

VILNIAUS UNIVERSITETAS

Julius Darginavičius

**TRIJŲ IR KETURIŲ BANGŲ PARAMETRINIŲ
SĄVEIKŲ TAIKYMAS ULTRATRUMPŲJŲ
IMPULSŲ GENERACIJAI ULTRAVIOLETINIAME,
ARTIMAJAME IR VIDURINIAJAME
INFRARAUDONAJAME SPEKTRO RUIOŽE**

Daktaro disertacijos santrauka

Fiziniai mokslai, fizika (02P)

Vilnius, 2013

Disertacija rengta 2009–2013 metais Vilniaus universitete.

Mokslinis vadovas:

prof. habil. dr. Audrius Dubietis (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

Konsultantas:

dr. Gintaras Tamošauskas (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

Disertacija ginama Vilniaus universiteto fizikos mokslo krypties taryboje:

Pirmininkas – prof. habil. dr. Valdas Sirutkaitis
(Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

Nariai:

prof. dr. Artūras Jukna
(Vilniaus Gedimino technikos universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

dr. Audrius Pugžlys
(Vienos technikos universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

dr. Arūnas Varanavičius
(Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

dr. Rimantas Grigonis
(Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

Oponentai:

dr. Rytis Butkus
(Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

dr. Skirmantas Ališauskas
(Vienos technikos universitetas, fiziniai mokslai, fizika - 02P)

Disertacija bus ginama viešame Fizikos mokslo krypties tarybos posėdyje 2013 m. rugsėjo 20 d. 14 val. Vilniaus universiteto Fizikos fakulteto 510 auditorijoje. Adresas: Saulėtekio al. 9, LT-10222, Vilnius, Lietuva.

Disertacijos santrauka išsiuntinėta 2013 m. rugpjūčio mėn. 19 d. Disertaciją galima peržiūrėti Vilniaus universiteto bibliotekoje.

VILNIUS UNIVERSITY

Julius Darginavičius

**THREE AND FOUR WAVE PARAMETRIC
INTERACTIONS FOR ULTRASHORT PULSE
GENERATION IN THE ULTRAVIOLET, NEAR
AND MID-INFRARED SPECTRAL RANGE**

Summary of doctoral dissertation

Physical sciences, physics (02P)

Vilnius, 2013

The researched was performed in 2009-2013 at Vilnius University

Scientific supervisor:

prof. habil. dr. Audrius Dubietis (Vilnius university, physical sciences, physics - 02P)

Scientific advisor:

dr. Gintaras Tamošauskas (Vilnius university, physical sciences, physics - 02P)

Doctoral committee:

Chairman – prof. habil. dr. Valdas Sirutkaitis
(Vilnius university, physical sciences, physics - 02P)

Members:

prof. dr. Artūras Jukna
(Vilnius Gediminas technical university, physical sciences, physics - 02P)

dr. Audrius Pugžlys
(Vienna university of technology, physical sciences, physics - 02P)

dr. Arūnas Varanavičius
(Vilnius university, physical sciences, physics - 02P)

dr. Rimantas Grigonis
(Vilnius university, physical sciences, physics - 02P)

Opponents:

dr. Rytis Butkus
(Vilnius university, physical sciences, physics - 02P)

dr. Skirmantas Ališauskas
(Vienna university of technology, physical sciences, physics - 02P)

The dissertation will be defended under open consideration in the Council of Physics on the 20th of September, 2013, 2 p.m. at the Faculty of physics of Vilnius university, room 510. Address: Saulėtekio ave. 9, LT-10222, Vilnius, Lithuania.

The summary of the dissertation was distributed on the 19th of August, 2013. The dissertation is available at Vilnius university library.

Turinys

1	Ultratrumpųjų ultravioletinių šviesos impulsų optinis parametris stiprinimas ir generacija	11
1.1	Motyvacija	11
1.2	Ultravioletinių šviesos impulsų generacija skirtuminio dažnio žadinimo metodu	12
1.2.1	Trečiosios harmonikos generacija lydytame kvarce	13
1.2.2	Penktosios harmonikos generacija CaF_2 ir MgF_2 kristaluose	14
1.2.3	Šeštosios harmonikos generacija MgF_2 kristale	15
1.3	Keturbangis parametris šviesos stiprinimas	16
1.3.1	Plačiajuostis keturbangis parametris šviesos stiprinimas ultravioletiniame spektro ruože	16
1.3.2	Keturbangis optinis parametris čirpuotų impulsų stiprinimas	19
2	Derinamo bangos ilgio IR impulsų generacija regimojo diapazono dažnio konvertavimo metu	22
2.1	Motyvacija	22
2.2	Infraraudonųjų impulsų generacija keturių bangų sąveikos metu	23
2.3	Infraraudonųjų impulsų generacija trijų bangų sąveikos metu	25
2.3.1	Pagrindinė idėja	25
2.3.2	Kolinearus parametris stiprinimas I tipo BBO kristaluose	25
2.3.3	Pakopinis parametris tribangis stiprinimas BBO kristale	27
2.3.4	Nekolinearus optinis parametris stiprinimas I tipo BBO kristale	29
2.3.5	Plačiajuostis parametris stiprinimas 3–5.5 μm spektro ruože	32
3	Superkontinuumo generacija naudojant kelių optinių ciklų trukmės, stabilios gaubtinės fazės impulsus	34
3.1	Motyvacija	34
3.2	Superkontinuumo generacija anomalioje grupinių greičių dispersijos srityje	34
3.3	Trečiosios harmonikos generacija	36
3.4	Vienalaikė trečiosios harmonikos ir superkontinuumo generacija, netiesinis f-3f interferometras	36
	Pagrindiniai rezultatai ir išvados	38
	Literatūra	40

Ižanga

Daugelis cheminių ir biologinių procesų trunka vos kelis šimtus (ar net kelias dešimtis) femtosekundžių. Šių procesų tyrimams dažnai naudojami žadinimo-zondavimo spektroskopijos metodai [1, 2], kuriuose tiriamojo vyksmo laikinę skyrą lemia naudojamų šviesos impulsų trukmė. Be to, daugelyje tokių eksperimentų reikalingi ne tik labai trumpi, bet ir derinamo bangos ilgio impulsai [3]. Optiniai parametriniai stiprintuvai (OPS), kurie remiasi trijų bangų sąveikomis kvadratinio netiesiškumo kristaluose, leidžia generuoti itin trumpus impulsus regimojoje ir infraraudonąją (IR) spektro srityse [4–6], bei tapo nepakeičiamais prietaisais daugelyje mokslo sričių. Šių prietaisų efektyvumas, kita vertus, ženkliai mažėja ultravioletiniame (UV) spektro ruože pagrinde dėl grupinių greičių nederinimo (GGN) tarp sąveikaujančių impulsų bei netiesinės kaupinimo sugerties [7, 8]. Parametrinių stiprintuvų dažnio derinimui išplėsti į UV sritį dažniausiai naudojama harmonikų ir/arba suminio dažnio generacija, kuri tampa techniškai sudėtinga, kai reikalingi itin trumpi (pavyzdžiui 10 fs) UV impulsai [9]. Kiti pasiūlyti metodai UV impulsams generuoti remiasi keturių bangų sąveikomis skaidriose kubinio netiesiškumo terpėse. Kaip netiesinė terpė gali būti naudojamos inertinės dujos ar oras [10]. Mažas dujų netiesiškumas kompensuojamas naudojant didelį sąveikos ilgį dujomis užpildytuose kapiliaruose [11] arba generuojant šviesos gijas [12], o tokiais metodais sugeneruotų impulsų trukmė siekia 30 fs 200-300 nm spektro ruože [13] ir net 10 fs vakuuminio ultravioleto (VUV) srityje [14].

Kietojo kūno terpės pasižymi daug didesniu trečiosios eilės netiesiškumu nei dujos, tačiau jose realizuoti efektyvią keturių bangų parametrinę sąveiką nėra paprasta. Dėl didelės medžiagos dispersijos fazinio sinchronizmo sąlyga tenkinama tik naudojant nekolinearią pluoštų geometriją, o dėl didelio impulsų intensyvumo pasireiškia efektyvią sąveiką ribojantys veiksniai: savaiminė bei kryžminė fazės moduliacija, pluoštų fokusavimasis ir galiausiai medžiagos optinis pažeidimas, kurie įvyksta esant panašioms impulsų intensyvumams [15]. Šiai dienai, naudojant keturių bangų parametrinį

stiprinimą kietojo kūno terpėse, sugeneruotų impulsų energija siekia $\sim 1 \mu\text{J}$ regimojoje [16] ir kelis šimtus nJ infraraudonojoje [17] srityse. Antrajame šios disertacijos skyriuje parodysime, jog naudojant cilindrinę ir nekolinearią pluoštų fokusavimo geometriją keturbangis parametrinis stiprinimas skaidriose kietojo kūno terpėse gali būti sėkmingai naudojamas ir ultratrumpiesiems UV impulsams stiprinti.

Kelių optinių ciklų trukmės impulsų generacija bei stiprinimas artimojoje ($0.8\text{--}2 \mu\text{m}$) ir viduriniojoje infraraudonojoje ($2\text{--}20 \mu\text{m}$) spektro srityse šiuo metu sulaukia ypatingai daug dėmesio. Laiko skyros spektroskopijoje tokie impulsai naudojami molekulių struktūriniam pokyčiams tirti [18]. Kelių optinių ciklų impulsai taip pat taikomi stipriųjų laukų fizikoje: generuojant aukštąsias harmonikas [19], atosekundinius impulsus [20], tiriant viršslenkstinės jonizacijos reiškinius [21]. Pastariesiems eksperimentams, be to, reikalingi stabilios gaubtinės fazės impulsai. Kelių optinių ciklų trukmės IR impulsams gauti dažniausiai naudojami skirtuminio dažnio generacijos (SDG) arba OPS reiškiniai kvadratinio netiesiškumo kristaluose [22, 23]. Šiais metodais sugeneruotų impulsų trukmė siekia 10.5 fs (1.5 optiniai ciklai esant $2.1 \mu\text{m}$ centriniam bangos ilgiui), o energija net 1.2 mJ . Kitos mokslininkų grupės siūlo naudoti keturių bangų sąveiką dujinėse terpėse. Dėl mažos dujų dispersijos gaunama ypatingai plati stiprinimo juosta, o sugeneruotų impulsų trukmė artėja prie vieno optinio ciklo [24].

Ti:safyro lazerinė sistema, generuojanti $30\text{--}150 \text{ fs}$ trukmės, 800 nm bangos ilgio impulsus šiandien sutinkama daugelyje mokslinių laboratorijų visame pasaulyje. Šiuo lazeriu kaupinami nekolinearūs optiniai parametriniai stiprintuvai (NOPA, angl. *noncollinear optical parametric amplifier*) tapo nepakeičiami, kuomet reikalingi $<30 \text{ fs}$ trukmės regimosios srities impulsai. Trečiajame disertacijos skyriuje pateikti du metodai derinamo bangos ilgio ($1.1\text{--}2.8 \mu\text{m}$) impulsams generuoti naudojant komercinę Ti:safyro lazerio ir parametrinio stiprintuvo NOPA sistemą. Pirmas metodas remiasi keturių bangų sąveikomis lydytame kvarce, antrasis – skirtuminio dažnio generacija ir optiniu parametriniu stiprinimu I tipo β -bario borato (BBO) kristaluose.

Pagrindinis šios disertacijos tikslas – sukurti efektyvius trijų ir keturių bangų sąveikomis paremtus metodus $< 30 \text{ fs}$ trukmės, ultravioletinės, artimosios bei vidurinės infraraudonosios spektro srities impulsams generuoti.

Darbo uždaviniai

1. Pademonstruoti efektyvų keturių bangų sąveikomis parentą ultratrumpųjų impulsų dažnio keitimą skaidriose kietakūnėse plačios apertūros terpėse.
2. Pritaikyti optinio parametrinio čirpuotų impulsų stiprinimo metodologiją UV impulsams stiprinti keturių bangų parametriniame šviesos stiprintuve.
3. Sukurti efektyvius metodus regimosios srities ultratrumpųjų impulsų dažnio konvertavimui į artimąją ir viduriniąją IR spektro sritį, išlaikant <30 fs impulso trukmę.
4. Sukurti keleto optinių ciklų trukmės stabilios gaubtinės fazės IR impulsų šaltinį ir pademonstruoti jo taikymą itin plataus spektro superkontinuumo generacijai anomalioje grupinių greičių dispersijos srityje.

Praktinė nauda

1. Pademonstruota efektyvi trečiosios, penktosios ir šeštosios Nd:stiklo lazerio harmonikų generacija nekolinearaus keturbangio skirtuminio dažnio žadinimo metodu izotropinėse kubinio netiesiškumo terpėse.
2. Pademonstruotas plačiajuostis keturbangis čirpuotų impulsų parametrinis stiprinimas lydyto kvarco terpėje. Sukurtas šaltinis generuoja 10 μ J energijos, 30 fs trukmės ir 310 nm centrinio bangos ilgio impulsus.
3. Eksperimentiškai pademonstruota <30 fs trukmės, 1.1 – 1.5 μ m centrinio bangos ilgio impulsų generacija keturbangio nekolinearaus parametrinio stiprinimo metu lydyto kvarco terpėje.
4. Sukurtas derinamo dažnio ultratrumpųjų impulsų šaltinis, generuojantis <30 fs trukmės impulsus 1.2 – 2.4 μ m spektro ruože. Šio šaltinio veika remiasi kolineariomis skirtuminio dažnio generacijos bei optinio parametrinio stiprinimo sąveikomis BBO kristaluose. Metodas taip pat gali būti pritaikytas 3 – 5.5 μ m bangos ilgio impulsams generuoti.
5. Pademonstruotas plačiajuostis nekolinearus optinis parametrinis stiprinimas BBO kristale kaupinimui naudojant 800 nm spinduliuotę. Sugeneruoti dvi-

jų optinių ciklų trukmės, stabilios gaubtinės fazės bei derinamo bangos ilgio ($1.6 - 2.8 \mu\text{m}$) impulsai, kurių energija siekia $15 \mu\text{J}$.

6. Naudojant kelių optinių ciklų trukmės, stabilios gaubtinės fazės bei $2 \mu\text{m}$ bangos ilgio impulsus anomalioje grupinių greičių dispersijos (GGD) srityje galima generuoti stabilios fazės superkontinuumą, kurio spektras apima $450 \text{ nm} - \geq 2.5 \mu\text{m}$ bangos ilgių sritį.

Mokslinis tyrimų naujumas

1. Nekolineari pluoštų sukirtimo geometrija bei elipsinių pluoštų panaudojimas leidžia realizuoti efektyvią keturbangę parametrinę sąveiką kubinio netiesiškumo skaidriose kietojo kūno terpėse.
2. Optinė parametrinė čirpuotų impulsų stiprinimo metodologija pritaikyta keturbangiuose stiprintuvuose. Eksperimentiškai pademonstruotas 30 fs trukmės ultravioletinių impulsų šaltinis.
3. Keturbangio optinio parametrinio stiprintuvo stiprinimo juostos išplitimą lemia intensyvių impulsų savaiminės ir kryžminės fazės moduliacijos reiškiniai.
4. Naudojant I tipo BBO kristalą galima suderinti signalinio ir šalutinio impulsų grupinius greičius, kai kaupinimui naudojama 800 nm spinduliuotė, o signalo bangos ilgis kinta $1.6 - 2.8 \mu\text{m}$ ribose.
5. Iširta vienalaiškė trečiosios harmonikos ir superkontinuumo generacija skaidriose dielektrinėse terpėse. Pasiūlyta netiesinio $f-3f$ interferometro schema impulso gaubtinės fazės fliktuacijoms matuoti.

Ginamieji teiginiai

1. Naudojant cilindrinę bei nekolinearią pluoštų fokusavimo geometriją galima realizuoti efektyvų ultratrumpųjų impulsų keturbangį parametrinį stiprinimą plačios apertūros skaidriose kietojo kūno terpėse.
2. Efektyvi pakopinė skirtuminio dažnio generacijos bei parametrinio stiprinimo sąveika gali būti realizuota vienu metu tame pačiame I tipo BBO kristale, kai kaupinimui naudojama 800 nm ir $570-630 \text{ nm}$ bangos ilgio spinduliuotė.

3. Naudojant I tipo BBO kristalą ir 800 nm kaupinimo bangos ilgį galima suderinti signalinio ir šalutinio impulsų grupinius greičius nekolinearios parametrinės sąveikos metu, kai signalo bangos ilgis kinta 1.6 – 2.8 μm spektro srityje.
4. Skaidriose dielektrinėse terpėse stebima vienalaikė trečiosios harmonikos ir superkontinuumo generacija, o jų tarpusavio interferencija leidžia matuoti impulso gaubtinės fazės kitimą.

Aprobacija

Publikacijos susijusios su disertacijos tema

- [A1] A. Dubietis, H. Valtna, G. Tamošauskas, **J. Darginavičius**, and A. Piskarskas, Efficient ultrafast four-wave optical parametric amplification in condensed bulk media, Springer Series in Chemical Physics, Ultrafast phenomena, **16**, 792–794, proceedings of the 16th international conference, Italy (2009).
- [A2] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, and A. Dubietis, Broadband optical parametric amplification in bulk isotropic media in the ultraviolet, Opt. Commun., **282**, 2995–2999 (2009).
- [A3] **J. Darginavičius**, D. Majus, G. Tamošauskas, and A. Dubietis, Highly efficient third harmonic generation by means of four-wave difference-frequency mixing in fused silica, Lithuanian J. Phys. **49**, 171–174 (2009).
- [A4] A. Dubietis, **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, and A. Piskarskas, Generation and amplification of ultrashort UV pulses via parametric four-wave interactions in transparent solid-state media, Lithuanian J. Phys. **49**, 421–431 (2009).
- [A5] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, and A. Dubietis, Generation and amplification of ultraviolet light pulses by means of parametric four-wave interactions in transparent solid-state media, AIP Conf. Proc, **1228**, 351–358 (2010).
- [A6] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of 30-fs ultraviolet pulses by four-wave optical parametric chirped pulse amplification, Opt. Express, **18**, 16096–16101 (2010).

- [A7] E. Rubino, **J. Darginavičius**, D. Faccio, P. Di Trapani, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of broadly tunable sub-30-fs infrared pulses by four-wave optical parametric amplification, *Opt. Lett.*, **36**, 382–384 (2011).
- [A8] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of sub-30 fs tunable infrared pulses by parametric visible-to-infrared frequency conversion, *AIP Conf. Proc.*, **1462**, 92–95 (2012).
- [A9] **J. Darginavičius**, E. Rubino, G. Tamošauskas, D. Faccio, G. Valiulis, P. Di Trapani, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of tunable infrared femtosecond pulses via parametric visible-to-infrared frequency conversion, *Lithuanian J. Phys.* **51**, 221–229 (2011).
- [A10] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, A. Piskarskas, G. Valiulis, and A. Dubietis, Generation of tunable few optical-cycle pulses by visible-to-infrared frequency conversion, *Appl. Phys. B.* **108**, 1–7 (2012).
- [A11] **J. Darginavičius**, N. Garejev, and A. Dubietis, Generation of carrier-envelope phase-stable two optical-cycle pulses at 2 μm from a noncollinear BBO optical parametric amplifier, *Opt. Lett.*, **37**, 4805–4807 (2012).
- [A12] **J. Darginavičius**, D. Majus, V. Jukna, G. Valiulis, and A. Dubietis, Ultra-broadband supercontinuum and third-harmonic generation in bulk solids with two optical-cycle carrier-envelope phase-stable pulses at 2 μm , *Opt. Express*, pateiktas spaudai (2013).

Kitos publikacijos (neįtrauktos į disertacijos medžiagą)

- [A13] D. Faccio, G. Tamošauskas, E. Rubino, **J. Darginavičius**, D. G. Papazoglou, S. Tzortzakis, A. Couairon, and A. Dubietis, Cavitation dynamics and directional microbubble ejection induced by intense femtosecond laser pulses in liquids, *Phys. Rev. E.* **86**, 036304 (2012).

Pranešimai konferencijose

Pristatyti disertanto asmeniškai:

- [C1] **J. Darginavičius**, A. Dubietis, G. Tamošauskas, and G. Valiulis, Generation and amplification of ultraviolet light pulses by means of parametric four-wave

- interactions in transparent solid-state media, Int. Conf. Light at Extreme Intensities, Brasov, Romania, (2009).
- [C2] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of 30-fs ultraviolet pulses by four-wave optical parametric chirped pulse amplification, Alexander von Humboldt Forum, Vilnius, Lithuania, (2010).
- [C3] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of 30-fs ultraviolet pulses by four-wave optical parametric chirped pulse amplification, 66 International summer school in ultrafast nonlinear optics SUSSP 66, Edinburgh, United Kingdom, (2010).
- [C4] **J. Darginavičius**, E. Rubino, D. Faccio, P. Di Trapani, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of broadly tunable sub-30-fs infrared pulses by four-wave optical parametric amplification, EOS Annual Meeting 2010, Paris, France, (2010).
- [C5] **J. Darginavičius**, E. Rubino, G. Tamošauskas, D. Faccio, G. Valiulis, P. Di Trapani, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of tunable infrared femtosecond pulses via parametric visible-to-infrared frequency conversion, 39th Lithuanian national physics conference, Vilnius, Lithuania, (2011).
- [C6] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, A. Piskarskas, and A. Dubietis, Generation of sub-30 fs tunable infrared pulses by parametric visible-to-infrared frequency conversion, Int. Conf. Light at Extreme Intensities, Szeged, Hungary, (2011).
- [C7] **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, A. Piskarskas and A. Dubietis, Generation of tunable infrared femtosecond pulses via parametric visible-to-infrared frequency conversion, Advanced Solid-State Photonics (ASSP) Topical meeting, San Diego, United States, (2012).
- [C8] **J. Darginavičius**, D. Majus, V. Jukna, N. Garejev, T. Vasiliauskas, and A. Dubietis, Ultrabroadband supercontinuum generation in bulk solids with few-optical-cycle CEP-stable pulses at 2 μm , Int. Conf. Northern optics, Snekkersten, Denmark, (2012).

Bendraautorius:

- [C9] A. Dubietis, **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, and A. Piskarskas, Generation and amplification of ultraviolet light pulses by means of parametric four-wave interactions in transparent solid-state media, 38th Lithuanian national physics conference, Vilnius, Lithuania (2009).
- [C10] A. Dubietis, **J. Darginavičius**, G. Tamošauskas, G. Valiulis, and A. Piskarskas, Phase-matched frequency conversion through parametric four-wave interactions in transparent isotropic solid-state media, Int. Conf. Northern optics, Vilnius, Lithuania, (2009).
- [C11] A. Dubietis, **J. Darginavičius**, D. Majus, N. Garejev, V. Jukna, and G. Valiulis, Supercontinuum generation in wide bandgap dielectrics with two optical-cycle infrared pulses, 40th Lithuanian national physics conference, Vilnius, Lithuania (2013).

Bendra autorių indėlis

Šioje disertacijoje aprašyti moksliniai tyrimai buvo atlikti 2009–2013 metais Vilniaus universitete, Kvantinės elektronikos katedroje. Eksperimentinius tyrimus bei dalį kompiuterinio modeliavimo atliko pats autorius, tačiau svarbu paminėti ir šių bendra autorių indėlių:

- prof. habil. dr. **A. Dubietis**¹ suformulavo vykdomų eksperimentų užduotis bei vadovavo tiriamojo darbo procesui. Iniciavo keturių bangų stiprinimo/generacijos eksperimentus, kelių optinių ciklų stabilios gaubtinės fazės impulsų tyrimus bei superkontinuumo generacijos anomalios GGD srityje tyrimus. Taip pat padėjo interpretuoti gautus rezultatus ir parengti mokslines publikacijas.
- dr. **G. Tamošauskas**¹ kartu atliko plačiajuosčio keturbangio optinio parametrinio stiprinimo tyrimus, dalyvavo UV harmonikų generacijos eksperimentuose, davė daugybę patarimų eksperimentinės lazerių fizikos klausimais.
- prof. habil. dr. **G. Valiulis**¹ išvedė intensyvių pluoštų keturbangės parametrinės sąveikos lygtis, paaiškino eksperimentiškai stebimą trečiosios harmonikos generaciją esant dideliame fazinių ir grupinių greičių nederinimui, konsultavo įvairiais netiesinės optikos klausimais.

- dokt. **D. Majus**¹ atliko superkontinuumo generacijos anomalios GGD srityje tyrimus.
- dr. **D. Faccio**² inicijavo keturbangio parametrinio stiprinimo IR spektro srityje tyrimus, dalyvavo interpretuojant eksperimento rezultatus bei rengiant publikaciją.
- dr. **E. Rubino**² apdorojo antrosios harmonikos FROG (angl. *frequency resolved optical gating*) duomenis, kartu atliko keturbangio parametrinio stiprinimo IR spektro srityje tyrimus.
- studentas **N. Garejev**¹ padėjo apdoroti trečiosios harmonikos FROG duomenis.

¹Kvantinės elektronikos katedra, Vilniaus universitetas, Saulėtekio al. 9, 3 rūmai, LT-10222 Vilnius, Lietuva.

²School of Engineering and Physical Sciences, SUPA, Heriot-Watt University, Edinburgh EH14 4AS, Scotland, United Kingdom.

1 skyrius

Ultratrumpųjų ultravioletinių šviesos impulsų optinis parametris stiprinimas ir generacija

1.1 Motyvacija

Femtosekundiniai UV šviesos impulsai plačiai taikomi daugelyje fizikos, chemijos bei biologijos sričių. Didelės galios ultratrumpieji UV šviesos impulsai naudojami medžiagų paviršiaus abliacijai [25], tūrio ir paviršiaus struktūrinėms modifikacijoms sudaryti [26], didelio periodo Brego gardelių užrašymui šviesolaidyje [27], biologinių medžiagų apdirbime [28], nagrinėjant ultrasparčiuosius fotochemijos ar fotobiologijos procesus [29].

Egzistuoja ne vienas būdas ultratrumpiesiems UV šviesos impulsams generuoti. Vienas jų – keturbangė parametris šviesos sąveika skaidriose izotropinėse terpėse, pastaruosiu metu sulaukianti vis didesnio dėmesio. Keturbangis parametris šviesos stiprinimas ir/arba generacija inertinėse dujose bei ore jau dabar leidžia generuoti kelių dešimčių femtosekundžių trukmės ir kelių μJ energijos UV impulsus [11, 13, 14, 30–32]. Tokiais metodais sugeneruotų šviesos impulsų trukmės artėja prie 1 fs (kelių optinių ciklų) [33, 34].

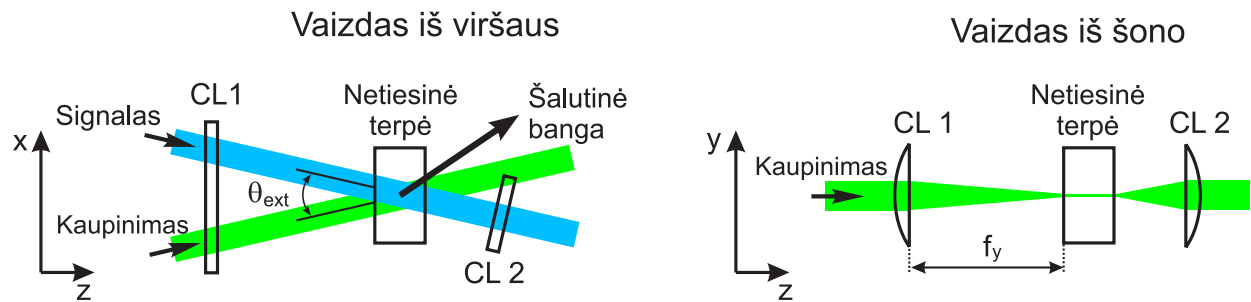
Kita vertus, keturbangės parametrinės sąveikos eksperimentai skaidriose kondensuotose terpėse dažniausiai apsiriboja generacija/stiprinimu IR ir regimojoje spektro srityse, naudojant aštriai fokusuotus šviesos pluoštus [16, 17, 35, 36], kai tuo tarpu impulsų generacijai UV ruože skiriama daug mažiau dėmesio. Dažniausiai apsiribojama trečiosios harmonikos generacija, naudojant įvairias eksperimento schemas: naudojant trečiosios eilės netiesiškumą skaidriuose dvejetainiai laujiančiuose kristaluose [37, 38], keturbangę skirtuminio dažnio generaciją kondensuotose terpėse [39] ar

tiesiogiai trigubinant dažnį skysčiuose [40]. Nepaisant to, kad kondensuotos terpės lyginant su dujomis pasižymi daug didesniu trečiosios eilės netiesiškumu, dėl didelės jų dispersijos sunku vienu metu patenkinti fazinio synchronizmo sąlygą ir išlaikyti didelį sąveikos ilgį. Be to, dėl didelio šviesos pluoštų intensyvumo pasireiškia efektyvią sąveiką ribojantys netiesiniai procesai – fokusavimasis, kryžminė ir savaiminė fazės moduliacijos, optinis medžiagos pažeidimas. Šios priežastys neleidžia gauti efektyvios keturbangės parametrinės sąveikos kietuose kūnuose ir skysčiuose, o iki šiol sugeneruotų impulsų energijos siekia tik $\sim 1 \mu\text{J}$ regimojoje [16] ir kelis šimtus nJ IR [17] spektro srityse.

Neseniai buvo pademonstruota efektyvi keturbangė parametrinė sąveika kondensuotose terpėse naudojant didelės energijos elipsinius pluoštus, išlaikant didelį sąveikos ilgį, tuo pačiu metu tenkinant fazinio synchronizmo sąlygą [41, 42].

1.2 Ultravioletinių šviesos impulsų generacija skirtuminio dažnio žadinimo metodu

1.2.1, 1.2.2 ir 1.2.3 skyreliuose pademonstruosime, jog taikant elipsinių pluoštų bei nekolinearaus fazinio synchronizmo metodologiją, galima efektyviai žadinti Nd:stiklo lazerio 3-ąją, 5-ąją bei 6-ąją harmonikas kietojo kūno terpėse.



1.1 pav. Principinė eksperimento schema. CL1 ir CL2 – pluoštą fokusuojantis bei skėstį kompensuojantis cilindriniai lęšiai. θ_{ext} – išorinis synchronizmo kampas, $\theta_{\text{ext}} \approx n(\omega_s)\theta$.

Bendra eksperimento schema pavaizduota 1.1 pav. Kaupinimo ir signalinis pluoštai fokusuojami vertikaliuoje (y) plokštumoje, tuo tarpu pluoštų sukirtimas fazinio synchronizmo kampu atliekamas horizontalioje (x) plokštumoje. Pasirinkta geometrija leidžia naudoti didelės energijos impulsus neviršijant medžiagos optinio pažeidimo slenksčio, kartu užtikrinant didelį sąveikos ilgį. Buvo pademonstruota, jog keturbangė parametrinė sąveika neleidžia elipsiniame pluošte stiprėti amplitudiniam triukšmui ir susidaryti daugybinėms šviesos gijoms [41, 42], taigi, elipsinių pluoštų

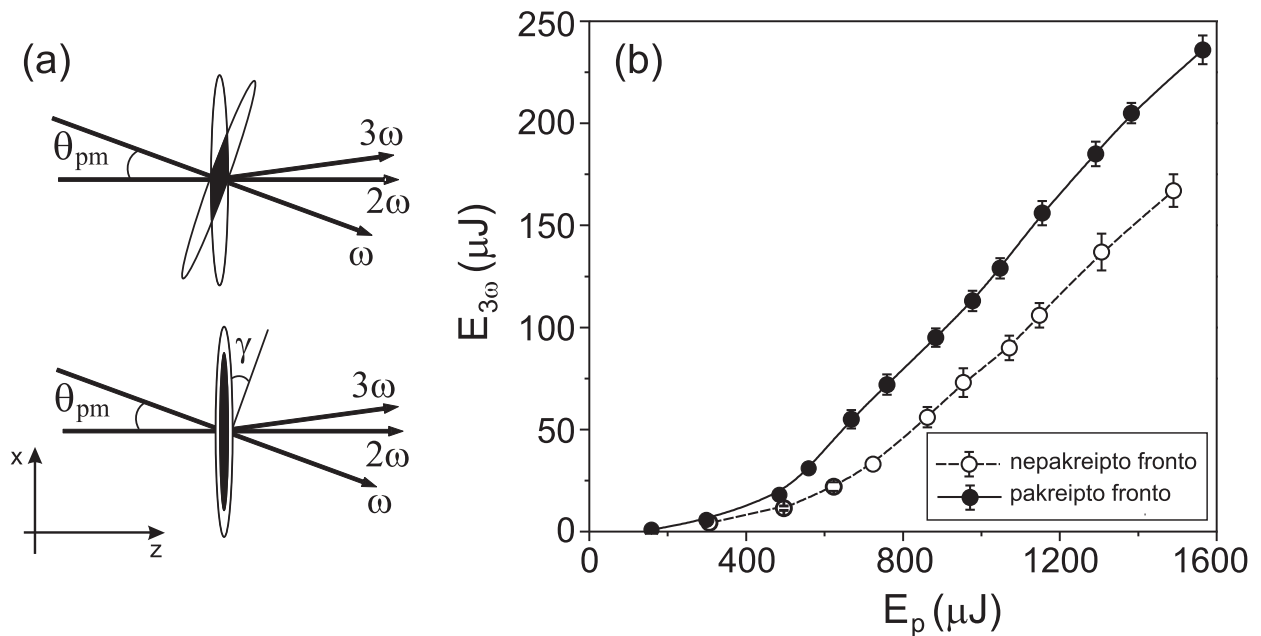
panaudojimas šiame darbe leido ne tik padidinti sąveikos ilgį ir impulsų energijas, bet ir išlaikyti geras kaupinimo, signalo ir šalutinės bangų pluoštų charakteristikas.

1.2.1 Trečiosios harmonikos generacija lydytame kvarce

Eksperimente buvo naudojamas Nd:stiklo lazeris Twinkle (gamintojas Šviesos konversija) generuojantis 1 ps, 1055 nm bangos ilgio impulsus 10 Hz pasikartojimo dažniu. Eksperimentiškai trečiosios harmonikos generacija buvo realizuota $3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega$ sąveikos metu sukertant pagrindinės Nd:stiklo lazerio harmonikos (1055 nm) ir 2-osios (527 nm) harmonikos bangas 3 mm storio lydyto kvarco bandinyje fazinio sinchronizmo $\theta = 11^\circ$ kampu:

$$\theta = \arccos \frac{4k_p^2 + k_s^2 - k_i^2}{4k_s k_p}, \quad (1.1)$$

kur $k = n(\omega)\omega/c$ yra bangos skaičius, c – šviesos greitis, $n(\omega)$ – medžiagos lūžio rodiklis, indeksai p, s, i atitinkamai žymi kaupinimo, signalinę ir šalutinę bangas. Bendra kaupinimo energija buvo lygi $E_\omega + E_{2\omega}$, o kaupinimo bangų energijų santykis tenkino Manley-Rowe sąryšį: $E_{2\omega} : E_\omega = 4 : 1$. Išmatuoti elipsinių pluoštų matmenys ant priekinio bandinio paviršiaus siekė $5 \text{ mm} \times 50 \text{ }\mu\text{m}$ (pusės intensyvumo aukštyje). Didelis elipsinių pluoštų sukirtimo kampas stipriai sumažina geometrinį



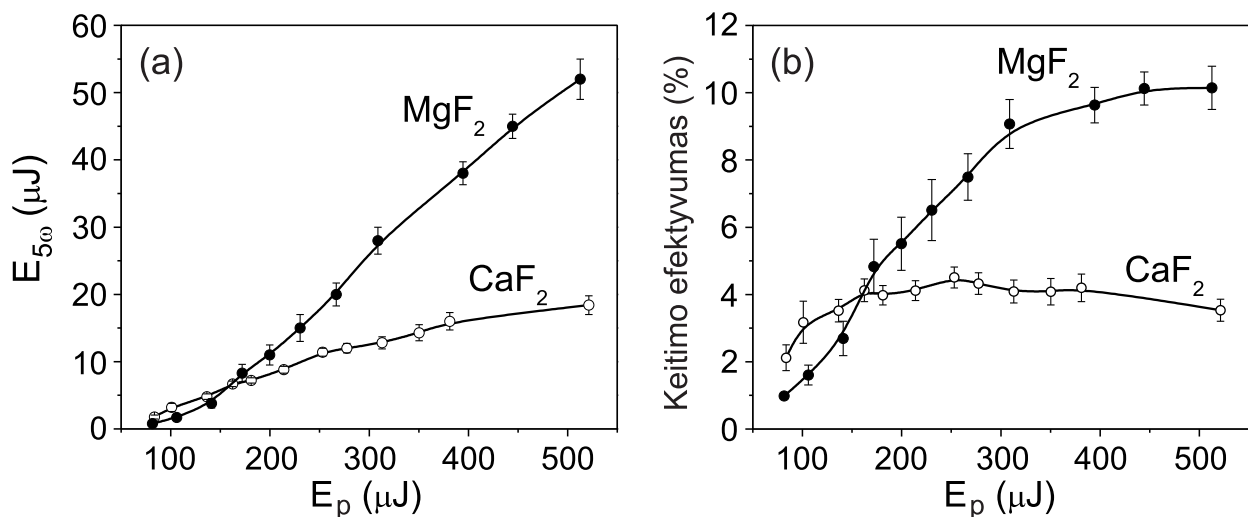
1.2 pav. (a) Principinė pluoštų/impulsų persiklojimo geometrija ir sąveikos sritis (juodas plotas) su pakreipto ir nepakreipto amplitudinio fronto impulsais. (b) 3-iosios harmonikos impulsų energijos priklausomybė nuo kaupinimo impulsų energijos matavimuose su pakreipto (pilnaviduriai apskritimai) ir nepakreipto (tuščiaviduriai apskritimai) amplitudinio fronto impulsais.

pluoštų/impulsų persiklojimą, kuris schematiškai pavaizduotas 1.2(a) pav. Sąvei-

kai optimizuoti pagrindinės harmonikos impulso amplitudinis frontas buvo pakreiptas $\gamma = 8.6^\circ$ kampu panaudojus 4 TF5 stiklo prizmes su 60° laužiančiuoju kampu. Toks pluoštų/impulsų persiklojimo optimizavimas 25 – 30% pagerino energijos keitimo efektyvumą, kurio priklausomybė nuo kaupinimo impulsų energijos pavaizduota 1.2(b) pav (šiuose paveiksluose palyginimui parodyti rezultatai gauti ir su nepakreipto amplitudinio fronto impulsais). Pavyko sugeneruoti $E_{3\omega} = 230 \mu\text{J}$ energijos TH impulsus, esant bendrai $E_\omega + E_{2\omega} = 1.55 \text{ mJ}$ kaupinimo impulsų energijai, kas atitinka 15% energijos keitimo efektyvumą.

1.2.2 Penktosios harmonikos generacija CaF_2 ir MgF_2 kristaluose

5-oji (211 nm) Nd:stiklo lazerio harmonika generuota keturbangės parametrinės sąveikos $5\omega = 4\omega + 4\omega - 3\omega$ metu. 5-osios harmonikos generacijai buvo pasirinkti CaF_2 ir MgF_2 kristalai. Abi šios medžiagos turi didelį draustinį energijos juostų tarpą, pasižymi plačia skaidrumo sritimi bei maža dvifotone sugertimi. Kristalų ilgiai ($l_{\text{CaF}_2} = 4 \text{ mm}$, $l_{\text{MgF}_2} = 4 \text{ mm}$) buvo pasirinkti atsižvelgus į mažiausią grupinių greičių nederinimo ilgį tarp 3ω , 4ω ir 5ω dažnio impulsų. Išmatuoti elipsinių pluoštų matmenys ant priekinio bandinio paviršiaus siekė $2.9 \text{ mm} \times 30 \mu\text{m}$ (pusės intensyvumo aukštyje), o fazinio sinchronizmo kampai $\theta_{\text{pm}} = 8.3^\circ$, $\theta_{\text{pm}} = 7.2^\circ$ atitinkamai CaF_2 ir MgF_2 kristalams.



1.3 pav. 5-osios harmonikos generacijos CaF_2 ir MgF_2 kristaluose rezultatai. (a) 5-osios harmonikos impulsų energijos priklausomybė nuo kaupinimo impulsų energijos. (b) 5-osios harmonikos generacijos efektyvumo ($\eta = E_{5\omega}/(E_{4\omega} + E_{3\omega})$) priklausomybė nuo kaupinimo impulsų energijos.

Pagrindiniai eksperimento rezultatai pateikti 1.3 pav. Abscisių ašyje atidėta bendra kaupinimo energija $E_{4\omega} + E_{3\omega}$ (atsižvelgus į Manley-Rowe sąryšį $E_{4\omega} : E_{3\omega} = 8 :$

3). CaF_2 kristale didžiausias energijos keitimo efektyvumas (4.5%) gautas esant $E_{4\omega} + E_{3\omega} = 250 \mu\text{J}$ kaupinimo impulsų energijai. Sugeneruotos 5-osios harmonikos impulsų energija siekė 13 μJ . Toliau didinant kaupinimo energiją buvo pasiekta generacijos sotis, kai 5-osios harmonikos impulsų energija, didinant kaupinimo bangų energiją, didėja nežymiai ($E_{5\omega} = 18 \mu\text{J}$ kai $E_{4\omega} + E_{3\omega} = 520 \mu\text{J}$). MgF_2 kristalas, kita vertus, pasirodė kur kas tinkamesnė netiesinė terpė 5-osios harmonikos generacijai. Sugeneruotų impulsų energijos siekė $E_{5\omega} = 52 \mu\text{J}$ esant $E_{4\omega} + E_{3\omega} = 500 \mu\text{J}$ kaupinimo energijai (kas atitinka $\approx 10\%$ keitimo efektyvumą).

Netiesinė sugertis visada buvo aktuali problema generuojant impulsus UV spektro srityje. Šiame eksperimente didžiausią intensyvumą turėjo 4ω dažnio (264 nm bangos ilgio) spinduliuotė. Kadangi dvifotonės sugerties koeficiento verčių CaF_2 ir MgF_2 kristalams 264 nm bangos ilgio spinduliuotei literatūroje nėra pateikta, tai mes šiuos koeficientus išmatavome: $\beta_{\text{CaF}_2} = 7.3 \times 10^{-12} \text{ cm/W}$, $\beta_{\text{MgF}_2} = 1.9 \times 10^{-12} \text{ cm/W}$. Įvertinę dvifotonės sugerties koeficientus ir netiesinės sugerties įtaką kaupinimo bangai, galime pilnai interpretuoti eksperimento rezultatus, pateiktus 1.3 pav. CaF_2 kristalas pasižymi didesniu netiesiškumu $\chi^{(3)}$ negu MgF_2 , todėl, esant mažoms kaupinimo impulsų energijoms (80–150 μJ), generacija efektyvesnė CaF_2 bandinyje. Didinant kaupinimo impulsų energiją stipriai pasireiškia 264 nm spinduliuotės sugertis CaF_2 kristale, o generacijos efektyvumas pasiekia sotį. MgF_2 , kurio dvifotonės sugerties koeficientas beveik 4 kartus mažesnis nei CaF_2 , nepaisant mažesnio netiesiškumo, pasirodė kaip tinkamesnė medžiaga 5-osios harmonikos generacijai, leidžianti gauti $E_{5\omega} = 52 \mu\text{J}$ energijos impulsus su $\approx 10\%$ keitimo efektyvumu.

1.2.3 Šeštosios harmonikos generacija MgF_2 kristale

Įprastinių kvadratinio netiesiškumo kristalų panaudojimo galimybės generuojant ultratrumpuosius VUV šviesos impulsus yra ribotos dėl didelio grupinių greičių nederinimo tarp sąveikaujančių impulsų, tiesinės ir netiesinės sugerties bei fazinio sinchronizmo apribojimų. Šiai dienai trumpiausi bangos ilgiai gauti $\chi^{(2)}$ terpėse: LBO – 172.7 nm [43], $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ – 175 nm [44], $\text{KB}_5\text{O}_8 \times 4\text{H}_2\text{O}$ – 166 nm [45]. Tipinės femtosekundinių impulsų energijos siekia 10–100 nJ.

6-oji (176 nm) Nd:stiklo lazerio harmonika gauta realizavus $6\omega = 4\omega + 4\omega - 2\omega$ keturbangę sąveiką 2 mm MgF_2 kristale. MgF_2 pasirinktas dėl mažos netiesinės sugerties, terpės ilgis pasirinktas atsižvelgus į grupinių greičių nederinimo ilgį tarp sąveikaujančių impulsų. Kadangi 176 nm spinduliuotė yra stipriai sugerama deguo-

nies, MgF₂ kristalas buvo patalpintas į azotu užpildytą kamerą. Maksimali 6-osios harmonikos energija siekė $E_{6\omega} = 10 \mu\text{J}$ esant $E_{4\omega} + E_{2\omega} = 900 \mu\text{J}$ kaupinimo energijai (atitinka $\approx 1.1\%$ energijos keitimo efektyvumą). Mūsų žiniomis, tai didžiausia pasiekta 1 ps impulsų energija VUV spektro ruože.

1.3 Keturbangis parametrinis šviesos stiprinimas

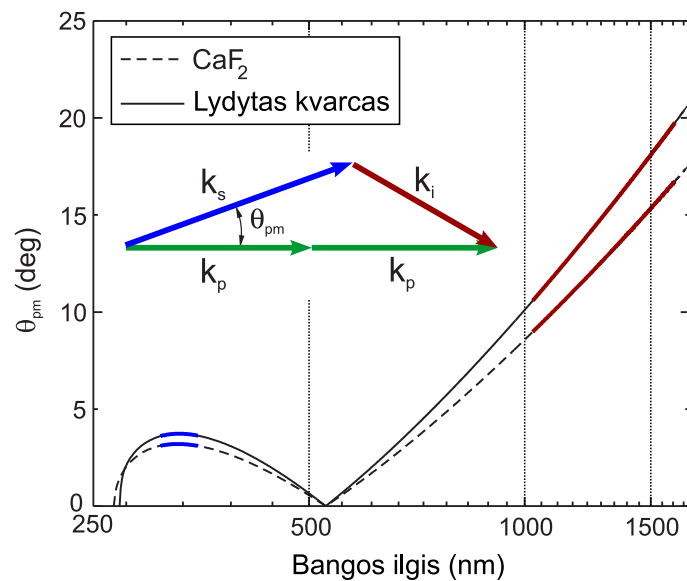
Ultravioletinių < 50 fs trukmės impulsų generacija ir stiprinimas nėra lengvai sprendžiama problema. Parametrinė tribangė sąveika $\chi^{(2)}$ kristaluose šiandien yra pagrindinė metodika leidžianti gauti ultratrumpuosius šviesos impulsams, derinamus regimojoje–vidurinėje IR spektro srityse. Šių prietaisų efektyvumas, kita vertus, stipriai mažėja stiprinant < 50 fs trukmės UV impulsus dėl didelio grupinių greičių nederinimo, tiesinės ir netiesinės (pagrindė dvifotonės) sugerties [7, 8]. Norint išplėsti bangos ilgio derinimą į UV pusę, dažniausiai naudojama antrosios harmonikos ir/arba suminio dažnio generacija [46, 47]. Praktinis pastarųjų metodų realizavimas tampa techniškai sudėtingas, kai generuojami labai trumpi, 10 fs eilės, impulsai. Tipinės impulsų energijos siekia keletą μJ , o sąveikos efektyvumas dažniausiai neviršija 20 %.

Naudojant keturbangę parametrinę sąveiką įmanoma tiesiogiai stiprinti/generuoti ultratrumpuosius didelės energijos UV impulsus skaidriose izotropinėse terpėse su kubiniu netiesiškumu. Kaip netiesinė terpė gali būti naudojamos dujos (pavyzdžiui inertinės dujos arba oras) [48]. Mažas dujų trečios eilės netiesiškumas kompensuojamas dideliu sąveikos ilgiu, naudojant dujomis užpildytus kapiliarus [11, 13] arba generuojant šviesos gijas [32]. Kondensuotos terpės, kita vertus, pasižymi daug didesniu netiesiškumu ir gali būti naudojamos kaip alternatyva dujoms. 1.3.1 ir 1.3.2 skyreliuose parodysime, jog keturių bangų parametrinė sąveika kondensuotose terpėse įgalina stiprinti < 10 fs trukmės ultravioletinius impulsus.

1.3.1 Plačiajuostis keturbangis parametrinis šviesos stiprinimas ultravioletiniame spektro ruože

Eksperimente buvo naudojamas Nd:stiklo lazeris Twinkle (Šviesos konversija). Po antrosios harmonikos generacijos KDP kristale, turėjome 527 nm bangos ilgio ir 3 mJ energijos impulsus. Lazerio pluoštas buvo padalintas į du: mažesnės energijos pluoštas (1 mJ) buvo naudojamas kaupinti keturbangį parametrinį šviesos stiprintuvą. Didesnės energijos pluoštas (2 mJ) buvo naudojamas signalo generavimui. Derina-

mo bangos ilgio spinduliuotė ultravioletinėje spektro srityje buvo gauta generuojant suminį dažnį 3 mm KDP kristale; sumuojami dažniai: antroji lazerio harmonika (527 nm) ir optinio parametrinio generatoriaus TOPAS (Šviesos konversija) signalas (750 – 1200 nm). Tokia sistema leido gauti bangos ilgius 310 – 365 nm intervale. Kaupinimo ir signalinis pluoštai buvo fokusuojami ant priekinio bandinio paviršiaus cilindriniais lęšiais ($f_y = +750$ mm; $f_x = \infty$) ir ($f_y = +500$ mm; $f_x = \infty$), o jų matmenys (pusės intensyvumo aukštyje) buvo lygūs atitinkamai 4.7 mm \times 55 μ m ir 3 mm \times 50 μ m. Lydyto kvarco ir CaF_2 medžiagos šiam eksperimentui buvo pasirinktos dėl savo didelio netiesiškumo, mažos tiesinės ir netiesinės sugerties bei aukšto optinio pažeidimo slenksčio.



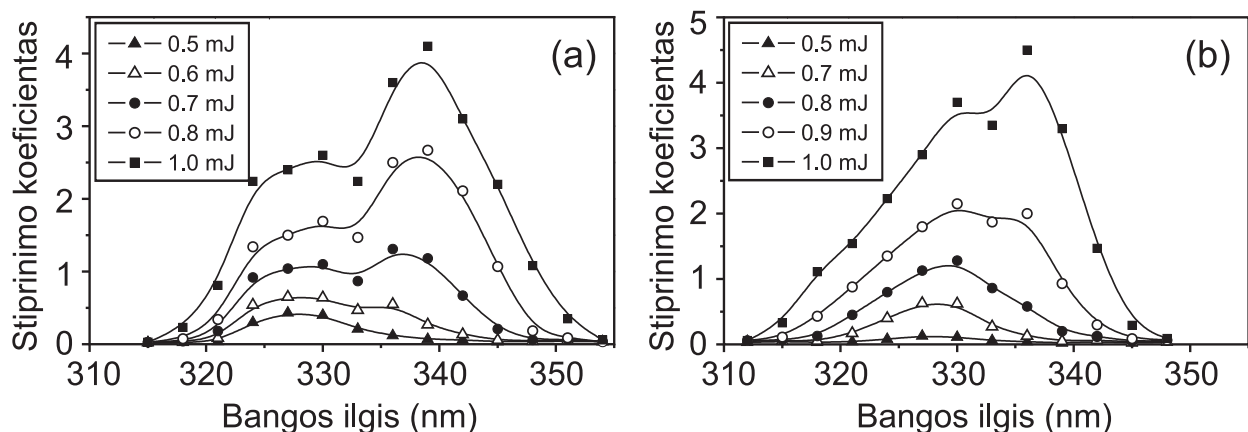
1.4 pav. Keturbangio parametrinio stiprinimo fazinio sinchronizmo kreivės lydytam kvarcui ir CaF_2 kaupinant $\lambda = 527$ nm bangos ilgio impulsais. Paryškintos sritys – naudoti signalo bangos ilgiai bei juos atitinkantys šalutinės bangos ilgiai. Papildomas paveikslėlis rodo bangos vektorių diagramą.

Pasinaudojus 1.1 formule apskaičiuotos fazinio sinchronizmo kreivės, kurios pa-vaizduotos 1.4 pav. Ordinačių ašyje atidėtas fazinio sinchronizmo kampas θ_{pm} tarp signalinio ir kaupinimo pluoštų. Abiejų medžiagų fazinio sinchronizmo kreivės turi linkio tašką ties 330 nm. Šio bangos ilgio aplinkoje fazinio sinchronizmo kampas kinta nežymiai, t.y. fazinio sinchronizmo sąlyga tenkinama plačiame bangos ilgių intervale, todėl ši sritis tinka ultratrumpiesiems (plataus spektro) šviesos impulsams stiprinti. Apskaičiuoti optimalūs fazinio sinchronizmo kampai 330 nm bangos ilgiui lydytam kvarcui: $\theta = 3.7^\circ$, CaF_2 kristale $\theta = 3.2^\circ$. Bandinių ilgių ($l_{\text{lyd.kvarco}} = 5$ mm ir $l_{\text{CaF}_2} = 6$ mm) pasirinkti atsižvelgus į mažiausią grupinių greičių nederinimo ilgį 315 – 355 nm bangos ilgių intervale. Plačiajuosčio keturbangio parametrinio švie-

šios stiprintuvo tyrimas buvo atliktas kaupinimo impulsų energiją keičiant nuo 0 iki 1 mJ, tuo tarpu signalo impulsų energija buvo fiksuota ir lygi 10 μJ . Matavimai atlikti stiprinant siauro spektro impulsus (≈ 1 nm pusės intensyvumo aukštyje), todėl stiprinimo juostos pločiui nustatyti signalo bangos ilgis buvo keičiamas kas 3 nm 315 – 355 nm intervale, išlaikant tą patį fazinio sinchronizmo kampą (3.7° ir 3.2° lydytam kvarcui bei CaF_2 atitinkamai). Stiprinimo koeficientas $G(\lambda)$ buvo įvertintas pagal (1.2) formulę:

$$\frac{E_1(\lambda)}{E_{10}} = 1 + G(\lambda), \quad (1.2)$$

čia E_{10} – pradinė signalo impulsų energija lygi 10 μJ , $E_1(\lambda)$ – sustiprinto signalo impulsų energija. 1.5 paveiksle pateikti keturbangio parametrinio šviesos stiprintuvo



1.5 pav. Plačiajuosčio keturbangio parametrinio stiprintuvo stiprinimo juostos pločio ir stiprinimo koeficiento priklausomybės nuo kaupinimo impulsų energijos lydyto kvarco ir CaF_2 bandiniuose.

stiprinimo juostos pločio matavimo rezultatai. Esant mažoms kaupinimo impulsų energijoms ($E = 0.5 - 0.6$ mJ), abi tirtos medžiagos pasižymi mažu stiprinimu ($G(\lambda) < 1$) ir simetrišku varpo formos stiprinimo juostos profiliu, kurios plotis abiem atvejais artimas 10 nm. Tačiau, didinant kaupinimo energiją, stiprinimo juosta pastebimai praplatėja ir įgauna asimetrišką profilį su maksimumu, pasislinkusiu į ilgesnių bangų pusę (didžiausias stiprinimas gaunamas ties 340 nm ir 337 nm bangos ilgiais atitinkamai lydytame kvarce ir CaF_2). Pagal matavimo rezultatus įvertinti maksimalūs stiprinimo juostų pločiai: lydyto kvarco – 21 nm, CaF_2 – 17.5 nm. Svarbu paminėti, jog 20 nm pločio stiprinimo juostos pakanka stiprinti 7.5 fs trukmės spektriškai ribotus Gauso formos impulsus, kurių centrinis bangos ilgis $\lambda = 330$ nm. Esant maksimaliai kaupinimo impulsų energijai ($E = 1$ mJ), didžiausia sustiprinto signalinio impulso energija siekė 55 μJ , tai atitinka 4% energijos keitimą iš kaupinimo

į signalinę bangą.

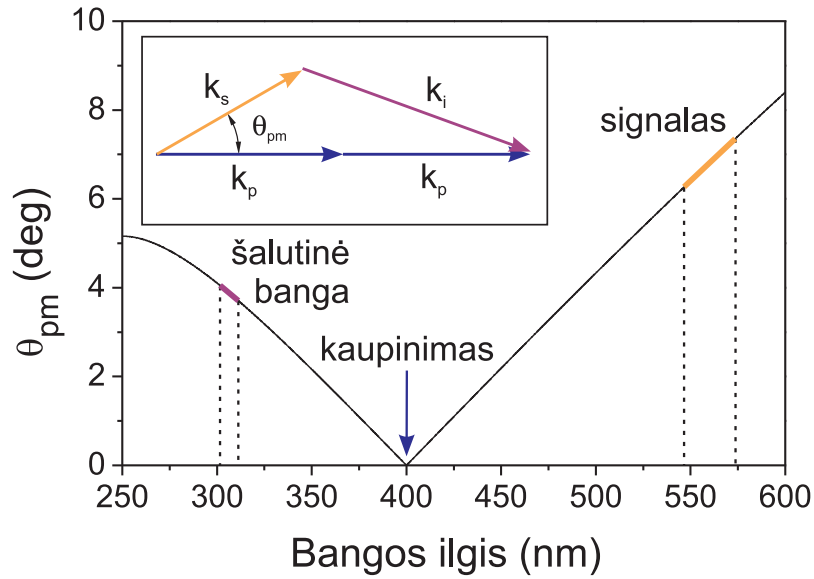
Teorinis modeliavimas parodė, jog keturbangio parametrinio stiprintuvo stiprinimo juostos plotį bei juostos profilio priklausomybę nuo kaupinimo impulsų energijos lemia savaiminės ir kryžminės fazės moduliacijos reiškiniai.

1.3.2 Keturbangis optinis parametrinis čirpuotų impulsų stiprinimas

Eksperimento idėja yra labai panaši į trijų bangų optinio parametrinio čirpuotų impulsų stiprinimo (OPCPA, angl. *optical parametric chirped pulse amplification*) metodologiją [49]: regimosios srities impulsai, kuriuos generuoja nekolinearus optinis parametrinis stiprintuvas NOPA, yra išplečiami laike ir stiprinami skaidrioje izotropinėje terpėje keturių bangų sąveikos metu: $\omega_p + \omega_p = \omega_s + \omega_i$, kur indeksas p, s, i atitinkamai žymi kaupinimo, signalinę ir šalutinę bangas. Verta pabrėžti, jog šiuo atveju šalutinė banga yra didžiausio dažnio ir patenką į UV spektro sritį. Pasiūlyto metodo pagrindinis privalumas – vienu metu atliekamas ir dažnio keitimas į UV sritį ir parametrinis stiprinimas.

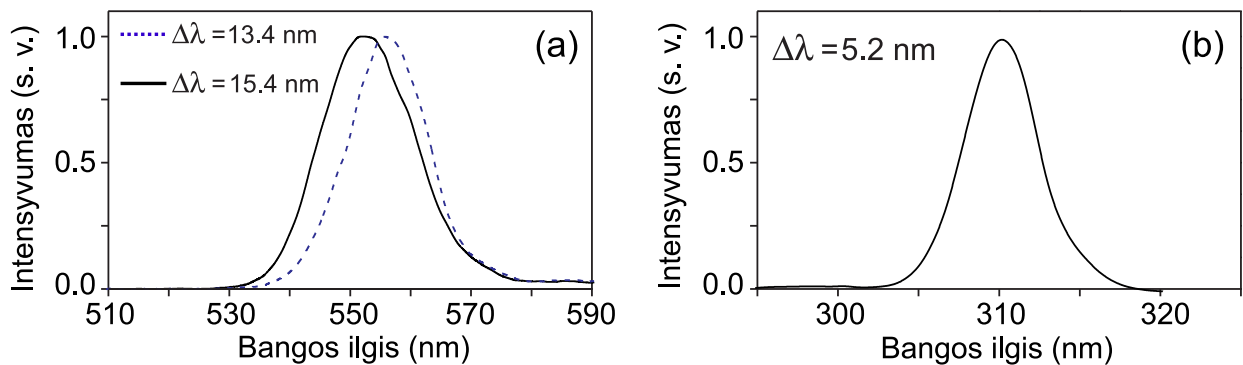
Eksperimento metu buvo naudojama Ti:safyro lazerinė sistema, kuri generavo 130 fs trukmės, 3 mJ energijos ir 800 nm centrinio bangos ilgio impulsus 1 kHz pasikartojimo dažniu. Lazero spinduliuotė buvo padalinta į dvi dalis: pirmoji (0.5 mJ energijos) buvo naudojama kaupinti tribangį parametrinį stiprintuvą NOPA (Topas White, Šviesos konversija), kuris generavo 35 fs, 560 nm bangos ilgio ir 5 μ J energijos impulsus. Pastarieji buvo išplėsti laike nuo 35 fs iki 80 fs ir naudoti kaip signalas. Antroji lazero spinduliuotės dalis, po antrosios harmonikos generacijos, panaudota kaip kaupinimas keturių bangų parametriniame stiprintuve. Kaupinimo ir signalinis impulsai buvo fokusuojami į 1 mm storio lydyto kvarco plokštelę cilindriniais lęšiais, kurių židinio nuotolis: $f_y = +500$ mm; $f_x = \infty$. Plokštelės storis buvo šiek tiek mažesnis nei grupinių greičių nederinimo ilgis ($L_{\text{GGN}} = 1.25$ mm) tarp kaupinimo ir signalinio impulsų.

Fazinio sinchronizmo kreivė lydytam kvarcui pateikta 1.6 pav. Geometriškai signalinis ir kaupinimo pluoštai buvo sukirsti fazinio sinchronizmo kampų $\theta_{\text{pm}} = 6.8^\circ$ horizontalioje plokštumoje. Šioje plokštumoje buvo atliekamas ir cilindrinis fokusavimas, taip išplečiant pluoštų erdvinis spektrus ir padidinant fazinio sinchronizmo juostos plotį. Eksperimento metu maksimali sugeneruotų impulsų energija siekė 10 μ J esant 0.5 mJ kaupinimui (atitinka 2% energijos keitimą iš kaupinimo į šalutinę



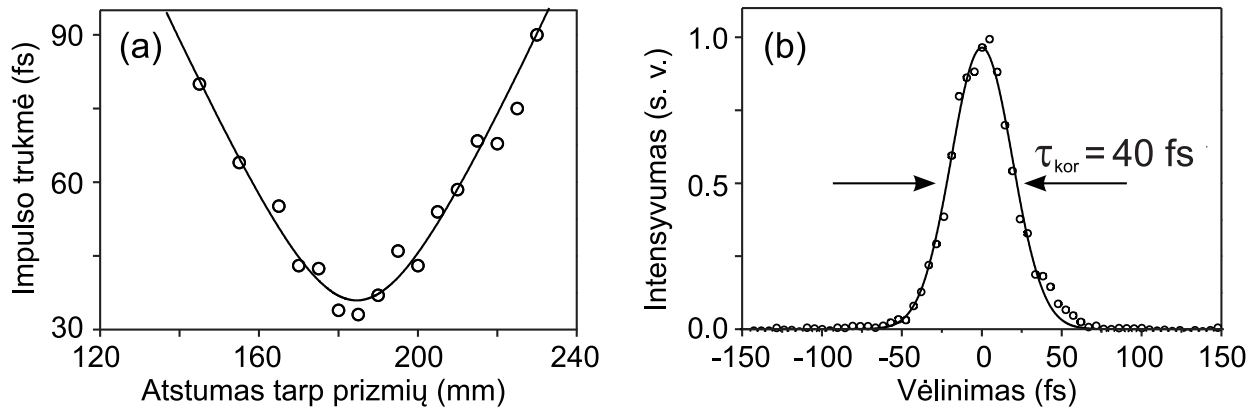
1.6 pav. Keturbangio parametrinio stiprinimo fazinio synchronizmo kreivė lydytam kvarcui kai kaupinimo bangos ilgis $\lambda_p = 400$ nm. Paryškintos kreivės rodo signalinio ir šalutinio impulsų spektrus. Papildomame paveikslėlyje pateikta bangos vektorių diagrama.

bangą).



1.7 pav. (a) išmatuoti signalo (brūkšninė linija) bei sustiprinto signalo (ištisinė linija) spektrai. (b) sugeneruotos šalutinės bangos spektras.

1.7 pav pavaizduoti signalo, sustiprinto signalo bei sugeneruotos šalutinės bangos spektrai. Keturbangio parametrinio stiprinimo metu signalas buvo sustiprintas ~ 2 kartus, o jo spektras išplito nuo 13.4 nm iki 15.4 nm (pusės amplitudės aukštyje). Sugeneruoto UV impulso spektro plotis lygus 5.2 nm, o spektru riboto impulso trukmė – 27 fs. UV impulsams suspausti naudojome kompresorių, susidedantį iš dviejų 70° laužiančiojo kampo lydyto kvarco prizmių. 1.8(a) paveiksle vaizduojama impulso trukmės priklausomybė nuo atstumo tarp kompresoriaus prizmių. Suspausto impulso trečiosios eilės autokoreliacinė funkcija pateikta 1.8(b) pav, o impulso trukmė lygi 33 fs pusės intensyvumo aukštyje (darant prielaidą, kad impulso intensyvumo skirstinys yra Gausinio pavidalo).



1.8 pav. (a) impulso trukmės (pusės intensyvumo aukštyje) priklausomybė nuo atstumo tarp kompresoriaus prizmių. (b) impulso trečiosios eilės autokoreliacinė funkcija ir jos apromsimacija Gauso funkcija (ištisinė kreivė).

2 skyrius

Derinamo bangos ilgio IR impulsų generacija regimojo diapazono dažnio konvertavimo metu

2.1 Motyvacija

Šiuolaikinėje ultrasparčiojoje spektroskopijoje, šviesos ir medžiagos sąveikos tyrimuose [1–3], stiprių laukų fizikoje, aukštųjų harmonikų bei atosekundinių impulsų generacijoje [50] reikalingi kelių optinių ciklų trukmės artimosios bei vidurinėsios IR spektro sričių impulsai. Šiai dienai pasiūlytas ne vienas metodas tokiems impulsams gauti. Ultratrumpieji IR impulsai gali būti generuojami kvadratinio netiesiškumo terpėje išsigimusio parametrinio stiprinimo metu [51]. Šiuo atveju, deja, impulsų centrinis bangos ilgis yra fiksuotas. Derinamo bangos ilgio IR impulsų šaltiniai, kita vertus, yra pademonstruoti naudojant nokolinearią parametrinę sąveiką tinkamos dispersijos netiesiniuose kristaluose [52]. Minėtose schemose signalui gauti dažniausiai naudojama infraraudonoji superkontinuumo (SK) dalis, kurios mažas spektrinis energijos tankis lemia tokius nepageidaujamus reiškinius, kaip sustiprinta parametrinė fluorescencija. Regimosios srities impulsų dažnio keitimas (angl. *down conversion*) pasirodė kaip energetiškai efektyvesnis metodas kelių optinių ciklų trukmės IR impulsams generuoti [53–55].

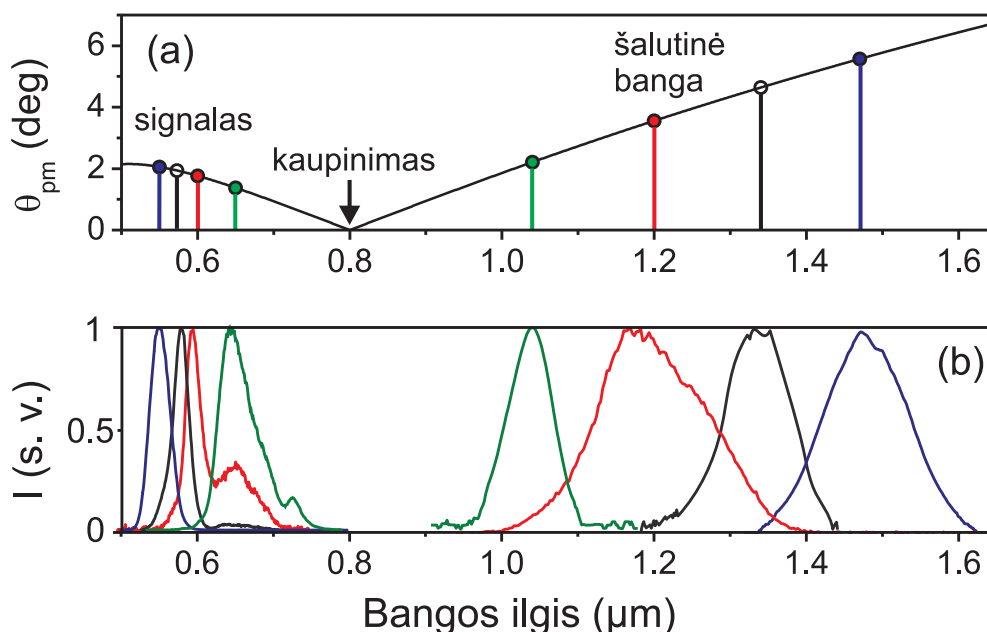
Keturbangė parametrinė sąveika skaidriose izotropinėse terpėse (pvz. dujose) taip pat gali būti taikoma IR impulsams generuoti. Dideliam sąveikos ilgiui užtikrinti naudojami dujomis užpildyti kapiliarai [54], arba generuojamos šviesos gijos [56]. Maža dujų dispersija lemia labai plačią stiprinimo juostą, kurios užtenka vieno optinio ciklo trukmės impulsams generuoti [24]. Kietojo kūno terpės pasižymi daug didesniu netiesiškumu lyginant su dujomis, o jų panaudojimas keturbangiuose parametriniuose

stiprintuvuose, kaip jau minėta 1 skyriuje, sulaukia vis daugiau dėmesio.

Šiame skyriuje pateikti du metodai derinamo bangos ilgio IR impulsams generuoti naudojant komercinę Ti:safyro lazerio ir nekolinearaus optinio parametrinio stiprintuvo–NOPA sistemą. Pirmasis metodas aprašytas 2.2 skyrelyje ir remiasi keturių bangų parametriniu stiprinimu, antrasis – trijų bangų sąveikomis I tipo BBO kristaluose (2.3 skyrelis).

2.2 Infraraudonųjų impulsų generacija keturių bangų sąveikos metu

Šiame skyrelyje aprašytas keturbangis optinis parametrinis IR impulsų stiprinimas lydyto kvarco terpėje. Stiprintuvui kaupinti naudojome 800 nm bangos ilgio, 130 fs trukmės Ti:safyro lazerio impulsus, tuo tarpu derinamo bangos ilgio (550-650 nm), 30 fs trukmės signalui generuoti pasitelktas parametrinis stiprintuvas NOPA. Keturių bangų sąveikos $\omega_p + \omega_p = \omega_s + \omega_i$ metu buvo generuojami 1.0 – 1.5 μm bangos ilgio šalutiniai impulsai. Eksperimento metu kaupinimo ir signalinių impulsus foku-

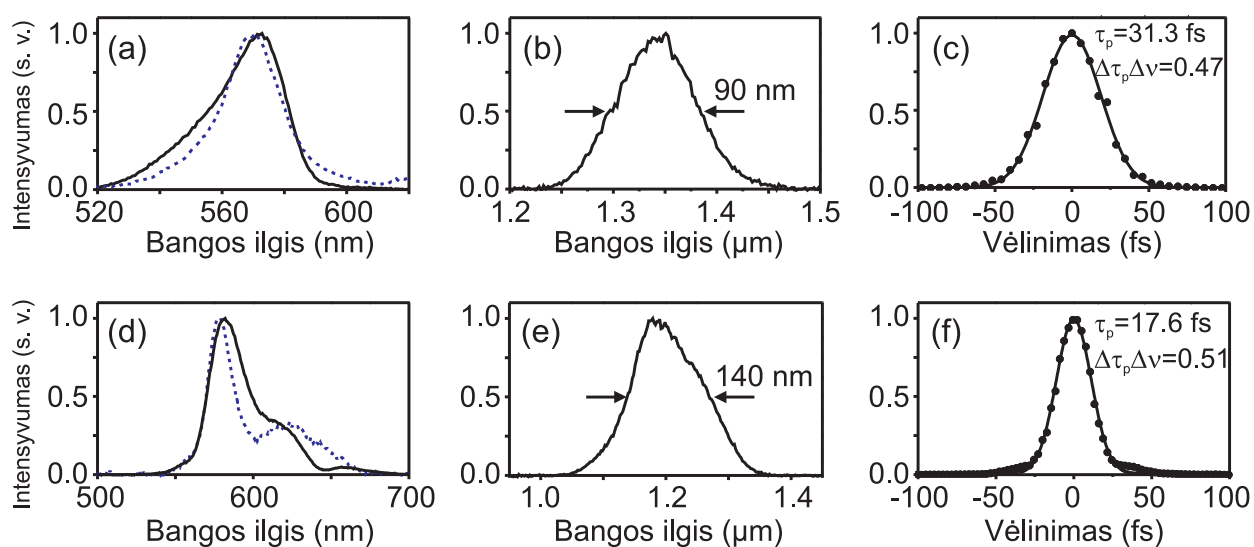


2.1 pav. (a) fazinio sinchronizmo kreivės lydytam kvarcui. (b) sustiprinto signalo ir sugeneruotos šalutinės bangos spektrai.

savome į 1 mm storio lydyto kvarco plokštelę naudodami atitinkamai $f_p = 800$ mm ir $f_s = 500$ mm židinio nuotolio lęšius, o išmatuoti pluoštų skersmenys ant priekinio bandinio paviršiaus siekė 0.8 ir 0.33 mm. Kampas tarp abiejų pluoštų buvo parinktas atsižvelgus į fazinio sinchronizmo kreivę, pavaizduotą 2.1(a) pav. Eksperimento metu

signalu energija buvo fiksuota ir lygi $4.8 \mu\text{J}$, tuo tarpu maksimali kaupinimo energija siekė 1.8 mJ . Šiomis eksperimento sąlygomis pavyko sugeneruoti $20 \mu\text{J}$ energijos derinamo bangos ilgio IR impulsus su 1% energijos keitimu iš kaupinimo į šalutinę bangą. Verta paminėti, jog stiprintuvo efektyvumą galima padidinti naudojant didesnės energijos signalinius impulsus ir realizuojant keturių bangų skirtuminio dažnio generaciją (žiūrėti 1.2 skyrių).

2.1(b) paveiksle pateikti signalo bei šalutinės bangos spektrai. Derinant regimosios srities impulsus 550-650 nm spektro ruože buvo sugeneruoti $1.0 - 1.5 \mu\text{m}$ bangos ilgio šalutiniai impulsai, kurių spektro pločiai siekia 70 – 140 nm (atitinka $<30 \text{ fs}$ trukmės spektriškai ribotus Gauso formos impulsus visame derinimo diapazone). 2.2 paveiksle pateiktos keturbangio parametrinio stiprintuvo impulsų charakteristikos

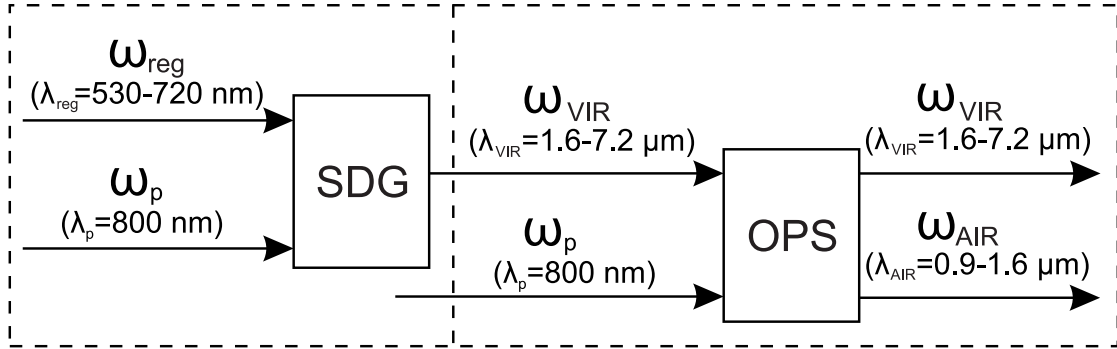


2.2 pav. Išmatuotos impulsų charakteristikos ties $1.34 \mu\text{m}$ ir $1.20 \mu\text{m}$ bangos ilgiais. (a), (d) signalo (taškinė linija) ir sustiprinto signalo (ištisinė linija) spektrai; (b), (e) sugeneruotų IR impulsų spektrai; (c), (f) išmatuotos impulsų antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos. Ištisinė linija rodo aproksimaciją Gauso funkcija.

ties $1.34 \mu\text{m}$ ir $1.20 \mu\text{m}$ bangos ilgiais. Paveiksluose 2.2(a) ir (d) palyginti pradinio signalo ir sustiprinto signalo spektrai. 2.2(c) ir (f) paveiksluose pateikti sugeneruotų IR impulsų spektrai, o 2.2(c) ir (f) paveiksluose – išmatuotos impulsų antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos. Apskaičiuotas kokybės parametras $\Delta\tau_p\Delta\nu \approx 0.5$ rodo, jog sugeneruotų IR impulsų trukmė yra artima spektru ribotai trukmei. Trumpiausia impulsą (17.6 fs trukmės) pavyko gauti ties $1.2 \mu\text{m}$ bangos ilgiu.

2.3 Infraraudonųjų impulsų generacija trijų bangų sąveikos metu

2.3.1 Pagrindinė idėja



2.3 pav. Principinė regimosios srities impulsų dažnio keitimo schema.

Pagrindinė siūlomo metodo idėja schematiškai pavaizduota 2.3 pav. Pirmajame netiesiniame kristale generuojamas skirtuminis dažnis tarp regimosios srities impulsų (dažnis ω_{reg}) ir Ti:safyro lazerio pirmosios harmonikos (centrinis bangos ilgis 800 nm, dažnis ω_p). Procesu $\omega_{\text{VIR}} = \omega_{\text{reg}} - \omega_p$ metu generuojami vidurinės IR spektro srities impulsai (formulėse žymimi kaip VIR). Antrajame kristale vidurinės IR srities impulsai yra parametriškai stiprinami, o sąveikos $\omega_p = \omega_{\text{VIR}} + \omega_{\text{AIR}}$ metu taip pat yra generuojami šalutinės bangos impulsai artimojoje IR srityje (formulėse pažymėti kaip AIR). Derinant regimosios srities impulsus $\lambda_{\text{reg}}=530-720$ nm spektro ruože, galima generuoti/stiprinti IR impulsus $\lambda_{\text{VIR}}=1.6-7.2$ μm ir $\lambda_{\text{AIR}}=0.9-1.6$ μm spektro srityse. Realus derinimo diapazonas priklauso nuo naudojamo kristalo sugerties (pvz. naudojant BBO kristalą maksimalus bangos ilgis siekia 3 μm).

Abu parametriniai procesai (SDG ir OPS) gali būti realizuoti viename kristale, kaip pademonstruota 2.3.3 skyrelyje, arba naudojant dviejų/trijų kristalų schemą (2.3.2 ir 2.3.4 skyreliai). Siūlomas metodas gali būti pritaikytas vidurinės IR srities (iki 6 μm) impulsams generuoti naudojant ličio jodato (LiIO_3) arba ličio neobato kristalus (žiūrėti 2.3.5 skyrelį).

2.3.2 Kolinearus parametrinis stiprinimas I tipo BBO kristaluose

Skaitmeninis modeliavimas

Siekiant nustatyti optimalias eksperimento sąlygas buvo atliktas skaitmeninis modeliavimas. Sprendėme trijų bangų parametrinės sąveikos lygtis naudodami plokščiųjų

bangų artinį, įskaitydami grupinių greičių nederinimo ir grupinių greičių dispersijos bei trečiosios eilės dispersijos įtaką. Pradines modeliavimo sąlygas parinkome atsižvelgę į eksperimentą. SDG atveju naudotos kaupinimo impulsų trukmės: $t_{\text{reg}} = 20$ fs ir $t_p = 130$ fs. Modeliavimas atliktas su 0.1 mm, 0.2 mm ir 0.4 mm storio BBO kristalais. Optimali SDG generacija gauta 0.2 mm storio kristale (atsižvelgta į energijos keitimo efektyvumą bei generuojamų impulso trukmę).

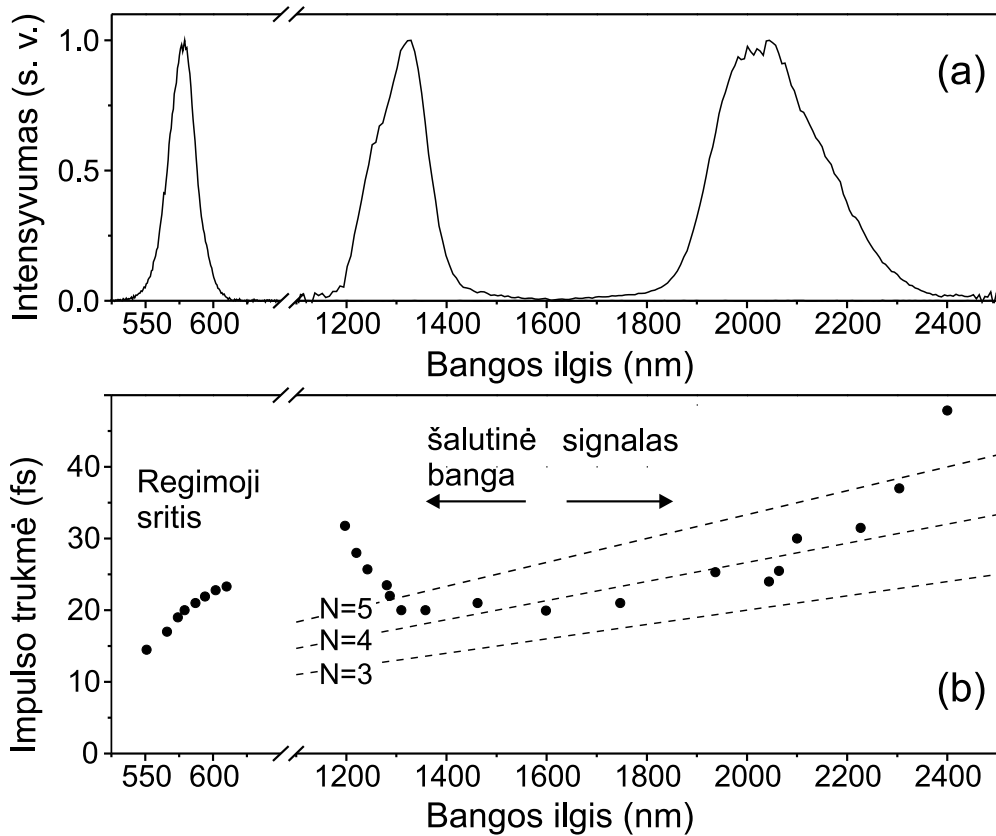
OPS pakopos modeliavimas atliktas su 0.5 mm ir 1 mm storio BBO kristalais. Signalinio impulso intensyvumas buvo fiksuotas ir lygus 1 GW/cm^2 , tuo tarpu kaupinimo intensyvumą keitėme $100 \text{ GW/cm}^2 - 350 \text{ GW/cm}^2$ ribose. Abiem atvejais pasiektas 15 % energijos keitimo efektyvumas iš kaupinimo į IR bangas. Modeliavimas parodė, kad sustiprintų impulsų trukmė padidėjo nežymiai (<30% visame derinimo diapazone).

Eksperimento rezultatai

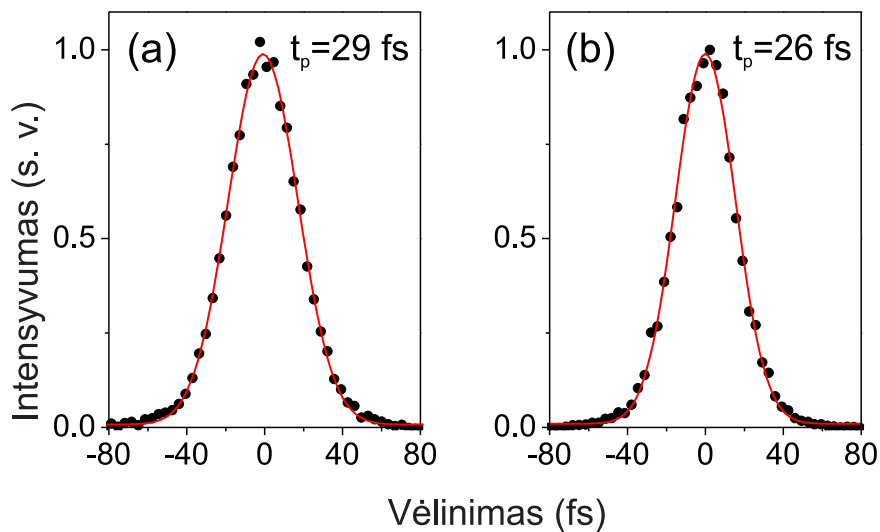
Modeliavimo rezultatams patvirtinti atlikome eksperimentą. Naudojome jau minėtą Ti:safyro – parametrinio stiprintuvo NOPA sistemą. Skirtuminio dažnio generacijai pasirinkome 0.2 mm storio I tipo BBO kristalą. Keisdami parametrinio stiprintuvo NOPA dažnį sugeneravome 1.6–2.4 μm bangos ilgio, 200–400 nJ energijos skirtuminio dažnio impulsus. Pastarieji vėliau buvo sustiprinti dviejų pakopų kolineariame parametriniame stiprintuve, kuriam naudojome 0.5 mm ir 1 mm storio I tipo BBO kristalus.

2.4 ir 2.5 paveiksluose apibendrinti pagrindiniai eksperimento rezultatai. 2.4(a) paveiksle parodyti regimosios srities (centrinis bangos ilgis 575 nm) bei sugeneruotų artimosios IR (1.31 μm) ir vidurinės IR (2.06 μm) spektro sričių impulsų spektrai. 2.4(b) paveiksle pateikti impulsų laikiniai parametrai visame derinimo diapazone. Brūkšninės linijos rodo 3, 4 ir 5 optinių ciklų impulsų trukmes.

2.5(a) paveiksle pateikta suspausto signalinio impulso autokoreliacinė funkcija. Laikydami, jog impulso intensyvumo skirstinys yra Gausinio pavidalo, impulso trukmė lygi 29 fs. Išmatuota šalutinio impulso autokoreliacinė funkcija pateikta 2.5(b) pav, o įvertinta impulso trukmė siekia 26 fs. Maksimali kaupinimo energija eksperimento metu buvo didinama iki 1.2 mJ, o bendra sugeneruotų IR impulsų energija siekė 120 μJ (t.y. gautas 10% energijos keitimo efektyvumas).



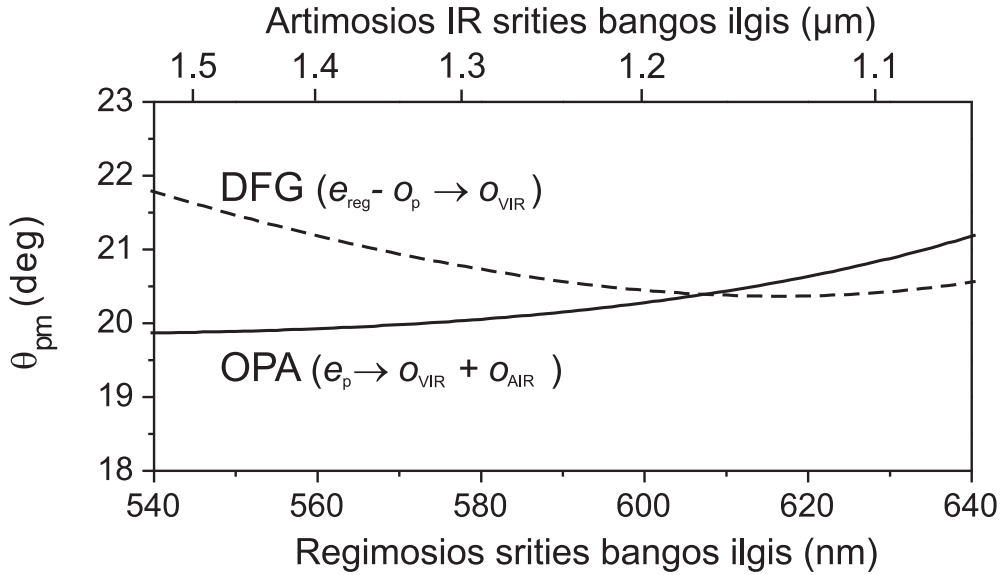
2.4 pav. (a) regimosios, artimosios bei vidurinės IR sričių impulsų (centriniai bangos ilgiai atitinkamai 575 nm, 1.31 μm ir 2.06 μm) spektrai. (b) impulsų trukmės priklausomybė nuo bangos ilgio. Brūkšninės linijos rodo 3, 4 ir 5 optinių ciklų impulsų trukmes.



2.5 pav. Išmatuotos impulsų autokoreliacinės funkcijos: (a) signalinis impulsas (centrinis bangos ilgis 2.06 μm), (b) šalutinis impulsas (centrinis bangos ilgis 1.31 μm). Pilni apskritimai rodo eksperimentinius duomenis, ištisinė kreivė – Gauso funkcijos aproksimacija.

2.3.3 Pakopinis parametrinis tribangis stiprinimas BBO kristale

Pasiūlyta idėja remiasi SDG ir OPS procesais, kurie realizuojami vienu metu tame pačiame I tipo BBO kristale. Fazinio sinchronizmo kreivės pateiktos 2.6 pav, kur o ir



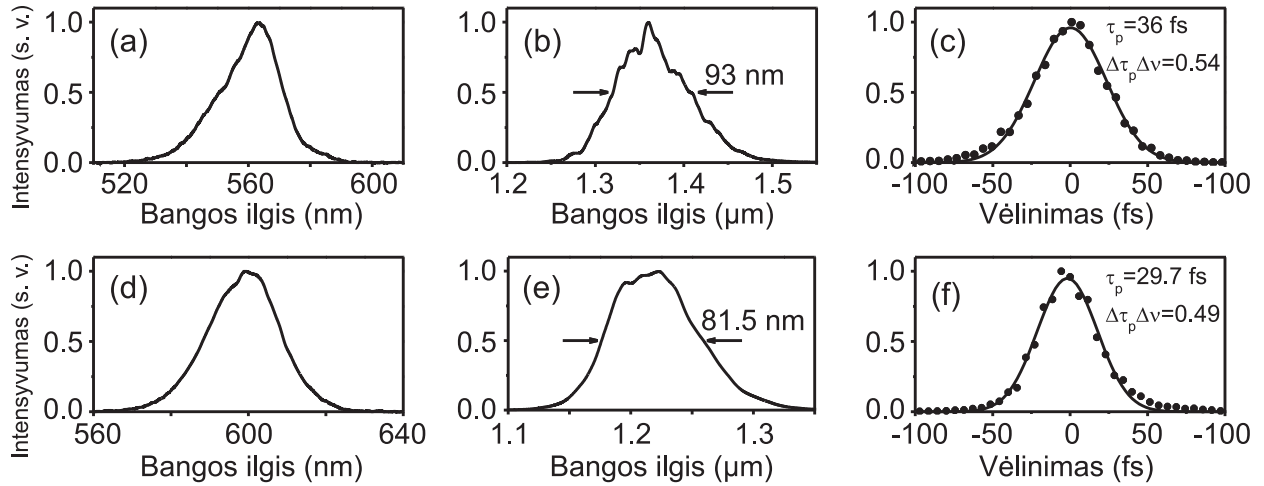
2.6 pav. Fazinio synchronizmo kreivės skirtuminio dažnio (brūkšninė linija) ir parametrinio stiprinimo (ištiesinė linija) procesams I tipo BBO kristale.

e žymi naudojamas bangų poliarizacijas. Bendras proceso efektyvumas priklauso nuo dviejų sąlygų: (i) abu parametriniai procesai turi būti to paties synchronizmo tipo (mūsų atveju naudotas I tipo kristalas); (ii) tik vienam iš SDG/OPS procesų gali būti tenkinama fazinio synchronizmo sąlyga (išskyrus 607 nm bangos ilgį, kur SDG ir OPS kreivės susikerta). Eksperimento metu nustatyta, jog sąveika yra efektyviausia, kai skirtuminis dažnis generuojamas su fazės nederinimu, o tuo tarpu OPS procesui synchronizmo sąlyga yra pilnai tenkinama.

Eksperimente naudojome 2.2 skyrelyje minėtą Ti:safyro – parametrinio stiprintuvo NOPA sistemą. Lazerio ir parametrinio stiprintuvo pluoštai buvo kolineariai fokusuojami $f = +800$ mm židinio nuotolio lęšiu į 1 mm storio I tipo BBO kristalą. Kristalas stovėjo 20 cm atstumu nuo lęšio židinio plokštumos, o kaupinimo ir signalo pluoštų diametrai ant kristalo paviršiaus siekė atitinkamai 0.77 mm ir 0.45 mm. Efektyviausią sąveiką gavome, kai $\sim 5\%$ kaupinimo energijos buvo naudojama skirtuminio dažnio generacijai, o $\sim 95\%$ – parametriniam stiprinimui.

2.7 paveiksle pateiktos pakopinio tribangio stiprintuvo impulsų charakteristikos ties 1.36 μm ir 1.22 μm bangos ilgiais. Paveiksluose 2.7(a) ir (d) palyginti regimosios srities impulsų spektrai. 2.2(c) ir (f) pav pateikti sugeneruotų artimosios IR srities impulsų spektrai, o 2.2(c) ir (f) pav – išmatuotos impulsų antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos. Apskaičiuotas kokybės parametras $\Delta\tau_p\Delta\nu \approx 0.5$ rodo, jog sugeneruotų artimosios IR srities impulsų trukmė yra artima spektru ribotai trukmei.

Eksperimento metu maksimalios regimosios srities ir kaupinimo impulsų energijos



2.7 pav. Išmatuotos impulsų charakteristikos ties 1.36 μm ir 1.22 μm bangos ilgiais. (a), (d) signalinių impulsų spektrai; (b), (e) sugeneruotų IR impulsų spektrai; (c), (f) išmatuotos impulsų antrosios eilės autokoreliacinės funkcijos. Ištininė linija rodo aproksimaciją Gauso funkcija.

buvo lygios atitinkamai $E_{\text{reg}} = 7 \mu\text{J}$ ir $E_p = 0.4 \text{ mJ}$, o sugeneruotų IR impulsų energijos siekė: $E_{\text{VIR}} = 11.5 \mu\text{J}$ (centrinis bangos ilgis 2.25 μm) ir $E_{\text{AIR}} = 26 \mu\text{J}$ (centrinis bangos ilgis 1.24 μm). Bendras energijos keitimo efektyvumas iš kaupinimo į abi IR bangas šiuo atveju lygus 10%.

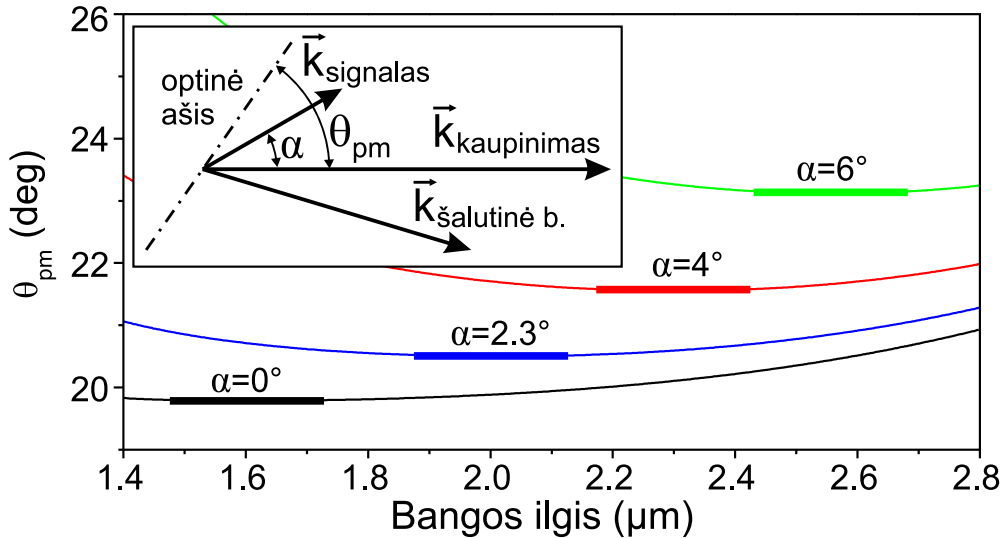
2.3.4 Nekolinarus optinis parametrinis stiprinimas I tipo BBO kristale

Šiai dienai nekolinarus parametrinis stiprinimas naudojant 800 nm bangos ilgio kaupinimo spinduliuotę pademonstruotas kalio titanilo fosfato (KTP) [57], ličio jodato [22] ir periodiškai poliutuame ličio tantalato (PPSLT) [58] kristaluose. BBO kristalas, dėl savo dispersinių savybių, laikytas kaip netinkama terpė ultratrumpiesiems IR impulsams stiprinti naudojant 800 nm kaupinimą.

Daugelyje eksperimentų reikalingi stabilios gaubtinės fazės kelių optinių ciklų impulsai [59]. Egzistuoja keletas fazės stabilizavimo metodų, vienas paprasčiausių – iš vieno šaltinio kilusių impulsų skirtuminio dažnio generacija. Šiai dienai pademonstruota nemažai eksperimento schemų, kurios leidžia generuoti $\sim 2 \mu\text{m}$ bangos ilgio, kelių optinių ciklų impulsus su stabilia gaubtinės faze [60–65].

Šiame skyriuje nagrinėjama kelių optinių ciklų, 2 μm centrinio bangos ilgio impulsų su stabilia gaubtinės faze generacija bei stiprinimas. Eksperimento schema susideda iš Ti:safyro lazerio bei parametrinio stiprintuvo NOPA. Skirtuminis dažnis buvo generuotas tarp regimosios srities impulsų (centrinis bangos ilgis 575 nm) ir la-

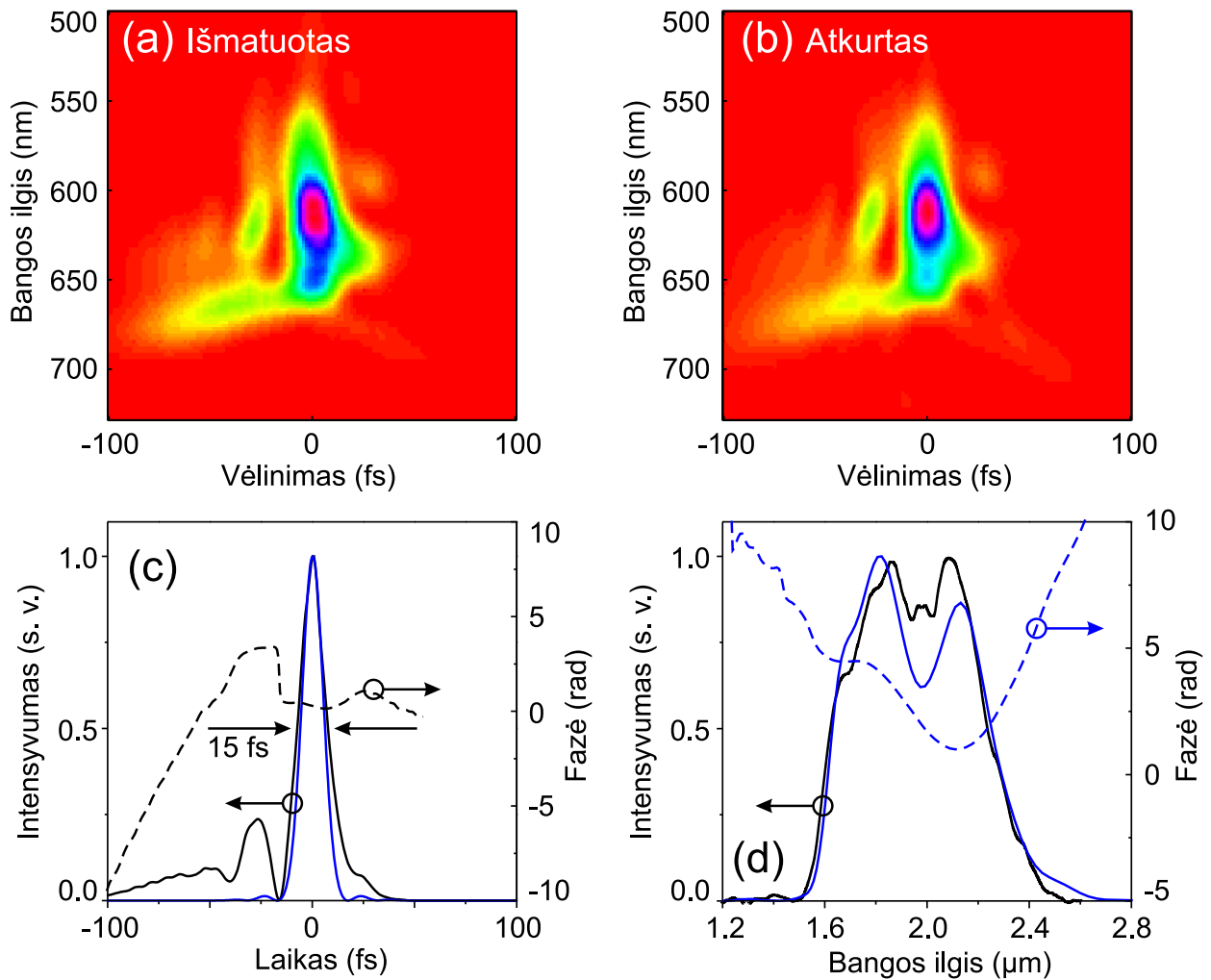
zerio pirmosios harmonikos (800 nm) 0.2 mm storio I tipo BBO kristale. Sugeneruoti 300 nJ energijos ir 2 μm bangos ilgio impulsai po to buvo stiprinami 2 mm storio I tipo BBO kristale nekolinearios sąveikos metu. Nors BBO kristalas dažniausiai laikomas netinkamu ultratrumpų impulsų stiprinimui IR spektro ruože [66], šiame skyriuje mes parodome, jog naudojant 800 nm bangos ilgio kaupinimo spinduliuotę galimas plačiauostis 1.6 – 2.8 μm signalo stiprinimas.



2.8 pav. Fazinio sinchronizmo kreivės įvairioms nekolinearaus kampo α vertėms I tipo BBO kristale kaupinant 800 nm spinduliuote. Papildomame paveiksle parodyta nekolinearios sąveikos geometrija.

2.8 paveiksle pateiktos fazinio sinchronizmo kreivės įvairioms nekolinearaus kampo α vertėms I tipo BBO kristale, kai kaupinimui naudojama 800 nm spinduliuotė. Fazinio sinchronizmo kreivės nekolinearaus sinchronizmo metu ($\alpha \neq 0$) yra labai panašios į kolinearų atvejį ($\alpha = 0$) išsigimusiam režime, skiriasi tik plokščiosios dalies padėtis (paryškintos kreivės), kur galimas plačiauostis stiprinimas. Eksperimento metu signalo (2 μm) ir kaupinimo (800 nm) pluoštai buvo sukirsti $\alpha_{\text{ext}} = 3.8^\circ$ kampu (vidinis kampas kristale $\alpha \approx 2.3^\circ$), tam, kad būtų užtikrinta plati stiprinimo juosta 2 μm centrinio bangos ilgio impulsams. Nagrinėjome dvi eksperimento konfigūracijas. Pirmuoju atveju fazinio sinchronizmo kampas buvo lygus $\theta_{\text{pm}} = 20.5^\circ$, o fazinio sinchronizmo sąlyga tenkinama 2 μm bangos ilgio spinduliuotei. Išmatuota sustiprintų impulsų energija siekė 50 μJ . Impulsams charakterizuoti naudojome trečiosios harmonikos FROG metodologiją. Netiesinės terpės vaidmenį atliko 30 μm storio teflono plėvelė, o išmatuotų impulsų trukmė siekė 20 fs (pusės intensyvumo aukštyje).

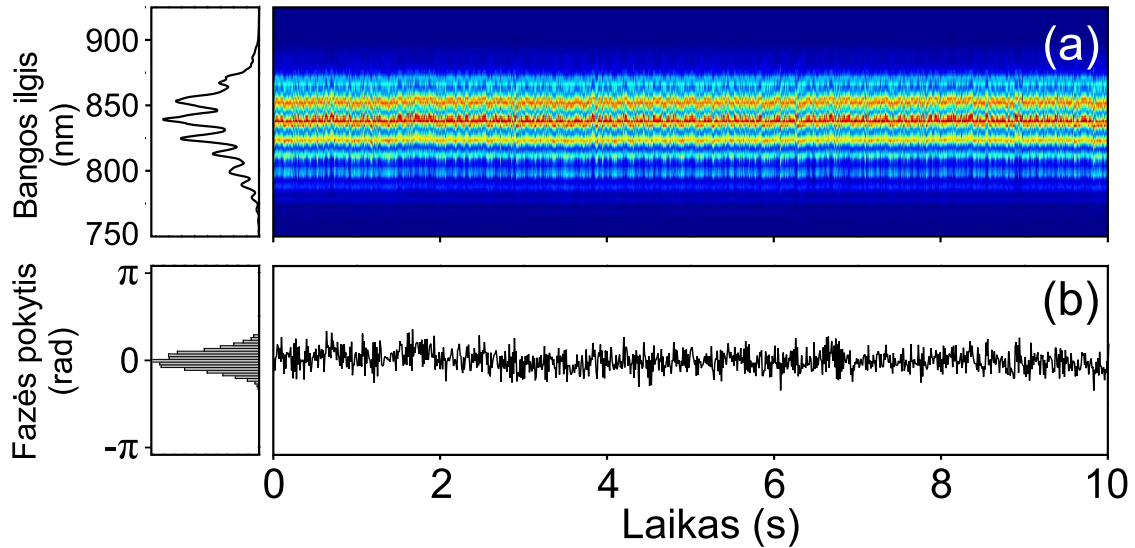
Antruoju atveju sinchronizmo kampas buvo nežymiai pakeistas ($\theta_{\text{pm}} = 20.9^\circ$). Šiuo atveju fazinio sinchronizmo sąlyga tenkinama ne centriniam (2 μm), bet pe-



2.9 pav. Trečiosios harmonikos FROG matavimo rezultatai. (a) išmatuotas ir (b) atkurtas FROG vaizdai. (c) atkurtas impulso intensyvumo skirstinys (juoda linija), jo fazė (brūkšninė linija) bei spektru riboto impulso forma (mėlyna linija). (d) išmatuotas impulso spektras (juoda kreivė), atkurtas spektras (mėlyna kreivė) bei jo fazė (brūkšninė linija).

riferiniams impulso bangos ilgiams. Tokiu būdu išplečiamas stiprintuvo stiprinimo juostos plotis. 2.9(a) ir (b) pav pateikti atitinkamai išmatuotas bei atkurtas FROG vaizdai, o 2.9(c) ir (d) pav – sustiprintas impulsas bei jo spektras. FROG atstatymo algoritmas atliktas naudojant 256×256 dydžio matricą, o atstatymo paklaida buvo lygi 0.60%. Išmatuota impulso trukmė pusės intensyvumo aukštyje siekia 15 fs (2.3 optiniai ciklai), o impulsų energija – 15 μ J.

Impulsų gaubtinės fazės pokyčiams registruoti naudojome f-2f netiesinį interferometrą. 2.10(a) paveiksle pateiktas vaizdas sudarytas iš 1000 pavienių interferogramų. Apskaičiuotas fazės kitimas parodytas 2.10(b) pav, o jo fluktuacijų vidutinis kvadratinis nuokrypis lygus 0.33 rad.

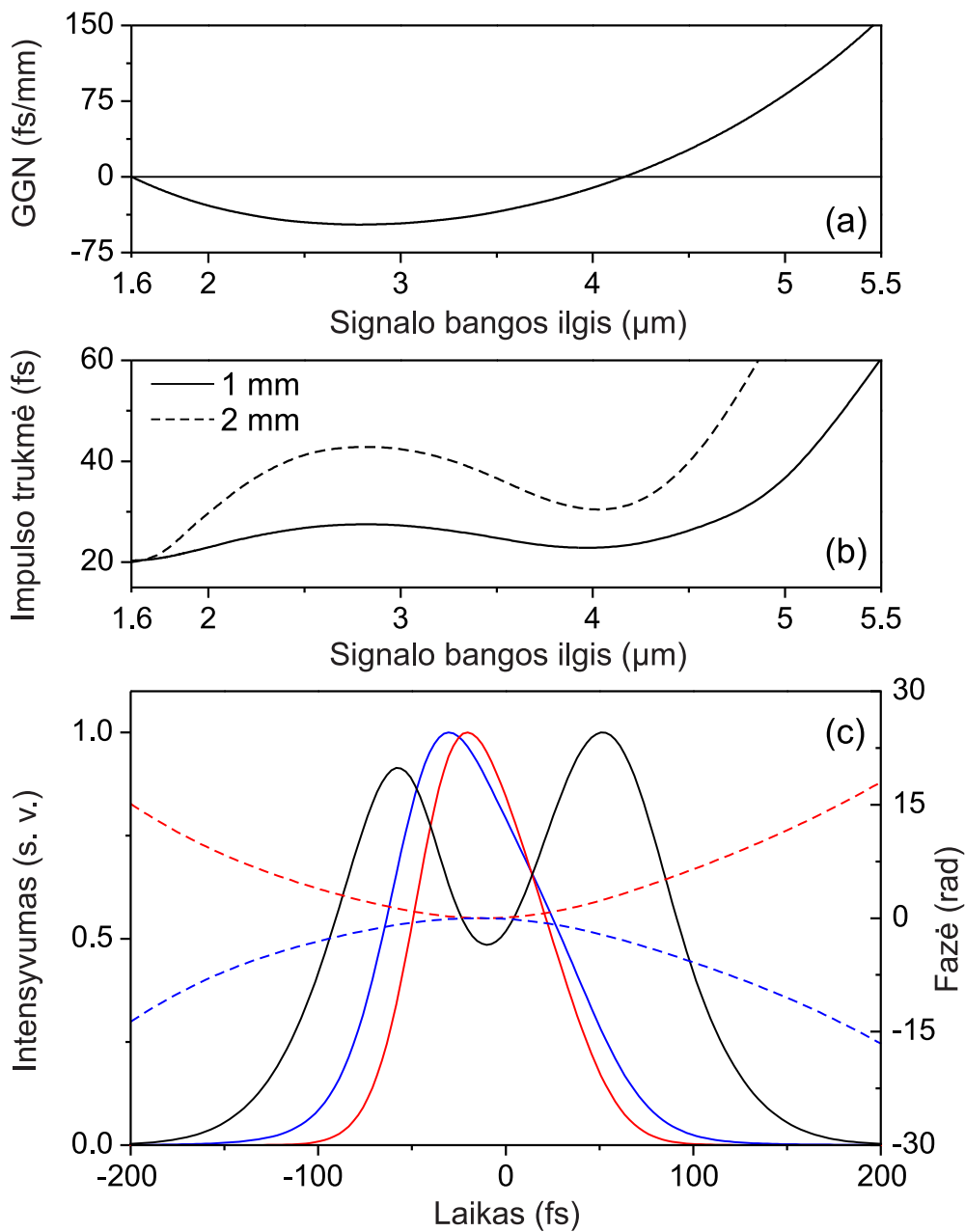


2.10 pav. (a) f - $2f$ interferograma ir jos vidurkis. (b) gaubtinės fazės kitimas ir jo statistika.

2.3.5 Plačiajuostis parametrinis stiprinimas 3–5.5 μm spektro ruože

BBO kristalo sugertis riboja mūsų pasiūlytų parametrinių stiprintuvų derinimo diapazoną iki 2.8 μm bangos ilgio, nors parametrinio stiprintuvo NOPA derinimo sritis leidžia generuoti <7.2 μm bangos ilgio skirtuminio dažnio impulsus. Šiame skyriuje pasiūlyta teorinė galimybė išplėsti derinimo diapazoną iki 5.5 μm naudojant LiIO_3 ir LiNbO_3 kristalus. Modeliavime naudojome tas pačias pradines sąlygas kaip ir 2.3.2 skyriuje: spektru riboti 20 fs trukmės vidurinėsios IR srities impulsai yra parametriškai stiprinami I tipo sąveikos metu LiIO_3 (arba LiNbO_3) kristale naudojant 130 fs trukmės, 800 nm bangos ilgio kaupinimo impulsus. 2.11 paveiksle apibendrinti modeliavimo rezultatai LiIO_3 kristale. 2.11(a) paveiksle pateikta GGN tarp signalinio ir skirtuminio impulsų koeficiento vertė, kai signalo bangos ilgis kinta 1.6 – 5.5 μm spektro ruože. Įdomu pastebėti, jog šiuo atveju yra du taškai (1.6 μm ir 4.2 μm), kuriuose signalinio ir šalutinio impulsų grupiniai greičiai yra lygūs, t.y. galimas plačiajuostis stiprinimas. 2.11(b) paveiksle pateikta spektru ribota impulso trukmė visame derinimo diapazone, kai stiprinimui naudojami 1 mm ir 2 mm storio LiIO_3 kristalai, o 2.11(c) pav matome sustiprinto impulso intensyvumo profilį (stiprinimui naudotas 2 mm storio LiIO_3 kristalas, impulso centrinis bangos ilgis lygus 4.2 μm).

Panašūs modeliavimo rezultatai gauti ir pasirinkus LiNbO_3 kristalą, tik šiuo atveju plati stiprinimo juosta gaunama ties 3.5 μm bangos ilgiu.



2.11 pav. Optinio parametrinio stiprinimo LiIO_3 kristale modeliavimo rezultatai. (a) GGN tarp signalinio ir šalutinio impulsų priklausomybė nuo bangos ilgio. (b) apskaičiuota impulso trukmės (pusės intensyvumo aukštyje) priklausomybė nuo bangos ilgio 1 mm (ištinė linija) ir 2 mm (brūkšninė linija) storio kristaluose. (c) nuskurdinto kaupinimo (juoda linija), sustiprinto signalo ties 4 μm (mėlyna linija) ir šalutinės bangos (ties 1 μm) (raudona linija) impulso intensyvumo skirstiniai. Brūkšninė linija rodo atitinkamai signalo ir šalutinės bangos fazes.

3 skyrius

Superkontinuumo generacija naudojant kelių optinių ciklų trukmės, stabilios gaubtinės fazės impulsus

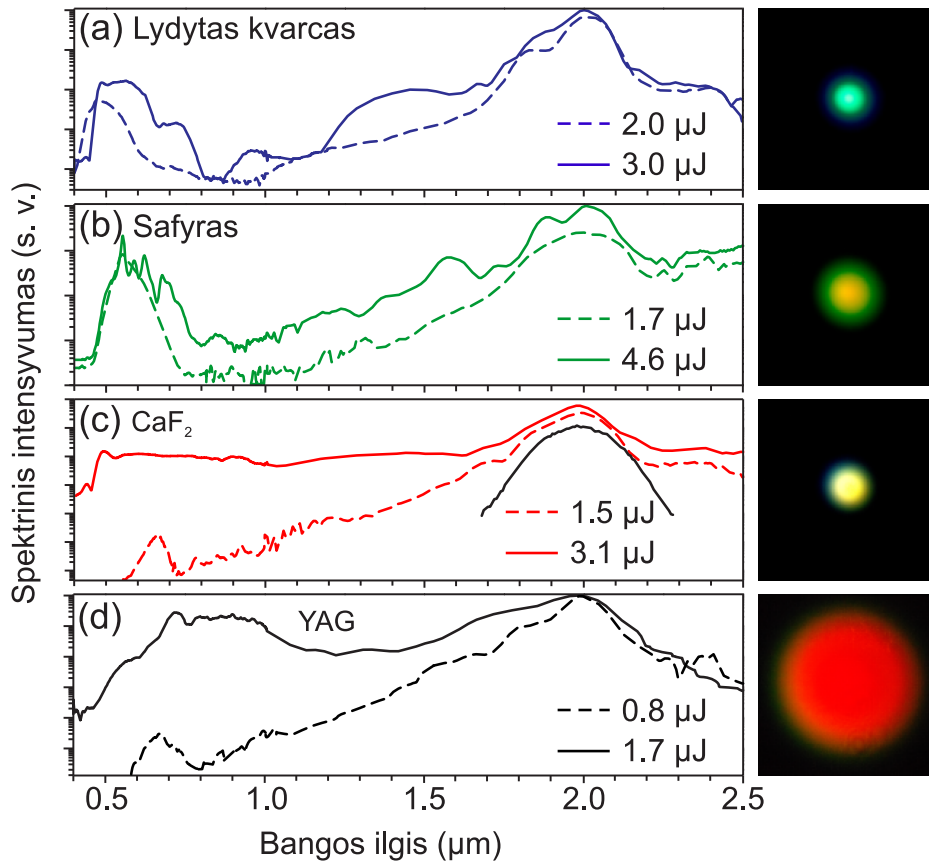
3.1 Motyvacija

Superkontinuumo generacijos reiškinys plačiai naudojamas generuojant koherentinę spinduliuotę UV, regimojoje bei IR spektro srityse [67]. SK atsiradimą lemia daugelis netiesinės optikos reiškinų, kurie, esant dideliame spinduliuotės intensyvumui, pasireiškia beveik vienu metu. SK spektro plitimą galima paaiškinti kaip impulso fazės moduliavimosi, kryžminės fazės moduliacijos bei keturbangio maišymosi rezultata, iš kitos pusės, jį lemia dinaminiai bangų paketo efektai: impulso fronto statėjimas bei impulso skilimas, solitonų susidarymas. Dažniausiai SK generuojamas naudojant UV, regimosios bei artimosios IR srities impulsus normalios GGD terpėse [68–70]. Šiuo metu ypatingai daug dėmesio skiriama artimosios bei vidurinės IR spektro sričių ultratrumpųjų impulsų generacijai bei stiprinimui [52]. Tokios spinduliuotės dažnis daugelyje medžiagų patenka į anomalios GGD sritį, o impulso sklaidimo dinamika ženkliai skiriasi nuo tos, kuri registruojama normalios GGD terpėse. Stebima savaiminė impulsų spūda [71–73], šviesos gijos pailgėjimas [74] bei itin plataus spektro generacija [75, 76].

3.2 Superkontinuumo generacija anomalioje grupinių greičių dispersijos srityje

Šiame skyriuje nagrinėjama superkontinuumo generacija anomalios GGD srityje. Eksperimento metu naudojome 2.3.4 skyrelyje aprašytą parametrinį šaltinį, kuris

generuoja 20 fs trukmės, 2 μm centrinio bangos ilgio bei stabilios gaubtinės fazės impulsus. Tyrimams pasirinkome keturias plačios draustinės juostos terpes, kurios yra dažnai naudojamos generuojant SK regimojoje bei artimojoje IR spektro srityse, t.y. safyras (6 mm storio), lydytas kvarcas (5 mm), CaF_2 (6 mm), ir IAG (Itrio aliuminio granatas) (6 mm). Į netiesinę terpę impulsus fokusavome $f = +100$ mm židinio

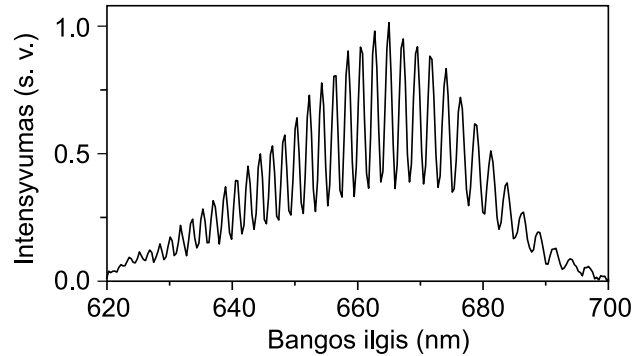


3.1 pav. Superkontinuumo spektrai generuoti (a) lydytame kvarce, (b) safyre, (c) CaF_2 , (d) IAG. Brūkšninė linija rodo SK spektrus esant mažai kaupinimo energijai, ištisinė linija – kai pasiekama SK generacijos sotis. Ištisinė juoda linija (c) dalyje rodo žadinančiojo impulso spektrą. Dešinėje pusėje pateiktas kontinuumo regimosios srities tolimas laukas.

nuotolio lęšiu, o SK spektrą registruojame tarpusavyje sukalibruotais šviesolaidiniais spektrometrais: AvaSpec-2048 ir AvaSpec-NIR256-2.5 (Avantes), kurių detekcijos zonos atitinkamai lygios 400 – 1100 nm ir 1 – 2.5 μm . 3.1 pav. pateikti SK spektrai esant mažai žadinančių impulsų energijai (spekto išplitimas nėra žymus) ir didelei energijai (pasiekama SK generacijos sotis). SK spektrai pasižymi skirtinga forma, kuri priklauso nuo GGD nulinio padėties žadinančiojo impulso atžvilgiu. Lydytame kvarce sugeneruoto SK spektrinis intensyvumas [3.1(a) pav] turi minimumą 1 μm bangos ilgio srityje. Panaši SK forma buvo gauta ir safyro bandinyje [3.1(b) pav], kuris pasižymi labai panašiomis dispersijos savybėmis. CaF_2 terpė, kita vertus, pasižymi maža dispersija, o GGD nulinio taškas yra arti žadinančiojo impulso centrinio

bangos ilgio, dėl to SK spektras yra platus (apima 450 nm – > 2.5 μm spektrinę sritį) ir plokščias [3.1(c) pav]. Mažiausia kaupinimo impulsų energija buvo reikalinga generuojant SK IAG terpėje [3.1(d) pav], dėl didelio medžiagos netiesiškumo.

3.3 Trečiosios harmonikos generacija

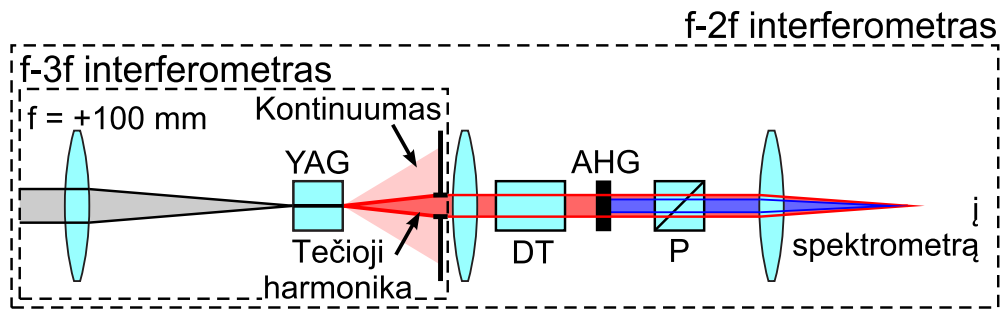


3.2 pav. Trečiosios harmonikos spektras.

Esant mažoms žadinančiojo impulso energijoms visose medžiagose buvo stebėta trečiosios harmonikos generacija ties 660 nm bangos ilgiu (geriausiai matosi 3.1(c) ir (d) pav). 3.2 paveiksle pavaizduotas IAG terpėje sugeneruotas TH spektras, turintis didelio dažnio moduliaciją. Stebėtai spektro moduliacijai paaiškinti rėmėmės analogiškais teoriniais bei eksperimentiniais darbais, kuriuose buvo generuojama antroji harmonika su dideliu grupinių ir fazinių greičių nederinimu [77, 78]. Mūsų atveju TH susideda iš dviejų impulsų, kurių pirmasis (dar vadinamas *laisvoji* banga) pabėga iš po kaupinimo impulso dėl grupinių greičių nederinimo. Antrasis impulsas – *priverstinė* banga, juda tuo pačiu grupiniu greičiu kaip ir kaupinimas. Taigi, TH yra sudaryta iš dviejų impulsų atskirtų laike dydžiu $\tau = |\nu_{lp}|z$, kur $\nu_{lp} = 1/u_l - 1/u_p$ yra grupinių greičių nederinimas tarp *laisvojo* ir *priverstinio* impulsų, o z – terpės ilgis. Spektre (3.2 pav) mes matome šių impulsų tarpusavio interferenciją.

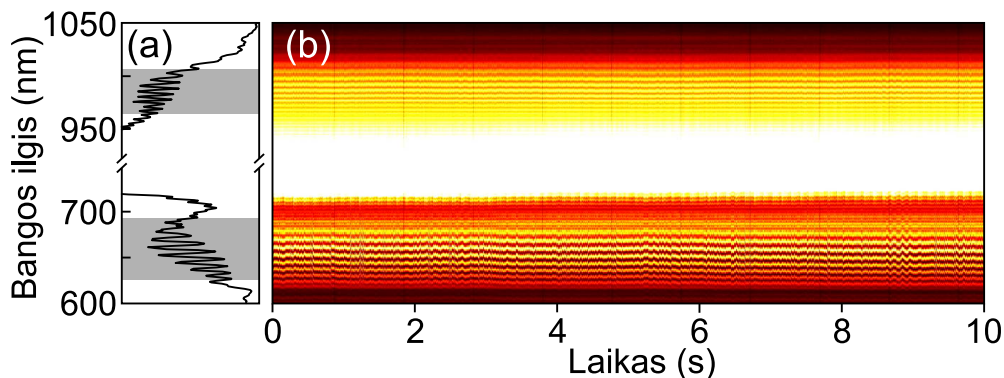
3.4 Vienalaikė trečiosios harmonikos ir superkontinuumo generacija, netiesinis f-3f interferometras

Vienalaikė trečiosios harmonikos ir superkontinuumo generacija leido pademonstruoti netiesinį f-3f interferometrą, kurį sudaro tik vienas IAG kristalas. Pasiūlytą schemą taip pat palyginome su įprastine f-2f konfigūracija. Eksperimento schema



3.3 pav. f-2f bei f-3f netiesiniai interferometriai. DT – dispersinė terpė, AHG – antrosios harmonikos generatorius, P – poliarizatorius.

pateikta 3.3 pav. Sugeneruota TH bei superkontinuumo ašinė dalis buvo nukreipta į šviesolaidinį spektrometrą, kuris registravo f-3f vienašūves interferogramas. f-2f interferometras turi keletą papildomų elementų: t.y. dispersinė terpė (DT, 25 mm ilgio IAG plokštelė), antrosios harmonikos generatorius (AHG) ir poliarizatorius (P). 3.4 paveiksle pateikta 1000 vieno šūvio interferogramų (f-2f ir f-3f sritys pažymėtos pilka spalva). Apskaičiuotas f-2f fliktuacijų vidutinis kvadratinis nuokrypis lygus 300 mrad.



3.4 pav. Impulso gaubtinės fazės fliktuacijų matavimas: (a) suvidurkintas spektras, (b) f-2f ir f-3f spektrinės interferogramos.

f-3f interferogramos dalis yra superpozicija superkontinuumo, *laisvosios* ir *priverstinės* bangų, taigi galimi trys fazės fliktuacijų rinkiniai: f-3f [SK – *laisvoji* banga]; f-3f [SK – *priverstinė* banga] ir 3f-3f [*laisvoji* – *priverstinė* banga]. Fazinė informacija atstatyta pasinaudojus Furje spektrinėje interferometrijoje naudojamais metodais (angl. *Fourier transform spectral interferometry*). Atitinkamai gautos fazių fliktuacijų: 315, 275 ir 55 mrad. Nepaisant sudėtingos TH impulso laikinės struktūros, rezultatai, išmatuoti f-3f ir f-2f netiesiniais interferometrais, yra labai panašūs, taigi, vienalaikė trečiosios harmonikos ir superkontinuumo generacija leidžia nesunkiai matuoti impulso gaubtinės fazės fliktuacijas.

Pagrindiniai rezultatai ir išvados

1. Pademonstruotas efektyvus keturbangis parametrinis šviesos stiprinimas ir generacija ultravioletinėje spektro srityje naudojant skaidrias kietojo kūno terpes. Cilindrinis pluoštų fokusavimas bei nekolineari sąveikos geometrija leido patenkinti fazinio sinchronizmo sąlygą, išlaikyti didelį sąveikos ilgį bei naudoti didelės energijos kaupinimo impulsus nepažeidžiant netiesinės terpės.
2. Pademonstruota efektyvi Nd:stiklo lazerio harmonikų generacija skirtuminio dažnio žadinimo metodu lydyto kvarco, CaF_2 ir MgF_2 bandiniuose. Gauti generacijos efektyvumai: trečiosios harmonikos (351 nm) - 15%; penktosios harmonikos (211 nm) - 10%; šeštosios harmonikos (176 nm) - >1%.
3. Pademonstruotas plačiajuostis keturbangis parametrinis šviesos stiprinimas ultravioletinėje spektro srityje. Stiprintuvo juostos pločio pakanka 7.5 fs trukmės, 330 nm centrinio bangos ilgio impulsams stiprinti. Sukurtas teorinis modelis, paaiškinantis eksperimente stebėtą stiprinimo juostos plitimą, kaip intensyvių šviesos impulsų savaiminės ir kryžminės fazės moduliacijos rezultata.
4. Pademonstruotas plačiajuostis keturbangis čirpuotų impulsų parametrinis stiprinimas lydyto kvarco terpėje. Sukurtas šaltinis generuoja 30 fs trukmės, 10 μJ energijos ir 310 nm centrinio bangos ilgio impulsus.
5. Eksperimentiškai pademonstruota <30 fs trukmės, derinamų 1.1–1.5 μm spektro ruože impulsų generacija keturbangio nekolinearaus parametrinio stiprinimo metu lydyto kvarco terpeje.
6. Skirtuminio dažnio generacija bei parametrinis stiprinimas gali būti realizuoti vienu metu tame pačiame I tipo BBO kristale, kai kaupinimui naudojama 800 nm ir 570–630 nm bangos ilgio spinduliuotė. Eksperimentiškai pademonstruotas ultratrumpųjų impulsų šaltinis, generuojantis ~ 30 fs, 1.1–2.8 μm bangos ilgio ir 26 μJ energijos impulsus.

7. Naudojant atitinkamai 800 nm ir 1.6–2.8 μm bangos ilgio kaupinimo ir signalinius impulsus galimas plačiajuostis optinis parametrinis stiprinimas I tipo BBO kristale. Pademonstruotas 2 μm centrinio bangos ilgio, 15 fs trukmės ir 15 μJ energijos impulsų šaltinis. Impulsai pasižymi stabilia gaubtinės fazės, kurios kitimas neviršija 330 mrad.
8. Pademonstruota superkontinuumo generacija lydyto kvarco, safyro, CaF_2 ir IAG netiesinėse terpėse naudojant 20 fs trukmės, 2 μm bangos ilgio impulsus. Superkontinuumo spektras apima 450 nm – \geq 2500 nm spektrinę sritį, o jo forma priklauso nuo grupinių greičių dispersijos nulinio padėties kaupinimo atžvilgiu. CaF_2 ir IAG medžiagose sugeneruotas superkontinuumas pasižymi tolygiu ir plokščiu spektrinio intensyvumo skirstiniu.
9. Kartu su superkontinuumo generacija stebėtas trečiosios harmonikos spinduliuotės žadinimas didelio fazinių ir grupinių greičių nederinimo atveju. Trečiosios harmonikos impulsas sudarytas iš *laisvosios* ir *priverstinės* bangų, dėl kurių tarpusavio interferencijos gaunamas moduluotas spektras. Vienalaikė trečiosios harmonikos ir superkontinuumo generacija leido pademonstruoti netiesinį f-3f interferometrą, skirtą impulso gaubtinės fazės kitimui matuoti.

Literatūra

- [1] O. Isaienko and E. Bourget, Ultra-broadband sum-frequency vibrational spectrometer of aqueous interfaces based on a non-collinear optical parametric amplifier, *Opt. Express*, **20**, 547–561 (2012).
- [2] D. Brida, C. Manzoni, G. Cirimi, D. Polli, and G. Cerullo, Tracking ultrafast energy flow in molecules using broadly tunable few-optical-cycle pulses, *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron*, **18**, 329–339 (2012).
- [3] C. Manzoni, D. Polli, and G. Cerullo, Two-color pump-probe system broadly tunable over the visible and the near infrared with sub-30 fs temporal resolution, *Rev. Sci. Instr.*, **77**, 023103 (2006).
- [4] R. Danielius, A. Piskarskas, A. Stabinis, G.P. Banfi, P.Di Trapani, R. Righini, Traveling-wave parametric generation of widely tunable, highly coherent femtosecond light pulses, *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**, 2222–2232 (1993).
- [5] M.H. Dunn, M. Ebrahimzadeh, Parametric generation of tunable light from continuous-wave to femtosecond pulses, *Science*, **286**, 1513–1517 (1999).
- [6] G. Cerullo and S. De Silvestri, Ultrafast optical parametric amplifiers, *Rev. Sci. Instr.*, **74**, 1–18 (2003).
- [7] P. Tzankov, T. Fiebig, and I. Buchvarov, Tunable femtosecond pulses in the near-ultraviolet from ultrabroadband parametric amplification, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 517–519 (2003).
- [8] G. Kurdi, K. Osvay, M. Csatari, I.N. Ross, J. Klebnitzki, Optical parametric amplification of femtosecond ultraviolet laser pulses, *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron*, **10**, 1259–1267 (2004).
- [9] P. Baum, S. Lochbrunner, and E. Riedle, Tunable sub-10-fs ultraviolet pulses generated by achromatic frequency doubling, *Opt. Lett.*, **29**, 1686–1688 (2004).
- [10] S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, M.M. Murnane, and H.C. Kapteyn, 16-fs, 1- μ J ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air, *Opt. Lett.*, **21**, 665–667 (1996).
- [11] C.G. Durfee III, S. Backus, M.M. Murnane, and H.C. Kapteyn, Ultrabroadband phase-matched optical parametric generation in the ultraviolet by use of guided waves, *Opt. Lett.*, **22**, 1565–1567 (1997).
- [12] F. Théberge, N. Aközbeke, W. Liu, A. Becker, and S.L. Chin, Tunable ultrashort laser pulses generated through filamentation in gases, *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 023904 (2006).
- [13] A.E. Jailaubekov, and S.E. Bradforth, Tunable 30-femtosecond pulses across the deep ultraviolet, *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 021107 (2005).

- [14] K. Kosma, S.A. Trushin, W.E. Schmid, and W. Fuss, Vacuum ultraviolet pulses of 11 fs from fifth-harmonic generation of a Ti:sapphire laser, *Opt. Lett.*, **33**, 723–725 (2008).
- [15] A. Penzkofer and H.J. Lehmeier, Theoretical investigation of noncollinear phase-matched parametric four-photon amplification of ultrashort light pulses in isotropic media, *Opt. Quantum Electron.*, **25**, 815–844 (1993).
- [16] H. Crespo, J.T. Mendonça, and A. Dos Santos, Cascaded highly nondegenerate four-wave-mixing phenomenon in transparent isotropic condensed media, *Opt. Lett.*, **25**, 829–831 (2000).
- [17] H.K. Nienhuys, P.C.M. Planken, R.A. van Santen, and H.J. Bakker, Generation of mid-infrared pulses by $\chi^{(3)}$ difference frequency generation in CaF₂ and BaF₂, *Opt. Lett.*, **26**, 1350–1352 (2001).
- [18] S. Woutersen, U. Emmerichs, and H. Bakker, Femtosecond mid-IR pump-probe spectroscopy of liquid water: Evidence for a two-component structure, *Science*, **278**, 658–660 (1997).
- [19] A. Baltuška, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V.S. Yakovlev, A. Scrinzi, T.W. Hünsch, and F. Krausz, Attosecond control of electronic processes by intense light fields, *Nature*, **421**, 611–615 (2003).
- [20] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, and M. Nisoli, Isolated single-cycle attosecond pulses, *Science*, **20**, 443–446 (2006).
- [21] G.G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori, and S. De Silvestri, Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses, *Nature*, **414**, 182–184 (2001).
- [22] D. Brida, C. Manzoni, G. Cirimi, M. Marangoni, S. De Silvestri, and G. Cerullo, Generation of broadband mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier, *Opt. Express*, **15**, 15035–15040 (2007).
- [23] O. Chalus, A. Thai, P. K. Bates, and J. Biegert, Six-cycle mid-infrared source with 3.8 μ J at 100 khz, *Opt. Lett.*, **35**, 3204–3206 (2010).
- [24] L. Bergé, Self-compression of 2 μ m laser filaments, *Opt. Express*, **16**, 21529–21543 (2008).
- [25] J.H. Klein-Wiele, J. Bekesi, and P. Simon, Sub-micron patterning of solid materials with ultraviolet femtosecond pulses, *Appl. Phys. A*, **79**, 775–778 (2004).
- [26] I. Zergioti, K.D. Kyrkis, D.G. Papazoglou, and S. Tzortzakis, Structural modifications in fused silica induced by ultraviolet fs laser filaments, *Appl. Surf. Sci.*, **253**, 7865–7868 (2007).
- [27] A.I. Kalachev, D.N. Nikogosyan, and G. Brambilla, Long-period fiber grating fabrication by high-intensity femtosecond pulses at 211 nm, *J. Lightwave Technol.*, **23**, 2568–2578 (2005).
- [28] I. Zergioti, A. Karaiskou, D.G. Papazoglou, C. Fotakis, M. Kaspetski, and D. Kefetzopoulos, Femtosecond laser microprinting of biomaterials, *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 163902 (2005).
- [29] I.V. Hertel and V. Radloff, Ultrafast dynamics in isolated molecules and molecular clusters, *Rep. Prog. Phys.*, **69**, 1897–2003 (2006).
- [30] C.G. Durfee III, S. Backus, H.C. Kapteyn, and M.M. Murnane, Intense 8-fs pulse generation in the deep ultraviolet, *Opt. Lett.*, **24**, 697–699 (1999).

- [31] L. Misoguti, S. Backus, C.G. Durfee, R. Bartels, M.M. Murnane, and H.C. Kapteyn, Generation of broadband VUV light using third-order cascaded processes, *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 013601 (2001).
- [32] T. Fuji, T. Horyo, and T. Suzuki, Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in neon gas, *Opt. Lett.*, **32**, 2481–2483 (2007).
- [33] L. Bergé and S. Skupin, Sub-2 fs pulses generated by self-channeling in the deep ultraviolet, *Opt. Lett.*, **33**, 750–752 (2008).
- [34] U. Graf, M. Fiess, M. Schultze, R. Kienberger, F. Krausz, and E. Goulielmakis, Intense few-cycle light pulses in the deep ultraviolet, *Opt. Express*, **16**, 18956–18963 (2008).
- [35] H. Okamoto and M. Tatsumi, Generation of ultrashort light pulses in the mid-infrared (3000–800 cm^{-1}) by four-wave mixing, *Opt. Commun.*, **121**, 63–68 (1995).
- [36] R.V. Volkov, D.V. Khakhulin, and A.B. Savel'ev, Fourwave parametric conversion of femto-second laser pulse in a filament induced in a solid target, *Opt. Lett.*, **33**, 666–668 (2008).
- [37] P.S. Banks, M.D. Feit, and M.D. Perry, High-intensity third-harmonic generation in beta barium borate through second-order and third-order susceptibilities, *Opt. Lett.*, **24**, 4–6 (1999).
- [38] J.P. Fève, B. Boulanger, and Y. Guillian, Efficient energy conversion for cubic third-harmonic generation that is phase matched in KTiOPO_4 , *Opt. Lett.*, **25**, 1373–1375 (2000).
- [39] A. Penzkofer, J. Kraus, and J. Sperka, Noncollinear phase matched four photon frequency mixing in water, *Opt. Commun.*, **37**, 437–441 (1981).
- [40] G. Mao, Y. Wu, and K.D. Singer, Third harmonic generation in self-focused filaments in liquids, *Opt. Express*, **15**, 4857–4862 (2007).
- [41] A. Dubietis, G. Tamošauskas, P. Polesana, G. Valiulis, H. Valtna, D. Faccio, P. Di Trapani, and A. Piskarskas, Highly efficient four-wave parametric amplification in transparent bulk Kerr medium, *Opt. Express*, **15**, 11126–11132 (2007).
- [42] H. Valtna, A. Dubietis, G. Tamošauskas, P. Polesana, J. Galinis, D. Majus, G. Valiulis, D. Faccio, P. Di Trapani, and A. Piskarskas, Efficient four-wave parametric amplification and spatial soliton generation in transparent isotropic medium with Kerr nonlinearity, *Lithuanian J. Phys.*, **47**, 403–410 (2007).
- [43] F. Seifert, J. Ringling, F. Noack, V. Petrov, and O. Kittelmann, Generation of tunable femtosecond pulses to as low as 172.7 nm by sum-frequency mixing in lithium triborate, *Opt. Lett.*, **19**, 1538–1540 (1994).
- [44] V. Petrov, F. Noack, F. Rotermund, M. Tanaka, and Y. Okada, Sum-frequency generation of femtosecond pulses in $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ down to 175 nm, *Appl. Opt.*, **39**, 5076–5079 (2000).
- [45] V. Petrov, F. Rotermund, and F. Noack, Generation of femtosecond pulses down to 166 nm by sum-frequency mixing in $\text{KB}_5\text{O}_8 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, *Electron. Lett.*, **34**, 1748–1750 (1998).
- [46] L.D. Ziegler, J. Morais, Y. Zhou, S. Constantine, M.K. Reed, M.K. Steiner-Shepard, and D. Lommel, Tunable 50-fs pulse generation in the 250–310-nm ultraviolet range, *IEEE J. Quantum Electron.*, **34**, 1758–1764 (1998).
- [47] A. Kummrow, M. Wittmann, F. Tschirschwitz, G. Korn, and E.T.J. Nibbering, Femtosecond ultraviolet pulses generated using noncollinear optical parametric amplification and sum frequency mixing, *Appl. Phys. B*, **71**, 885–887 (2000).

- [48] M. Beutler, M. Ghotbi, F. Noack, and I.V. Hertel, Generation of sub-50-fs vacuum ultraviolet pulses by four-wave mixing in argon, *Opt. Lett.*, **35**, 1491–1493 (2010).
- [49] A. Dubietis, G. Jonušauskas, and A. Piskarskas, Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal, *Opt. Commun.*, **88**, 437–440 (1992).
- [50] P.B. Corkum and F. Krausz, Attosecond science, *Nature Phys.*, **3**, 381–387 (2007).
- [51] D. Brida, G. Cirimi, C. Manzoni, S. Bonora, P. Villoresi, S. De Silvestri, and G. Cerullo, Sub-two-cycle light pulses at 1.6 μm from an optical parametric amplifier, *Opt. Lett.*, **33**, 741–743 (2008).
- [52] D. Brida, C. Manzoni, G. Cirimi, M. Marangoni, S. Bonora, P. Villoresi, S. De Silvestri, and G. Cerullo, Few-optical-cycle pulses tunable from the visible to the mid-infrared by optical parametric amplifiers, *J. Opt. A*, **12**, 013001 (2010).
- [53] C. Manzoni, G. Cerullo, and S. De Silvestri, Ultrabroadband self-phase-stabilized pulses by difference-frequency generation, *Opt. Lett.*, **29**, 2668–2670 (2004).
- [54] D. Faccio, A. Grün, P. K. Bates, O. Chalus, and J. Biegert, Optical amplification in the near-infrared in gas-filled hollow-core fibers, *Opt. Lett.*, **34**, 2918–2920 (2009).
- [55] E. Rubino, J. Darginavičius, D. Faccio, P. Di Trapani, A. Piskarskas, A. Dubietis, Generation of broadly tunable sub-30-fs infrared pulses by four-wave optical parametric amplification, *Opt. Lett.*, **36**, 382–384 (2011).
- [56] T. Fuji and T. Suzuki, Generation of sub-two-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing through filamentation in air, *Opt. Lett.*, **32**, 3330–3332 (2007).
- [57] O. Isaienko and E. Borguet, Generation of ultrabroadband pulses in the near-IR by non-collinear optical parametric amplification in potassium titanyl phosphate, *Opt. Express*, **16**, 3949–3954 (2008).
- [58] D. Brida, S. Bonora, C. Manzoni, M. Marangoni, P. Villoresi, S. De Silvestri, and G. Cerullo, Generation of 8.5-fs pulses at 1.3 μm for ultrabroadband pump-probe spectroscopy, *Opt. Express*, **17**, 12510–12515 (2009).
- [59] G. Cerullo, A. Baltuška, O. D. Mücke, and C. Vozzi, Few-optical-cycle light pulses with passive carrier-envelope phase stabilization, *Laser Photonics Rev.*, **5**, 323–351 (2011).
- [60] X. Gu, G. Marcus, Y. Deng, T. Metzger, C. Teisset, N. Ishii, T. Fuji, A. Baltuška, R. Butkus, V. Perval, H. Ishizuki, T. Taira, T. Kobayashi, R. Kienberger, and F. Krausz, Generation of carrier-envelope-phase-stable 2-cycle 740- μJ pulses at 2.1- μm carrier wavelength, *Opt. Express*, **17**, 62–69 (2008).
- [61] C. Erny, L. Gallmann, and U. Keller, High-repetition-rate femtosecond optical parametric chirped-pulse amplifier in the mid-infrared, *Appl. Phys. B*, **96**, 257–269 (2009).
- [62] G. Andriukaitis, T. Balčiūnas, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. Baltuška, T. Popmintchev, M.C. Chen, M.M. Murnane, and H.C. Kapteyn, 90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier, *Opt. Lett.*, **36**, 2755–2757 (2011).
- [63] K.Y. Hong, S.W. Huang, J. Moses, X. Fu, C.J. Lai, G. Cirimi, A. Sell, E. Granados, P. Keathley, and F.X. Kärtner, High-energy, phase-stable, ultrabroadband kHz OPCPA at 2.1 μm pumped by a picosecond cryogenic Yb:YAG laser, *Opt. Express*, **19**, 15538–15548 (2011).

- [64] F. Silva, P.K. Bates, A. Esteban-Martin, M. Ebrahim-Zadeh, and J. Biegert, High-average-power, carrier-envelope phase-stable, few-cycle pulses at 2.1 μm from a collinear BiB_3O_6 optical parametric amplifier, *Opt. Lett.*, **37**, 933–935 (2012).
- [65] C. Homann, M. Bradler, M. Förster, P. Hommelhoff, and E. Riedle, Carrier-envelope phase stable sub-two-cycle pulses tunable around 1.8 μm at 100 kHz, *Opt. Lett.*, **37**, 1673–1675 (2012).
- [66] G. Cirmi, D. Brida, C. Manzoni, M. Marangoni, S. De Silvestri, and G. Cerullo, Few-optical-cycle pulses in the near-infrared from a noncollinear optical parametric amplifier, *Opt. Lett.*, **32**, 2396–2398 (2007).
- [67] R.R. Alfano, *The Supercontinuum Laser Source*, Springer, New York, 2nd edition (2006).
- [68] A. Brodeur and S. L. Chin, Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media, *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 637–650 (1999).
- [69] C. Nagura, A. Suda, H. Kawano, M. Obara, and K. Midorikawa, Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media, *Appl. Opt.*, **41**, 3735–3742 (2002).
- [70] M. Bradler, P. Baum, and E. Riedle, Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- μJ pump pulses, *Appl. Phys. B*, **97**, 561–574 (2009).
- [71] J. Liu, R. Li, and Z. Xu, Few-cycle spatiotemporal soliton wave excited by filamentation of a femtosecond laser pulse in materials with anomalous dispersion, *Phys. Rev. A*, **74**, 043801 (2006).
- [72] S.E. Schrauth, B. Shim, A.D. Slepikov, L.T. Vuong, A.L. Gaeta, N. Gavish, and G. Fibich, Pulse splitting in the anomalous group-velocity-dispersion regime, *Opt. Express*, **19**, 9309–9314 (2011).
- [73] M. Durand, A. Jarnac, A. Houard, Y. Liu, S. Grabielle, N. Forget, A. Durécu, A. Couaïron, and A. Mysyrowicz, Self-guided propagation of ultrashort laser pulses in the anomalous dispersion region of transparent solids: a new regime of filamentation, *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 115003 (2013).
- [74] K.D. Moll and A. Gaeta, Role of dispersion in multiple collapse dynamics, *Opt. Lett.*, **29**, 995–997 (2004).
- [75] M.L. Naudeau, R.J. Law, T.S. Luk, T.R. Nelson, and S.M. Cameron, Observation of nonlinear optical phenomena in air and fused silica using a 100 GW, 1.54 μm source, *Opt. Express*, **14**, 6194–6200 (2006).
- [76] F. Silva, D.R. Austin, A. Thai, M. Baudisch, M. Hemmer, D. Faccio, A. Couaïron, and J. Biegert, Multi-octave supercontinuum generation from mid-infrared filamentation in a bulk crystal, *Nature Commun.*, **3**, 807 (2012).
- [77] V. Roppo, M. Centini, C. Sibilìa, M. Bertolotti, M. Scalora, N. Akozbek, M. J. Bloemer, C. M. Bowden, J. W. Haus, O. G. Kosareva, and V. P. Kandidov, Role of phase matching in pulsed second-harmonic generation: Walk-off and phase-locked twin pulses in negative-index media, *Phys. Rev. A*, **76**, 033829 (2007).
- [78] G. Valiulis, V. Jukna, O. Jedrkiewicz, M. Clerici, E. Rubino, and P. Di Trapani, Propagation dynamics and x-pulse formation in phase-mismatched second-harmonic generation, *Phys. Rev. A*, **83**, 043834 (2011).

Summary

THREE AND FOUR WAVE PARAMETRIC INTERACTIONS FOR ULTRASHORT PULSE GENERATION IN THE ULTRAVIOLET, NEAR AND MID-INFRARED SPECTRAL RANGE

In this thesis we investigated and developed three- and four-wave interaction-based frequency conversion methods for ultrashort pulse generation in the ultraviolet, near and mid-infrared spectral ranges.

In particular, efficient generation of 3-rd (at 351 nm), 5-th (at 211 nm) and 6-th (at 176 nm) Nd:glass laser harmonics was demonstrated experimentally, through noncollinear four-wave difference-frequency mixing in fused silica, CaF₂ and MgF₂ crystals, by means of cylindrical beam focusing and pulse front tilting. Also, broadband optical parametric amplification around 330 nm was investigated theoretically and achieved experimentally in optically isotropic materials, such as fused silica and CaF₂ crystals. The results suggest, that broadband UV pulses as short as 7.5 fs (in the transform limit) could be amplified in the field of millijoule 1-ps pump pulses. We also proposed and demonstrated visible-to-ultraviolet frequency conversion method based on chirped-pulse four-wave optical parametric amplification in fused silica, which produces ~ 30 fs, ~ 10 μ J pulses in the UV spectral range.

We have also developed two methods for visible-to-infrared frequency conversion based on three- and four-wave mixing, that extend the tuning range of a commercial Ti:sapphire laser-NOPA system in the IR. The first method relies on four wave frequency down-conversion, and can achieve up to 20 μ J, sub-30-fs pulses tunable in the 1 – 1.5 μ m range. To the best of our knowledge, this is the first scheme based on isotropic solid-state medium (fused silica) that allows visible-to-IR conversion and provides both very large tunability and simultaneous broadband amplification. The second method considers frequency conversion, based on three wave interactions. In particular, a setup for simultaneous difference frequency generation (DFG) and optical parametric amplification (OPA) in a single BBO crystal was proposed. The method is based on cascaded DFG and OPA interactions, that occur simultaneously within a single type I BBO crystal due to its dispersion properties. We also developed a simple and flexible scheme, that delivers two optical-cycle, carrier-envelope phase (CEP)-stable pulses in the infrared. The method is based on frequency down-

conversion of visible pulses via collinear DFG and subsequent noncollinear optical parametric amplification in the BBO crystal, which is shown to provide broadband phase matching if seeded by ultrashort pulses in the 1.6 – 2.8 μm wavelength range. As an experimental proof, 15 fs pulses with 15 μJ energy at 2 μm central wavelength, with short-term CEP stability of 330 mrad over 10 s were generated.

And finally, we demonstrated ultrabroadband supercontinuum (SC) generation by filamentation of microjoule 20 fs, CEP-stable pulses at 2 μm in wide-bandgap solids: sapphire, fused silica, CaF_2 , and YAG, in the regime of anomalous group velocity dispersion (GVD). The measured SC spectra span from 450 nm to more than 2.5 μm , and their particular shapes crucially depend on digression of the pump wavelength from the the zero GVD wavelength. In that regard, CaF_2 and YAG provide the SC radiation with the smoothest spectral coverage across the entire detected spectral range. We also explained the observed modulation of the third harmonic (TH) spectra in the framework of phase and group-velocity mismatched TH generation. Finally we presented, to our knowledge, the first reported nonlinear f-3f spectral interferometer, consisting of a single bulk YAG crystal, for the CEP stability measurements. The proposed setup was also compared to a conventional f-2f arrangement.

Trumpos žinios apie autorių

Vardas: Julius
Pavardė: Darginavičius
Gimimo data: 1984 05 05
Gimimo vieta: Klaipėda
Tautybė: lietuvis
El. paštas: julius.darginavicius@gmail.com

Išsilavinimas:

1995-2003 Mažeikių Gabijos gimnazija.
2003-2007 Vilniaus universitetas, Fizikos fakultetas (*Bakaluro kvalifikacinis laipsnis*).
2007-2009 Vilniaus universitetas, Fizikos fakultetas (*Magistro kvalifikacinis laipsnis*)
2009-2013 Vilniaus universitetas, Fizikos fakultetas, Kvantinės elektronikos katedra (*Doktorantas*).

Mokslinės stažuotės:

2009 “Ultrashort and intense laser technology and metrology”, Bordo (Prancūzija).
2010 “International summer school in ultrafast nonlinear optics 2010”, Edinburgas (Škotija).

Curriculum vitae

Name: Julius
Surname: Darginavičius
Date of birth: 1984 05 05
Place of birth: Klaipėda
Nationality: lithuanian
E-mail: julius.darginavicius@gmail.com

Education:

1995-2003 Mažeikiai Gabija gymnasium.
2003-2007 Vilnius university, Faculty of physics (*Bachelor degree*).
2007-2009 Vilnius university, Faculty of physics (*Master degree*).
2009-2013 Vilnius university, Faculty of physics, Department of Quantum Electronics (*Ph.D. student*).

Scientific internships:

2009 “Ultrashort and intense laser technology and metrology”, Bordeaux (France).
2010 “International summer school in ultrafast nonlinear optics 2010”, Edinburgh (Great Britain).