinius sąveikaujančių šviesos impulsų poslinkius.

2. Eksperimentiškai ir skaitmeniškai parodyta, kad femtosekundinius lazerio impulsus fokusuojant ore ilgo židinio nuotolio ( $\sim 2$  m) lęšiais ir didinant jų energiją, gali susiformuoti papildoma šviesos gija, kurioje trečiosios harmonikos centrinės dalies spektras stipriai slenkasi į trumpesnių bangos ilgių sritį. Šį poslinkį sąlygoja plazmos elektronai, generuojami papildomoje šviesos gijoje. Tuo tarpu kūginė trečiosios harmonikos dalis yra generuojama pirmojoje šviesos gijoje ir sklinda kampu optinės ašies atžvilgiu, taigi su antrosios šviesos gijos plazmos elektronais nesąveikauja, o jos spektras refokusavimosi metu beveik nekinta.

3. Pirmą kartą tiek eksperimentiškai, tiek skaitmeniškai pademonstruotas faziškai sinchronizuotas dažnio trigubinimas ore, naudojant nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo reiškinį, kurio fazinio sinchronizmo sąlygos kontroliuojamos, keičiant žadinimo pluoštų susikirtimo kampą. Parodyta, kad šis procesas efektyviausias (maksimalus energijos keitimo efektyvumas siekia  $10^{-4}$ ), kai du žadinimo pluoštai suvedami šešiabangio dažnių maišymo fazinio sinchronizmo kampu (13 mrad).

4. Pademonstruota, jog nekolinearaus šešiabangio femtosekundinių lazerio impulsų dažnių maišymo ore metu beveik visą generuojamos trečiosios harmonikos energiją galima sukoncentruoti į vieną Gauso formos pluoštą. Kadangi vienas trečiosios harmonikos fotonas generuojamas, sąveikaujant keturiems fotonams iš vieno žadinimo pluošto su vienu kito žadinimo pluošto fotonu, maksimalus generacijos efektyvumas gaunamas, kai žadinimo pluoštų intensyvumų santykis yra lygus arba 0,25, arba 4. Esant šiam pluoštų intensyvumo santykiui taip pat buvo gautas ir bendras (iki 25 %) generacijos efektyvumo padidėjimas lyginant su atveju, kai žadinimo pluoštų intensyvumas buvo lygus.

5. Pademonstruota, jog nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo signalas, gaunamas, keičiant vėlinimo trukmę tarp dviejų žadinimo impulsų, yra proporcingas šių impulsų penktosios eilės autokoreliacinei funkcijai, leidžiančiai ne tik nustatyti tiriamų impulsų trukmę, bet ir suteikiančiai informaciją apie jų formą bei galimą jos asimetriją. Skaitmeniškai parodyta, kad šiuo metodu galima tirti lazerio impulsus, kurių trukmės yra mažesnės nei 5 fs, nes dėl mažos oro dispersijos susidaro itin didelis šešiabangio dažnių maišymo fazinio sinchronizmo juostos plotis (apie 340 nm). Eksperimentiškai pademonstruota, jog šį reiškinį galima naudoti ir femtosekundinių lazerio impulsų šešiabangio dažnių maišymo FROG pėdsako registravimui.

## LITERATŪRA

- [1] F. Théberge, N. Aközbek, W. Liu, J.-F. Gravel, S. L. Chin, Third harmonic beam profile generated in atmospheric air using femtosecond laser pulses, *Opt. Commun.* **245**, 399-405 (2005).
- [2] F. Théberge, N. Aközbek, W. Liu, J. Fillion, S. L. Chin, Conical emission and induced frequency shift of third-harmonic generation during ultrashort laser filamentation in air, *Opt. Commun.* **276**, 298-304 (2007).
- [3] S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, 16-fs, 1- $\mu$ J ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air, *Opt. Lett.* **21**, 665-667 (1996).
- [4] N. Aközbek, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S. L. Chin, C. M. Bowden, Third-Harmonic Generation and Self-Channeling in Air Using High-Power Femtosecond Laser Pulses, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 143901 (2002).
- [5] F. Théberge, Q. Luo, W. Liu, S. A. Hosseini, M. Sharifi, S. L. Chin, Long-range third-harmonic generation in air using ultrashort intense laser pulses, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 081108 (2005).
- [6] L. Bergé, S. Skupin, G. Mejean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, J. P. Wolf, Supercontinuum emission and enhanced self-guiding of infrared femtosecond filaments sustained by third-harmonic generation in air, *Phys. Rev. E* **71**, 016602 (2005).
- [7] X. Ting-Ting, Z. Jie, L. Xin, H. Zuo-Qiang, Y. Hui, D. Quan-Li, W. Hui-Chun, Generation of third harmonic emission in propagation of femtosecond laser pulses in air, *Chin. Phys.* **15**, 2025–2029 (2006).
- [8] R. L. Sutherland, *Handbook of Nonlinear Optics* (Marcel Dekker, New York, 1996).

- [9] J. F. Reintjes, *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases* (Academic Press, New York, 1984).
- [10] J. Reintjes, Frequency mixing in the extreme ultraviolet, *Appl. Opt.* **19**, 3889-3896 (1980).
- [11] J. F. Ward, G. H. C. New, Optical Third Harmonic Generation in Gases by a Focused Laser Beam, *Phys. Rev.* **185**, 57-73 (1969).
- [12] C. Rodriguez, Z. Sun, Z. Wang, W. Rudolph, Characterization of laser-induced air plasmas by third harmonic generation, *Opt. Express* **19**, 16115-16125 (2011).
- [13] P. J. Ding, Z. Y. Liu, Y. C. Shi, S. H. Sun, X. L. Liu, X. S. Wang, Z. Q. Guo, Q. C. Liu, Y. H. Li, B. T. Hu, Spectral characterization of third-order harmonic generation assisted by a two-dimensional plasma grating in air, *Phys. Rev. A* **87**, 043828 (2013).
- [14] D. Yelin, Y. Silberberg, Laser scanning third-harmonic-generation microscopy in biology, *Opt. Express* **5**, 169-175 (1999).
- [15] N. Aközbek, A. Becker, M. Scalora, S.L. Chin, C.M. Bowden, Continuum generation of the third-harmonic pulse generated by an intense femtosecond IR laser pulse in air, *Appl. Phys. B* **77**, 177–183 (2003).
- [16] F. Théberge, W. Liu, Q. Luo, S.L. Chin, Ultrabroadband continuum generated in air (down to 230 nm) using ultrashort and intense laser pulses, *Appl. Phys. B* **80**, 221–225 (2005).
- [17] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (2nd ed., Academic Press, San Diego, CA, 2003).
- [18] D. Dietze, J. Darmo, S. Roither, A. Pugzlys, J. N. Heyman, K. Unterrainer, Polarization of terahertz radiation from laser generated plasma filaments, *J. Opt. Soc. Am. B* **26**, 2016-2027 (2009).

- [19] D. Faccio, P. D. Trapani, S. Minardi, A. Bramati, F. Bragheri, C. Liberale, V. Degiorgio, A. Dubietis, A. Matijosius, Far-field spectral characterization of conical emission and filamentation in Kerr media, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 862-869 (2005).
- [20] E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, A. Mysyrowicz, Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air, *Opt. Lett.* **21**, 62-64 (1996).
- [21] O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chien, S. L. Chin, Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air, *Opt. Lett.* **22**, 1332-1334 (1997).
- [22] V. Vaičaitis, Cherenkov-type phase-matched third harmonic generation in air, *Opt. Commun.* **185**, 197-202 (2000).
- [23] S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbek, A. Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, H. Schroeder, The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media physics, applications, and new challenges, *Can. J. Phys.* **83**, 863-905 (2005).
- [24] A. Couairon, A. Mysyrowicz, Femtosecond filamentation in transparent media, *Phys. Rep.* **441**, 47– 189 (2007).
- [25] S. L. Chin, T. -J. Wang, C. Marceau, J. Wu, J. S. Liu, O. Kosareva, N. Panov, Y. P. Chen, J. -F. Daigle, S. Yuan, A. Azarm, W. W. Liu, T. Seideman, H. P. Zeng, M. Richardson, R. Li, Z. Z. Xu, *Advances in Intense Femtosecond Laser Filamentation in Air*, *Las. Phys.* **22**, 1–53 (2012).
- [26] S. L. Chin, *Femtosecond laser filamentation* (Springer, New York, 2010).
- [27] A. Braun, G. Korn, G. Liu, X. Du, J. Squier, G. Mourou, Self-channeling of high- peak-power femtosecond laser pulses in air, *Opt. Lett.* **20**, 73-75 (1995).



- [28] A. Penzkofer, H. J. Lehmeier, Theoretical investigation of noncollinear phase-matched parametric four-photon amplification of ultrashort light pulses in isotropic media, *Opt. and Quant. Electr.* **25**, 815-844 (1993).
- [29] T. Fuji, T. Horio, T. Suzuki, Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in Neon Gas, *Opt. Lett.* **32**, 2481-2483 (2007).
- [30] T. Fuji, T. Suzuki, Generation of sub-two-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing through filamentation in air, *Opt. Lett.* **32**, 3330-3332 (2007).
- [31] F. Théberge, N. Aközbek, W. Liu, A. Becker, S. L. Chin, Tunable Ultrashort Laser Pulses Generated through Filamentation in Gases (2006).
- [32] C. G. Durfee, S. Backus, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, Intense 8-fs pulse generation in the deep ultraviolet, *Opt. Lett.* **24**, 697-699 (1999).
- [33] M. Beutler, M. Ghotbi, F. Noack, I. V. Hertel, Generation of sub-50-fs vacuum ultraviolet pulses by four-wave mixing in argon, *Opt. Lett.* **35**, 1491-1493 (2010).
- [34] P. Zuo, T. Fuji, T. Suzuki, Spectral phase transfer to ultrashort UV pulses through four-wave mixing, *Opt. Expr.* **18**, 16183-16192 (2010).
- [35] M. Ghotbi, P. Trabs, M. Beutler, F. Noack, Generation of tunable sub-45 femtosecond pulses by noncollinear four-wave mixing, *Opt. Lett.* **38**, 486-488 (2013).
- [36] F. Munhoz, H. Rigneault, S. Brasselet, Polarization-resolved four-wave mixing microscopy for structural imaging in thick tissues, *J. Opt. Soc. Am. B* **29**, 1541-1550 (2012).
- [37] A. M. Zheltikov, N. I. Koroteev, Coherent four-wave mixing in excited and ionized gas media, *Phys. Uspekhi* **42**, 321-351 (1999).

- [38] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, Breakup and Fusion of Self-Guided Femtosecond Light Pulses in Air, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5470-5473 (2001).
- [39] G. Bjorklund, Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media, *IEEE J. Quantum Electron.* **11**, 287-296 (1975).
- [40] Y. Liu, M. Durand, A. Houard, B. Forestier, A. Couairon, A. Mysyrowicz, Efficient generation of third harmonic radiation in air filaments: A revisit, *Opt. Commun.* **284**, 4706-4713 (2011).
- [41] J. K. Wahlstrand, Y.-H. Cheng, Y.-H. Chen, H. M. Milchberg, Optical Nonlinearity in Ar and N<sub>2</sub> near the Ionization Threshold, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 103901 (2011).
- [42] A. Becker, N. Aközbek, K. Vijayalakshmi, E. Oral, C. Bowden, S. Chin, Intensity clamping and re-focusing of intense femtosecond laser pulses in nitrogen molecular gas, *Appl. Phys. B* **73**, 287-290 (2001).
- [43] J. Kasparian, R. Sauerbrey, S.L. Chin, The critical laser intensity of self-guided light filaments in air, *Appl. Phys. B*, **71**, 877–879 (2000).
- [44] W. Liu, S. Petit, A. Becker, N. Aközbek, C. M. Bowden, S. L. Chin, Intensity clamping of a femtosecond laser pulse in condensed matter, *Opt. Commun.* **202**, 189-197 (2002).
- [45] A. B. Fedotov, N. I. Koroteev, M. M. T. Loy, X. Xiao, A. M. Zheltikov, Saturation of third-harmonic generation in a plasma of self-induced optical breakdown due to the self-action of 80-fs light pulses, *Opt. Commun.* **133**, 587–595 (1997).
- [46] C.-J. Zhu, Y.-D. Qin, H. Yang, S.-F. Wang, Q.-H. Gong, Third-order harmonic generation in atmospheric air with focused intense femtosecond laser pulses, *Chin. Phys. Lett.* **18**, 57–59 (2001).

- [47] H. Yang, J. Zhang, J. Zhang, L.Z. Zhao, Y.J. Li, H. Teng, Y.T. Li, Z.H. Wang, Z.L. Chen, Z.Y. Wei, J.X. Ma, W. Yu, Z.M. Sheng, Third-order harmonic generation by self-guided femtosecond pulses in air, *Phys. Rev. E*, **67**(1), 015401-1–015401-4 (2003).
- [48] J. Peatross, S. Backus, J. Zhou, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, Spectral-spatial measurements of fundamental and third-harmonic light of intense 25-fs laser pulses focused in a gas cell, *J. Opt. Soc. Am. B*, **15**(1), 186–192 (1998).
- [49] N. Aközbeke, A. Becker, M. Scalora, S. L. Chin, C. M. Bowden, Intensity clamping of a femtosecond laser pulse in condensed matter, *Appl. Phys. B* **77**, 177-197 (2003).
- [50] J. Bethge, C. Bree, H. Redlin, G. Stibenz, P. Staudt, G. Steinmeyer, A. Demircan, S. Dusterer, Self-compression of 120 fs pulses in a white-light filament, *J. Opt.* **13**, 055203 (2011).
- [51] M. Mlejnek, E. M. Wright, J. V. Moloney, Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air, *Opt. Lett.* **23**, 382–384 (1998).
- [52] W. Liu, S. L. Chin, O. Kosareva, I. S. Golubtsov, V.P. Kandidov, Multiple refocusing of a femtosecond laser pulse in a dispersive liquid (methanol), *Opt. Commun.* **225**, 193–209 (2003).
- [53] W. Liu, X. Lin, L. Pang, X. Song, Multiple refocusing in BK9 glass generated by a loosely focused high-intensity femtosecond pulse, *Opt. Eng.* **51**, 099001 (2012).
- [54] G. Marcus, A. Zigler, Z. Henis, Third-harmonic generation at atmospheric pressure in methane by use of intense femtosecond pulses in the tight-focusing limit, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 792-800 (1999).
- [55] E. Yablonovitch, Energy conservation in the picosecond and subpicosecond photoelectric effect, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 795-796 (1988).

- [56] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, M. D. Perry, Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics, *Phys. Rev. B* **53**, 1749-1791 (1996).
- [57] C. W. Siders, N. C. Turner III, M. C. Downer, Blue-shifted third-harmonic generation and correlated self-guiding during ultrafast barrier suppression ionization of subatmospheric density noble gases, *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 330-335 (1996).
- [58] E. V. Vanin, A. V. Kim, M. C. Downer, A. M. Sergeev, Excitation of ultrashort burst of the radiation during ionization of a gas by an intense light pulse, *JETP Lett.* **58**, 900-906 (1993).
- [59] V. B. Gil'denburg, V. I. Pozdnyakova, I. A. Shereshevskii, Frequency self-upshifting of focused electromagnetic pulse producing gas ionization, *Phys. Lett. A* **203**, 214-218 (1995).
- [60] E. T. J. Nibbering, M. A. Franco, B. S. Prade, G. Grillon, J.-P. Chambaret, A. Mysyrowicz, Spectral determination of the amplitude and the phase of intense ultrashort optical pulses, *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 317-329 (1996).
- [61] X. Liu, X. Lu, X. Liu, L. Feng, J. Ma, Y. Li, L. Chen, Q. Dong, W. Wang, Z. Wang, Z. Wei, Z. Sheng, J. Zhang, Broadband supercontinuum generation in air using tightly focused femtosecond laser pulses, *Opt. Lett.* **36**, 3900-3902 (2011).
- [62] N. I. Koroteev, A. M. Zheltikov, Cross-phase-modulation-controlled third-harmonic generation in gases, *Las. Phys.* **8**, 512-517 (1998).
- [63] J. W. Wilson, P. Samineni, W. S. Warren, M. C. Fischer, Cross-phase modulation spectral shifting: nonlinear phase contrast in a pump-probe microscope, *Biomed. Opt. Express* **3**, 854-862 (2012).
- [64] F. De Martini, C. H. Townes, T. K. Gustapson, P. L. Kelley, Self-Steepening of Light Pulses, *Phys. Rev.* **164**, 312-323 (1967).

- [65] G. Yang, Y. R. Shen, Spectral broadening of ultrashort pulses in a nonlinear medium, *Opt. Lett.* **9**, 510-512 (1984).
- [66] A. Brodeur, S. L. Chin, Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 637-650 (1999).
- [67] M. Kolesik, E. M. Wright, A. Becker, J. V. Moloney, Simulation of third-harmonic and supercontinuum generation for femtosecond pulses in air, *Appl. Phys. B* **85**, 531–538 (2006).
- [68] J. E. Rothenberg, Space-time focusing breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of femtosecond pulses, *Opt. Lett.* **17**, 1340-1342 (1992).
- [69] A. L. Gaeta, Catastrophic Collapse of Ultrashort Pulses, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3582- 3585 (2000).
- [70] N. Aközbek, M. Scalora, C.M. Bowden, S. L. Chin, White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultrashort laser pulses in the air, *Opt. Commun.* **191**, 353-362 (2001).
- [71] V. Vaičaitis, V. Jarutis, A. Stabinis, Transverse and longitudinal phase-matching in third harmonic generation induced by the Bessel beams, *Opt. Commun.* **284**, 3101–3104 (2011).
- [72] S. E. Harris, Generation of Vacuum-Ultraviolet and Soft—X-Ray Radiation Using High-Order Nonlinear Optical Polarizabilities, *Phys. Rev. Lett.* **31**, 341-344 (1973).
- [73] U. Sapaev, A. Husakou, J. Herrmann, Combined action of the bound-electron nonlinearity and the tunnel-ionization current in low-order harmonic generation in noble gases, *Opt. Express* **21**, 25582-25591 (2013).

- [74] K. Kosma, S. A. Trushin, W. E. Schmid, W. Fuß, Vacuum ultraviolet pulses of 11 fs from fifth-harmonic generation of a Ti:sapphire laser, *Opt. Lett.* **33**, 723-725 (2008).
- [75] V. Vaičaitis, V. Jarutis, D. Pentaris, Conical Third-Harmonic Generation in Normally Dispersive Media, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 103901 (2009).
- [76] J. B. Bertrand, H. J. Worner, H.-C. Bandulet, E. Bisson, M. Spanner, J.-C. Kieffer, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, Ultrahigh-Order Wave Mixing in Noncollinear High Harmonic Generation, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 023001 (2011).
- [77] K. Hartinger, R. A. Bartels, Enhancement of third harmonic generation by a laser-induced plasma, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 151102 (2008).
- [78] X. Yang, J. Wu, Y. Peng, Y. Tong, S. Yuan, L. Ding, Z. Xu, H. Zeng, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 111103 (2009).
- [79] S. Suntsov, D. Abdollahpour, D. G. Papazoglou, S. Tzortzakis, Efficient third-harmonic generation through tailored IR femtosecond laser pulse filamentation in air, *Opt. Express* **17**, 3190-3195 (2009).
- [80] S. Suntsov, D. Abdollahpour, D. G. Papazoglou, S. Tzortzakis, Filamentation-induced third-harmonic generation in air via plasma-enhanced third-order susceptibility, *Phys. Rev. A* **81**, 033817 (2010).
- [81] V. E. Peet, R. V. Tsubin, Gas-phase generation of resonance-enhanced third harmonic with crossed laser beams, *Opt. Commun.* **214**, 381-387 (2002).
- [82] A. Dubietis, *Netiesinė optika* (Vilniaus universitetas, Vilnius 2009).
- [83] P. Schaaf, *Laser Processing of Materials, Fundamentals, Applications and Developments* (Springer, Heidelberg, 2010).
- [84] D. Meshulach, Y. Barad, Y. Silberberg, Measurement of ultrashort optical pulses by third-harmonic generation, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2122-2125 (1997).

- [85] D. J. Bradley, G. H. C. New, Ultrashort pulse measurements Proc, IEEE **62**, 313-345 (1974).
- [86] M. Nisoli, S. D. Silvestri, O. Svelto, R. Szipocs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, F. Krausz, Compression of high-energy laser pulses below 5 fs, Opt. Lett. **22**, 522-524 (1997).
- [87] E. P. Ippen, C. V. Shank, *Ultrashort Light Pulses: Picosecond Techniques and Applications* (Springer, Berlin, 1977).
- [88] R. N. Gyuzalian, S. B. Sogominian, Z. G. Horvath, Background-free measurement of time behaviour of an individual picosecond laser pulse, Opt. Commun. **29**, 239-242 (1979).
- [89] P. Heinz, A. Reuther, A. Laubereau, Additive-pulse modelocking of non-cw neodymium lasers, Opt. Commun. **97**, 35-40 (1993).
- [90] M. Maier, W. Kaiser, J. A. Giordmaine, Intense Light Bursts in the Stimulated Raman Effect, Phys. Rev. Lett. **17**, 1275-1277 (1966).
- [91] R. Trebino, D. J. Kane, J. Opt. Soc. Am. A **10**, 1101 (1993).
- [92] D. N. Fittinghoff, J. L. Bowie, J. N. Sweetser, R. T. Jennings, M. A. Krumbugel, K. W. DeLong, R. Trebino, I. A. Walmsley, Opt. Lett. **21**, 12 (1996).
- [93] G. G. Grigoryan, A. O. Melikyan, D. G. Sarkisyan, A. S. Sarkisyan, Determination of the third-order correlation function by noncollinear two-beam third-harmonic generation, Quantum Electron. **25**, 262-266 (1995).
- [94] T.-M. Liu, Y.-C. Huang, G.-W. Chern, K.-H. Lin, C.-J. Lee, Y.-C. Hung, C.-K. Sun, Triple-optical autocorrelation for direct optical pulse-shape measurement, Appl. Phys. Lett. **81**, 1402-1404 (2002).
- [95] D. Meshulach, Y. Barad, Y. Silberberg, Measurement of ultrashort optical pulses by third-harmonic generation, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2122-2125 (1997).

- [96] N. A. Papadogiannis, S. D. Moustazis, P. A. Loukakos, C. Kalpouzos, Temporal characterization of ultra short laser pulses based on multiple harmonic generation on a gold surface, *Appl. Phys. B* **65**, 339–345 (1997).
- [97] I. A. Walmsley, C. Dorrer, Characterization of ultrashort electromagnetic pulses, *Adv. Opt. Photon.* **1**, 308-437 (2009).
- [98] D. H. Auston, Measurement of picosecond pulse shape and background level, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 249-251 (1971).
- [99] J. Etchepare, G. Grillon, A. Orszag, Third order autocorrelation study of amplified subpicosecond laser pulses, *IEEE J. Quantum Electron.*, **19**, 775-778 (1983).
- [100] J. Janszky, G. Corradi, Full intensity profile analysis of ultrashort laser pulses using four-wave mixing or third harmonic generation, *Opt. Commun.* **60**, 251-256 (1986).
- [101] H. Schulz, H. Schuler, T. Engers, D. von der Linde, *IEEE J. Quantum Electron.* **25**, 2580-2585 (1989).
- [102] A. M. Streltsov, K. D. Moll, A. L. Gaeta, P. Kung, D. Walker, M. Razeghi, Pulse autocorrelation measurements based on two- and three-photon conductivity in a GaN photodiode, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 3778-3780 (1999).
- [103] H. Sakai, K. Miyazaki, G. U. Kim, Measurement of subpicosecond ultraviolet pulse widths by using the high-order nonlinear processes in a supersonic gas jet, *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 2015-2018 (1992).
- [104] R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses* (Kluwer Academic, Boston, 2002).
- [105] Y. Nomura, H. Shirai, T. Fuji, Frequency-resolved optical gating capable of carrier-envelope phase determination, *Nat. Commun.* **4**, 2820 (2013).



- [106] D. J. Kane, R. Trebino, Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating, *IEEE J. Quantum Electron.* **29**, 571-579 (1993).
- [107] K. W. DeLong, R. Trebino, J. Hunter, W. E. White, Frequency-resolved optical gating using second-harmonic generation, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2206-2215 (1994).
- [108] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbugel, B. A. Richman, Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 3277-3295 (1997).
- [109] A. Baltuška, M. S. Pshenichnikov, D. A. Wiersma, Amplitude and phase characterization of 4.5-fs pulses by frequency-resolved optical gating, *Opt. Lett.* **23**, 1474-1476 (1998).
- [110] S. Linden, J. Kuhl, H. Giessen, Amplitude and phase characterization of weak blue ultrashort pulses by downconversion, *Opt. Lett.* **24**, 569-571 (1999).
- [111] L. Gallmann, G. Steinmeyer, D. H. Sutter, N. Matuschek, U. Keller, Collinear type II second-harmonic-generation frequency-resolved optical gating for the characterization of sub-10-fs optical pulses, *Opt. Lett.* **25**, 269-271 (2000).
- [112] J. Zhang, A. P. Shreenath, M. Kimmel, E. Zeek, R. Trebino, S. Link, Measurement of the intensity and phase of attojoule femtosecond light pulses using Optical-Parametric-Amplification Cross-Correlation Frequency-Resolved Optical Gating, *Opt. Express* **11**, 601-609 (2003).
- [113] H. Miao, A. M. Weiner, C. Langrock, R. V. Roussev, M. M. Fejer, Polarization-insensitive ultralow-power second-harmonic generation frequency-resolved optical gating, *Opt. Lett.* **32**, 874-876 (2007).

[114] C. Iaconis, I. A. Walmsley, Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses, *IEEE J. Quantum Electron.* **35**, 501-509 (1999).

[115] V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, B. Lavorel, Measurement of high order Kerr refractive index of major air components, *Opt. Express* **18**, 3011-3012 (2010).

[116] V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, B. Lavorel, Measurement of high order Kerr refractive index of major air components, *Opt. Express* **17**, 13429-13434 (2009).