

VILNIAUS UNIVERSITETAS  
FIZIKOS FAKULTETAS  
LAZERINIŲ TYRIMŲ CENTRAS

Sigita Balandytė

FEMTOSEKUNDINIŲ ŠVIESOS GIJŲ ŽADINIMAS IR SUPERKONTINUUMO  
GENERACIJA ŠARMINIŲ METALŲ HALIDŲ KRISTALUOSE

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerių fizikos ir optinių technologijų  
studijų programa

Studentė

Sigita Balandytė

Leista ginti

2019-05-23

Darbo vadovas

prof. habil. dr. Audrius Dubietis

Recenzentas

prof. dr. Mikas Vengris

L.e.p. LTC direktorius

doc. Rytis Butkus

Vilnius, 2019

# Turinys

1	Įvadas .....	2
2	Teorinis įvadas .....	3
2.1	Elektromagnetinės spinduliuotės sąveika su medžiaga .....	3
2.2	Netiesinis lūžio rodiklis .....	4
2.3	Šviesos saviveikos reiškiniai .....	4
2.3.1	Pluošto fokusavimasis .....	4
2.3.2	Netiesiniai nuostoliai .....	5
2.3.3	Impulso fazės moduliavimasis.....	6
2.3.4	Femtosekundinės šviesos gijos .....	7
2.3.5	Superkontinuumo generacija .....	9
2.3.6	Grupinių greičių dispersija .....	10
2.4	Femtosekundinės trukmės impulsų sąveika su šarminių metalų halidų kristalais - eksitonų formavimasis .....	11
2.4.1	Spalvinių centrų formavimasis .....	12
2.4.2	Optinės natrio chlorido ir kalio bromido savybės .....	13
3	Tyrimo metodas ir aparatūra .....	16
4	Tyrimo rezultatai ir jų aptarimas .....	19
5	Išvados ir rezultatai .....	27
6	Santrauka .....	28
7	Summary .....	29
	Literatūros sąrašas .....	30

# 1 Įvadas

Koherentinio šviesos šaltinio – lazerio sukūrimo (1960 m.) dėka, 1961 m. Frankeno su kolegomis pademonstruota antrosios harmonikos generacija, davė pradžią naujai mokslo šakai – netiesinei optikai [1]. Netiesinius reiškinius, derėtų suprasti, kaip netiesinį medžiagos optinių savybių pakitimą, priklausantį nuo kritusios spinduliuotės intensyvumo [1]. Vienas netiesinės optikos reiškinių yra superkontinuumo generacija. Intensyviai ultratrumpajam šviesos impulsui ( $t < 10$  ps [2]) sklindant skaidrijoje medžiagoje yra stebimas dramatiškas jo spektro plitimas. Superkontinuumas yra koherentinė tiek laike, tiek erdvėje, plataus spektro spinduliuotė, kuri sklinda pluošto pavidalu, o jos spektriniai komponentai tarpusavyje yra fazuoti [2]. Šios savybės lemia platų superkontinuumo pritaikymą spektroskopijoje, interferometrijoje, mikroskopijoje, keleto optinių ciklų impulsų generavime [3, 4]. Po Ti:safyro lazerio sukūrimo, buvo atrastas naujas netiesinės optikos reiškinys pavadintas femtosekundine šviesos gija. Šviesos gijos formavimasi lemia sudėtinga įvairių netiesinių reiškinių, tokių kaip impulso fazės moduliavimosi, pluošto fokusavimosi, daugiafotonės sugerties, laisvųjų elektronų plazmos formavimosi, keturbangio dažnių maišymo tarpusavio sąveika. Šviesos gija dėl savo subdifrakcinio sklidimo ir jos spektrą sudarančio superkontinuumo buvo pritaikyta atmosferos teršalų tyrimuose, elektros išlydžio valdymo tyrimuose, keliamųjų fotoninių darinių kūrimo, parametriniame šviesos stiprinime [2, 5].

Plataus spektro, koherentinė laike ir erdvėje spinduliuotė, sklindanti subdifrakciniu režimu vidurinėje infraraudonojoje spektro dalyje yra labai naudinga spektroskopiniams taikymams, o ypač molekulinėje spektroskopijoje charakteringų molekulinų virpesių detekcijai. Šios srities superkontinuumo spinduliuotė yra svarbi ir parametriniam šviesos stiprinimui bei impulsų spūdai, generuojant trumpiausius - keleto optinių ciklų trukmės, impulsus. Vienu plačiausiai netiesinės optikos taikymams naudojamų dielektrinių medžiagų, tokių kaip lydytas kvarcas, safyras ir YAG, pralaidumas vidurinėje infraraudonojoje spektro srityje yra ribotas. Lydytas kvarcas optiškai skaidrus bangos ilgiams iki  $3,6 \mu\text{m}$ , o safyras ir YAG smarkiai sugeria spinduliuotę, kurios bangos ilgiai didesni nei  $5,2 \mu\text{m}$  [6]. Fluoridų kristalai pasižymi geresniu pralaidumu šioje spektro srityje, tačiau eksperimentiniai rezultatai parodė, kad generuojant superkontinuumą  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$  kristaluose, pasireiškia šių medžiagų optinė degradacija [7]. Šios priežastys skatina medžiagų tinkamų superkontinuumo generacijai infraraudonoje spektro srityje paieškas ir tyrimus.

Neseniai publikuoti teoriniai skaičiavimai pademonstravo puikias perspektyvas superkontinuumo generacijos šarminių metalų halidų kristaluose [8]. Taip pat šie kristalai pasižymi neįtikėtinais plėčiu pralaidumo langu, kuris NaCl kristale apiman  $0,17 - 18 \mu\text{m}$  bangos ilgių sritį, o KBr kristale  $0,20 - 30,6 \mu\text{m}$  [6]. Todėl šio **darbo tikslas** buvo eksperimentiškai ištirti superkontinuumo generacijos dėsningumus šarminių metalų halidų kristaluose (NaCl ir KBr), žadinant femtosekundiniais impulsais, kurių nešantysis bangos ilgis yra  $3,6 \mu\text{m}$ .

## 2 Teorinis įvadas

### 2.1 Elektromagnetinės spinduliuotės sąveika su medžiaga

Elektromagnetinis laukas su medžiaga sąveikauja per joje esančius elektrinius krūvius, o elektromagnetinės spinduliuotės poveikio mastas krūvininkams savu ruožtu priklauso nuo spinduliuotės intensyvumo. Elektromagnetinis laukas veikdamas elektros krūvius, verčia juos judėti. Taip atsiranda papildomas nuo laiko priklausantis dalelių poslinkis, kuris ir yra medžiagos atsakas į elektromagnetinę spinduliuotę. Dielektrinėse medžiagose šis atsakas yra aprašomas poliarizuotumu. Šis papildomas medžiagos krūvių judėjimas kuria naują elektromagnetinį lauką, nes laike kintantis poliarizuotumas yra elektromagnetinio lauko šaltinis. Spinduliuotės sąveikos su medžiaga metu, kinta tiek pačios spinduliuotės, tiek medžiagos būsenos, o jos priklauso viena nuo kitos [9].

Tiesinėje optikoje medžiagos poliarizuotumas nuo elektrinio lauko stiprio priklauso tiesiškai ir yra išreiškiamas tokia forma:

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}(t), \quad (1)$$

čia  $\epsilon_0$  – dielektrinė skvarba vakuume,  $\chi^{(1)}$  – tiesinis optinis jautris,  $\vec{E}(t)$  - elektrinio lauko vektorius, laike kintantis optiniu dažniu. Tiesinis optinis jautris yra tenzorius nusakantis porcingumą tarp elektrinio lauko stiprio ir indukuoto medžiagos poliarizuotumo [2].

Medžiagos netiesinį atsaką į kritusią spinduliuotę lemia jos didelis intensyvumas [9]. Intensyvi spinduliuotė sukuria netiesinį elektringų dalelių poslinkį, dėl ko ir medžiagos poliarizuotumas tampa netiesine lauko funkcija [9]. Netiesinėje optikoje, medžiagos atsakas į kritusį elektrinį lauką gali būti išreikštas elektrinio lauko stiprio laipsnine eilute [2]:

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} \vec{E}(t) + \chi^{(2)} \vec{E}^2(t) + \chi^{(3)} \vec{E}^3(t) + \dots] = \vec{P}^{(1)}(t) + \vec{P}^{(2)}(t) + \vec{P}^{(3)}(t) + \dots, \quad (2)$$

čia  $\epsilon_0$  – dielektrinė skvarba vakuume,  $\chi^{(2)}$  yra kvadratinis/ antros eilės netiesinis optinis jautris,  $\chi^{(3)}$  - kubinis/ trečios eilės netiesinis optinis jautris,  $\vec{E}^2(t)$  ir  $\vec{E}^3(t)$  yra atitinkamai antros ir trečios eilės elektrinio lauko vektoriai,  $\vec{P}^{(2)}(t)$  ir  $\vec{P}^{(3)}(t)$  - antros ir trečios eilės poliarizuotumai. Optinių jautrių vertės smarkiai skiriasi ( $\chi^{(1)} = \pi/2$ ,  $\chi^{(2)} \approx 2 \cdot 10^{-12} \text{ m/V}$ ,  $\chi^{(3)} \approx 4 \cdot 10^{-24} \text{ m}^2/\text{V}^2$ ), todėl norint stebėti netiesinius optinius reiškinius yra reikalingos didelės elektrinio lauko stiprio vertės, jog būtų įskaitomi kvadratinio ar kubinio poliarizuotumo nariai [2]. Kvadratinį poliarizuotumą turi ne visos medžiagos, o tik dielektriniai kristalai, kurie neturi simetrijos centro. Tuo tarpu kubiniu poliarizuotumu pasižymi visos medžiagos nepriklausomai nuo jų agregatinės būsenos [2].

## 2.2 Netiesinis lūžio rodiklis

Viena svarbiausių medžiagos charakteristikų, nagrinėjant medžiagos ir šviesos sąveiką, yra jos lūžio rodiklis –  $n$ . Netiesinės optikos reiškiniuose didelis spinduliuotės intensyvumas  $I$ , indukuoja nuo jo priklausantį lūžio rodiklio pokytį  $\Delta n$ . Visos kubinio netiesiškumo medžiagos yra charakterizuojamos netiesiniu lūžio rodikliu  $n_2$ . Intensyviai spinduliuotei sklindant skaidria medžiaga, indukuojamas nuo intensyvumo priklausantis lūžio rodiklis, kuris yra išreiškiamas tokia forma:

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (3)$$

čia  $n_0$  - tiesinis lūžio rodiklis,  $n_2$  – netiesinis lūžio rodiklis (matavimo vienetai  $m^2/W$ ), kuris išreiškiamas:

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0^2\epsilon_0 c}, \quad (4)$$

čia  $c$  - šviesos sklidimo greitis vakuume,  $\chi^{(3)}$  - kubinio netiesiškumo optinis jautris (ketvirto rango tenzorius),  $\epsilon_0$  - vakuumo dielektrinė skvarba [2].

Intensyvios optinės spinduliuotės indukuotas netiesinis lūžio rodiklis pasižymi tam tikra atsako trukme [2]. Šviesos gija yra formuojama femtosekundiniais impulsais, todėl pagrindinis mechanizmas, lemiantis netiesinį lūžio rodiklį, yra elektroninis nerezonansinis netiesiškumas. Femtosekundinių impulsų režime, šis netiesiškumas atsiranda dėl elektronų debesėlio iškraipymo, kuris turi laikiną atsaką daug mažesnę už jį žadinančio impulso trukmę ( $\sim 10^{-16}$  s), todėl jis laikomas momentiniu [9].

Du svarbiausi netiesiniai reiškiniai, sąlygojami elektroninio netiesiškumo, yra pluošto fokusavimasis ir impulso fazės moduliavimasis. Visos skaidrios medžiagos pasižymi elektroniniu netiesiškumu, todėl šiuos reiškinius galima stebėti visose skaidriose medžiagose, kuriomis sklinda galingas ultratrumpasis impulsas ir kurių optinio pažeidimo slenkstis yra didesnis nei intensyvumo vertė, nuo kurios šie procesai pasireiškia. Paprastai kondensuotose terpėse šiems netiesiniams reiškiniams pasireikšti yra reikalingos megavatinės smailinės impulso galios [10].

## 2.3 Šviesos saviveikos reiškiniai

### 2.3.1 Pluošto fokusavimasis

Pluoštas, dėl intensyvumo pasiskirstymo erdvėje, indukavęs medžiagoje lūžio rodiklio moduliaciją, sklinda šia terpe ir iškreipia savo fazinį frontą. Skirtingos pluošto erdvinės vietos patiria skirtingą lūžio rodiklio priedą, kurį pačios ir indukavo. Pluoštas fokusuojasi arba defokusuojasi, priklausomai nuo medžiagos kurioje sklinda. Kai indukuojamas teigiamas netiesinio lūžio rodiklio priedas ( $n_2 > 0$ , dielektrinėse medžiagose skaidrumo srityje), pluoštas sklindamas medžiaga pradeda fokusuotis [2].

Bendrai lazerio generuojami pluoštai pasižymi difrakcine skėstimi – pluošto diametro didė-

jimu tolstant nuo sąsmaukos. Norint stebėti pluošto fokusavimosi reiškinių, visų pirma reikia atsverti šią skėstį. Pluošto galia, prie kurios fokusavimasis atsveria skėstį simetriniam Gauso pluoštui yra vadinama kritine galia  $P_{cr}$  [3]:

$$P_{cr} = \frac{3,77\lambda^2}{8\pi n_0 n_2}, \quad (5)$$

čia  $\lambda$  - bangos ilgis,  $n_0$  - tiesinis lūžio rodiklis,  $n_2$  - netiesinis lūžio rodiklis. Idealiu atveju impulsas, kurio galia lygi  $P_{cr}$ , sklįstų medžiaga nekeisdamas savo erdvinių matmenų [3]. Galiai viršijus  $P_{cr}$  vertę difrakcinė skėstis yra ne tik atsveriamas, bet pluoštas pradeda fokusuotis. Atstumas, kuriame pluoštas turėtų susifokusuoti yra vadinamas netiesiniu židinio nuotoliu  $z_{sf}$  ir išreiškiamas tokia forma:

$$z_{sf} = \frac{0,367z_r}{\left(\sqrt{\left[(P/P_{cr})^{1/2} - 0,852\right]^2 - 0,0219}\right)}, \quad (6)$$

čia  $z_r = \pi n_0 w_0^2 / \lambda$  žymi Reilėjaus (difrakcijos) nuotolį Gauso pluoštui, kurio spindulys yra  $w_0$ ,  $P$  - pluošto galia,  $P_{cr}$  - kritinė fokusavimosi galia [3]. Svarbu paminėti, kad pluoštui fokusuojantis jo intensyvumas didėja, todėl pluoštas ima fokusuotis vis sparčiau. Atstume, lygiame netiesiniam židinio nuotoliui, matematinio požiūriu, pluošto matmenys turėtų artėti į nulį, o tai reikštų, kad intensyvumas netiesiniame židinyje turėtų artėti į begalybę. Eksperimentiniuose matavimuose ši matematinė abstrakcija nėra stebima, dėl konkuruojančių netiesinių mechanizmų, kurie pradeda stabdyti tolesnį pluošto fokusavimąsi [2].

### 2.3.2 Netiesiniai nuostoliai

Mažiausias pluošto diametras, pasiekiamas dėl fokusavimosi reiškinių, yra ribojamas konkuruojančio netiesinio mechanizmo – laisvųjų elektronų generacijos kondensuotose terpėse. Laisvieji elektronai indukuoja neigiamą netiesinio lūžio rodiklio priedą, kuris yra aprašomas Drude modeliu:

$$\Delta n_e = -\frac{2\pi e^2 N_e}{n_0 m_e (w_0^2 + v^2)}, \quad (7)$$

čia  $N_e$  - elektronų tankis,  $v$  - elektronų susidūrimų dažnis,  $w_0$  - nešantysis dažnis,  $m_e$  - elektrono masė,  $n_0$  - tiesinis lūžio rodiklis  $e$  - elektros krūvis [10]. Kai  $N_e$  pasiekia  $\sim 10^{17} - 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  vertes, teigiamas netiesinio lūžio rodiklio priedas ( $n_2 I$ ) yra atsveriamas neigiamo -  $\Delta n_e$ , todėl tolesnis pluošto fokusavimasis nebevyksta. Laisvųjų elektronų plazma indukuoja nuostolius (sugertis, sklaida) spinduliuotei, dėl kurių pluošto intensyvumas mažėja. Apibendrinant, šis procesas, stabdantis pluošto fokusavimąsi ir tolesnį intensyvumo augimą, yra vadinamas intensyvumo ribojimu [10].

Pagrindinis mechanizmas, sąlygojantis laisvųjų elektronų plazmos generaciją kondensuotose terpėse femtosekundinių impulsų režime, yra daugiafotonė sugertis, dar vadinama netiesine

sugertimi [10]. Daugiafotonė sugertis yra apibrėžiama kaip reiškinys, kai skaidri medžiaga turi tikimybę, priklausančią nuo spinduliuotės intensyvumo, sugerti kelis fotonus vienu metu [2]. Spinduliuotės intensyvumui dėl pluošto fokusavimosi pasiekus tam tikrą vertę, dviejų ar daugiau fotonų vienalaikė sugertis pasidaro tikima, todėl sistema gali pereiti iš nesužadintos būsenos į sužadintą būseną per virtualų lygmenį. Šie sužadinti elektronai ir formuoja pluoštą defokusuojančią ir spinduliuotę sugeriančią - sukeliančią nuostolius, plazmą [2]. Fotonų skaičius reikalingas vieno elektrono išlaisvinimui, dar vadinamas daugiafotonės sugerties eile, yra išreiškiamas taip:

$$K = \left\langle \frac{E_g}{\hbar\omega_0} \right\rangle + 1, \quad (8)$$

čia  $E_g$  - medžiagos draustinės juostos tarpas,  $\hbar\omega_0$  - fotono energija [3]. Iš pateiktos išraiškos matyti, kad medžiagose su plačia draustine juosta, vyrauja aukštesniųjų eilių daugiafotonė sugertis.

Ilgėsių impulsų režime, svarbus netiesinės sugerties mechanizmas yra griūtinė jonizacija. Kiekvienoje realioje medžiagoje egzistuoja baigtinis kiekis laisvųjų elektronų. Šie elektronai sąveikos su optine spinduliuote metu, gali būti pakankamai įgreitinti ir dėka smūginės jonizacijos sužadinti elektronus iš valentinės juostos į laidumo juostą. Tokiu principu taip pat yra generuojama laisvųjų elektronų plazma. Laisvųjų elektronų plazma kondensuotose skaidriose medžiagose yra generuojama tiek dėl daugiafotonės, tiek dėl griūtinės jonizacijos, tačiau nuo impulso trukmės priklauso, kurio mechanizmo įtaka yra didesnė [2].

### 2.3.3 Impulso fazės moduliavimasis

Į medžiagą kritusio impulso spektrinės savybės gali skirtis nuo pro medžiagą praėjusio impulso spektro. Šis efektas vadinamas fazės moduliavimusi ir jis ryškiausiai pasireiškia impulsams su dideliu smailiniu intensyvumu. Fazės moduliavimasis tai sklindančio medžiagoje impulso fazės pasikeitimas, atsiradęs dėl terpės lūžio rodiklio laikinės moduliacijos ( $n(t) = n_0 + n_2 I(t)$ ), kurią indukavo pats impulsas sklisdamas medžiagoje dėl laike kintančio intensyvumo. Šis fazės pokytis yra išreiškiamas taip:

$$\Phi_{nl}(t) = -\frac{w_0}{c} n_2 I(t) z, \quad (9)$$

čia  $w_0$  - nešantysis impulso dažnis, o  $z$  - sklidimo medžiaga atstumas,  $c$  - šviesos greitis,  $n_2$  - netieinis lūžio rodiklis,  $I$  - intensyvumas [2]. Iš pateiktos išraiškos matyti, kad fazės pokytis yra kaupiamasis procesas, priklausantis nuo atstumo  $z$  [3]. Kadangi dažnis yra fazės laikinė išvestinė, tai dėl fazės pokyčio  $\Phi_{nl}(t)$  kinta ir impulso dažnis [3]:

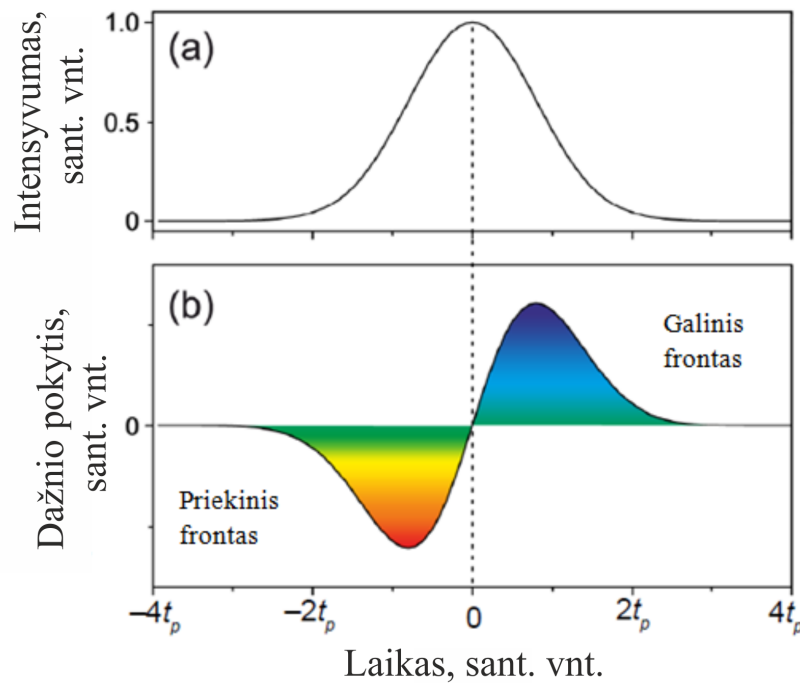
$$\delta w = \frac{d}{dt} \Phi_{nl}(t). \quad (10)$$

$$w(t) = w_0 + \delta w. \quad (11)$$

Laikė kintantis lūžio rodiklis sukelia fazinę moduliaciją, kuri savo ruožtu sąlygoja dažninę moduliaciją. Tai reiškia, kad yra kuriami nauji dažniai ir impulsas yra spektriškai praturtinamas [3]. Gauso pavidalo impulsui, kurio trukmė  $t_p$ , dažnio pokytis yra išreiškiamas taip:

$$\delta w(t) = -2 \frac{w_0}{ct_p^2} n_2 I_0 \exp\left(-\frac{t^2}{t_p^2}\right) t z, \quad (12)$$

čia  $w_0$  – nešantysis impulso dažnis,  $z$  – sklidimo medžiaga atstumas,  $c$  – šviesos greitis,  $n_2$  – netiesinis lūžio rodiklis,  $I_0$  – centrinis intensyvumas,  $t_p$  – impulso trukmė. Vizualiai impulso indukuotas dažnio pokytis yra iliustruotas 1 pav. Neigiamas dažnio priedas atsiranda impulso pradžioje (priekiniame fronte), todėl jame generuojami spektriniai komponentai, kurių dažnis yra mažesnis už nešantįjį dažnį (raudonesni). Teigiamas dažnio priedas formuojasi impulso pabaigoje (galiniame fronte), todėl jame kuriami didesnio dažnio spektriniai komponentai [3].



1 pav. Impulso fazės moduliavimas: (a) šviesos impulso laikinė gaubtinė, (b) dažnio moduliacija [3].

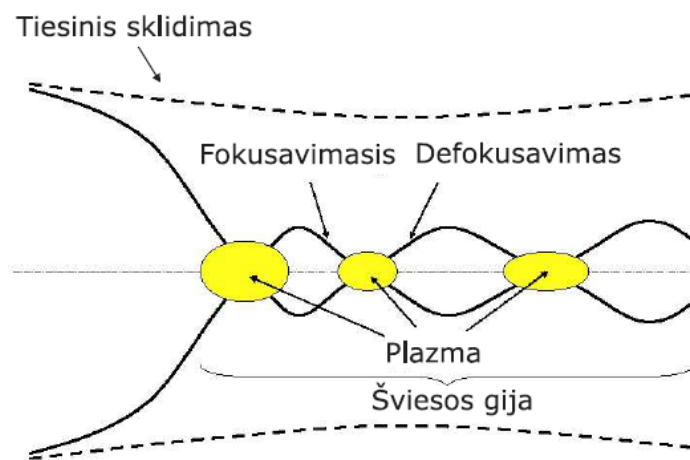
### 2.3.4 Femtosekundinės šviesos gijos

Femtosekundinės šviesos gijos atsiradimas yra daugelio fizikinių reiškinių, vykstančių vienu metu ir darančių įtaką vienas kitam, rezultatas. Todėl nagrinėjant šviesos gijos formavimosi dinamiką reikia atsižvelgti į pluošto fokusavimąsi, impulso fazės moduliavimąsi, netiesinę sugertį, keturbangį dažnių maišymąsi, medžiagos dispersiją, grupinių greičių dispersiją, laisvųjų elektronų plazmos generaciją ir t.t. [11].

Supaprastintas teorinis modelis, apimantis pluošto fokusavimosi, difrakcijos ir plazmos generacijos reiškinius, gerai iliustruoja šviesos gijos formavimosi dinamiką. Femtosekundiniam šviesos impulsui su galia, didesne už kritinę galią  $P > P_{cr}$ , patekus į skaidrią netiesinę ter-



pę pradeda reikštis pluošto fokusavimasis – pluošto matmenys mažėja, o intensyvumas auga. Pluošto intensyvumas netoli netiesinio židinio yra toks didelis, kad pradeda reikštis kitas efektas – netiesinė sugertis. Dėl netiesinės sugerties (daugiafotonės sugerties), skaidri terpė pradeda sugerti vienu metu kelis kritusios spinduliuotės fotonus. Kondensuotose medžiagose, remiantis juostiniu energijos lygmenų modeliu, valentinės juostos elektronai absorbavę kelis fotonus vienu metu peršoka į laidumo juostą, kur yra sąlyginai laisvi. Didėjant elektronų skaičiui laidumo juostoje, pradeda formuotis plazma, kuri turi neigiamą netiesinį lūžio rodiklį ( $n_2 < 0$ ), todėl pluoštas yra defokusuojamas. Tai reiškia, kad pluošto matmenys, dėl defokusuojančios plazmos, ima didėti, tuo pačiu intensyvumas mažėti. Kadangi pluošto intensyvumas mažėja, mažėja ir laisvųjų elektronų plazmos generacija. Intensyvumui sumažėjus pakankamai, plazmos generacija sustoja [11]. Jei pluošto centrinės dalies galia vis dar viršija kritinę fokusavimosi galia, ciklas pradeda kartotis. Šių procesų kaita schematiškai yra pateikta 2 pav. [2].



2 pav. Femtosekundinės šviesos gijos fokusavimosi, plazmos generacijos ir defokusavimosi procesų kaita [2].

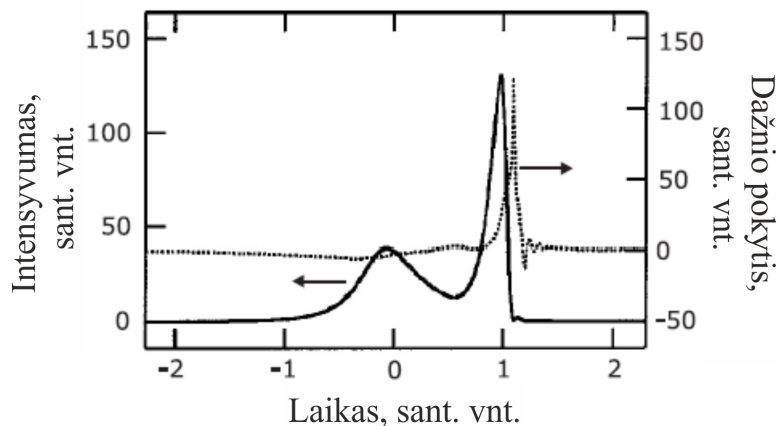
Keičiant pradinį pluošto fokusavimą, jo intensyvumą bei erdvinę simetriją, galima manipuluoti šviesos gijos erdvine struktūra. Prie kritusio pluošto galių  $P < 5P_{cr}$  dinaminė fokusavimosi ir defokusavimosi ciklų kaita nepasireiškia. Tokiu atveju susiformuoja šviesos gija su mažu, bet pastoviai lėtai didėjančiu skersmeniu, šviesos gija sklinda subdifrakciniu režimu. Tai reiškia, kad šviesos gijos difrakcinė skėstis yra daug mažesnė nei Gausinio pluošto skėstis. Kai pradinė pluošto galia viršija  $P_{cr}$  dešimtis ir daugiau kartų, pradeda formuotis šviesos gijos dariniai, kurių skaičius yra proporcingas  $N \approx P/P_{cr}$  [2].

Šviesos giją sudaro mažos energijos ir matmenų, tačiau intensyvi centrinė smailė ir didelės energijos, bet mažo intensyvumo periferinė dalis, kuri yra sudaryta iš koncentrinų žiedų [12]. Netiesiškai su medžiaga sąveikauja centrinė pluošto dalis. Toks šviesos gijos pasiskirstymas erdvėje atitinka kūginį pluoštą. Skaitmeninio modeliavimo darbai pademonstravo, kad pradinis spinduliuotės skirstinys iš Gausinio į kūginį transformuojasi dėl fokusavimosi, plazmos generacijos ir defokusavimo reiškinų kaitos [12]. Su medžiaga netiesiškai sąveikauja tik centrinė

pluošto dalis, nes jos intensyvumas yra didžiausias, todėl ir netiesiniai nuostoliai pasireiškia tik šiai sričiai - pluošto viršūnė pradeda plokštėti, o jos intensyvumas mažėti dėl laisvųjų elektronų plazmos susidarymo. Tačiau pluošto šlaituose, kur intensyvumas yra mažesnis, fokusavimosi etapas dar yra nesibaigęs [2]. Suplokštėjusi centrinė pluošto sritis nebeformuoja gradientinio lūžio rodiklio, todėl yra išlaikomas pastovus fazės pokytis. Kadangi pluošto kraštai fokusuojasi nepaisant centrinės dalies pastovaus sklidimo, rezultate yra stebimas viršūnės įdubimas. Taip formuojasi periferinė šviesos gijos žiedinė struktūra [12]. Centrinė smailė dėl daugiafotonės sugerties patiria nuostolius, tačiau šie nuostoliai yra kompensuojami periferinės srities. Ši šviesos gijos savybė vadinama savaimine centrinės dalies rekonstrukcija. Rekonstrukcija vyksta tol, kol periferinė gijos dalis turi pakankamai energijos, kad difraguodama galėtų kompensuoti centrinės dalies nuostolius [12]. Išikvojus pluošto energiją, šviesos gija ima nykti [2].

### 2.3.5 Superkontinuumo generacija

Eksperimentiniai tyrimai parodė, kad superkontinuumo (SC) generacijos slenkstis sutampa su pluošto fokusavimosi kritine galia ( $P_{cr}$ ) [13–15], tad femtosekundinės šviesos gijos ir superkontinuumo generacijos reiškinys yra glaudžiai susiję. Superkontinuumo generaciją lemia daugelis netiesinės (fokusavimasis, fazės moduliavimasis, impulso skilimas arba spūda, jo frontų statėjimas, kūginės spinduliuotės atsiradimas, netiesinė sugertis) ir tiesinės (difrakcija ir grupinių greičių dispersija) optikos reiškinų vienu metu. Superkontinuumo generaciją gerai iliustruoja femtosekundinių šviesos gijų fizikinis aiškinimas [2]. Tačiau pagrindinis skirtumas tarp SC ir femtosekundinių šviesos gijų yra tas, kad SC saviveika įvyksta labai mažu atstumu, jo spektras yra tolydus ir asimetrinis [2]. Šis spektro plitimo asimetriškumas yra sąlygotas laikinio impulso plyšimo į du subimpulsus jei medžiagos grupinių greičių dispersija yra normali [16].



3 pav. Superkontinuumo laikinė struktūra (ištisinė linija) ir dažnio moduliacija (punktyrinė linija) [2].

Vizualus subimpulsų vaizdas yra pateiktas 3 pav. Matyti, kad impulsų amplitudės bei frontų statumai smarkiai skiriasi, todėl ir dažninė moduliacija yra skirtinga. Priekinio impulso amplitudė maža, o frontai gulstesni, todėl superkontinuumo plitimas į ilgabangę sritį yra silpnas.

Tuo tarpu galinio impulso frontai yra daug statesni, o amplitudė didesnė, tad superkontinuumo plitimas į mėlynąją pusę yra žymiai stipresnis [2].

SC taip pat pasižymi tuo, kad patys plačiausi spektrai yra gaunami medžiagose, kuriose netiesinis lūžio rodiklis  $n_2$  yra mažas, o tokios medžiagos pasižymi plačia draustine juosta  $E_g$ . Šis fenomenas yra aiškinamas daugiafotonės sugerties ir laisvųjų elektronų plazmos generacijos reiškiniais. Pluošto fokusavimasis yra ribojamas daugiafotonės sugerties, nes jos metu yra generuojama laisvųjų elektronų plazma, pasižyminti neigiamu lūžio rodiklio priedu. Kai medžiagoje, sąveikos su intensyvia spinduliuote metu, yra pasiekiamas  $N_r \simeq 10^{18} \text{ cm}^3$  laisvųjų elektronų tankis, fokusavimasis nebevyksta. Nustojus pluoštui fokusuotis yra pasiekiamos ribinės intensyvumo ( $I_r$ ) ir pluošto diametro ( $d_{min}$ ) vertės, o abu šie parametrai ir priklauso nuo daugiafotonės sugerties eilės. Kuo didesnė daugiafotonės sugerties eilė, tuo didesnio intensyvumo reikia, kad netiesinė sugertis pradėtų reikštis.

Remiantis (8) išraiška, matyti, kad daugiafotonės sugerties eilė yra tuo didesnė, kuo platesnė medžiagos draustinė juosta. Todėl ir didesni  $I_r$  bei mažesni  $d_{min}$  bus pasiekiami medžiagose su platesne draustinės energijos juosta. Automatiškai ir platesni SC spektrai bus generuojami tokiose medžiagose. Skaitmeniniai tyrimai parodė, kad be ribinio intensyvumo, medžiagos dispersija taip pat apsprendžia SC spektro plitimą bei jo formą [17]. Medžiagose su mažesne dispersija gaunamas SC spektras yra platesnis [18].

### 2.3.6 Grupinių greičių dispersija

Grupinių greičių dispersija (GGD) - turi didelę įtaką femtosekundinės šviesos gijos bei superkontinuumo formavimuisi bei jų savybėms. Grupinių greičių dispersijos koeficientas yra išreiškiamas tokia forma:

$$k''_0 = \frac{\delta^2 k}{\delta w^2} \Big|_{w_0}, \quad (13)$$

čia  $k = w_0 n_0 / c$  – bangos skaičius,  $w_0$  - centrinis dažnis,  $n_0$  - tiesinis lūžio rodiklis,  $c$  - šviesos greitis vakuume,  $w$  - dažnis [3]. Grupinių greičių dispersija yra normalioji, kai  $k''_0 > 0$ , o tai reiškia, kad raudonesni impulso dažniai sklinda greičiau už mėlynesnius. Ši sritis vadinama normaliosios grupinių greičių dispersijos sritimi. Sritis, kurioje  $k''_0 < 0$ , vadinama anomalija, nes joje raudonesni impulso dažniai atsilieka mėlynesnių atžvilgiu. Priklausomai nuo grupinių greičių dispersijos srities (kai atsižvelgiama tik į GGD), impulsai sklisdami medžiaga gali laike plisti (normalioji sritis) arba spaustis (anomalioji sritis) [3].

Femtosekundiniam impulsui sklindant dielektrinėje medžiagoje su normaliaja GGD, yra stebimas šio impulso plyšimas į du subimpulsus. Šis reiškinys buvo nagrinėjamas įvairiais teoretiniais metodais [19–21] bei stebimas eksperimentiškai [22,23]. Intensyviam femtosekundiniam impulsui su galia, didesne už kritinę  $P_{cr}$  pasireiškia pluošto erdvinis fokusavimasis (medžiagose su  $n_2 > 0$ ), kuris sąlygoja intensyvumo augimą. Tuo tarpu laike impulsas, dėl GGD plečiasi ir energija yra pernešama iš centrinės impulso dalies į periferinę. Dėl šios dinamikos, laike impulso galia tampa mažesnė už kritinę galią ( $P < P_{cr}$ ), todėl erdvinis fokusavimasis centrinėje

pluošto dalyje nebevyksta, o periferinės pluošto dalies galia dėl GGD tampa didesnė už kritinę galią. Taip gali būti aiškinamas dviejų intensyvių smailių susidarymas. Šie susiformavę du subimpulsai sklinda skirtingais grupiniais greičiais [20].

Dėl impulso fazės moduliavimosi, impulso spektras yra praturtinamas naujais dažniais: raudonesni dažniai generuojasi priekiniame, o mėlynieji galiniame impulso frontuose. Dėl fokusavimosi arti netiesinio židinio impulsas suplyšta į du subimpulsus, kurių nešantieji dažniai yra skirtingi, o tai reiškia, kad subimpulsai juda skirtingais grupiniais greičiais. Ypač trumpų impulsų atveju, tenka įskaityti netiesinio atsako dispersiją, kuri sąlygoja grupinio greičio priklausomybę nuo intensyvumo [24]. Kuomet netiesinio lūžio rodiklio vertė yra teigiama ( $n_2 > 0$ ), intensyvesnė impulso sritis judės mažesniu grupiniu greičiu už periferinę sritį, o tai reiškia, kad centrinė impulso dalis atsiliks frontų atžvilgiu. Šis efektas sąlygoja tai, kad impulso plyšimas į du subimpulsus yra asimetrinis. Šie du asimetriniai impulsai sukurs ir skirtingą spektro plitimą tiek į trumpabangę, tiek ir į ilgabangę spektro sritis dėl impulsų fazinio moduliavimosi. Įprastomis pluošto fokusavimo sąlygomis artimoje infraraudonoje spektro srityje, superkontinuumo plitimas į trumpabangę pusę yra didesnis [12].

## 2.4 Femtosekundinės trukmės impulsų sąveika su šarminių metalų halidų kristalais - eksitonų formavimasis

Paveikus dielektrinę medžiagą femtosekundinės trukmės lazerine spinduliuote, elektronai gali būti sužadinti į laidumo juostą daugiafotonės jonizacijos bei griūtinės jonizacijos mechanizmais, kurie buvo aptarti anksčiau. Sužadintų elektronų relaksacijos metu gali susiformuoti defektai, kurie atitinkamai gali sąlygoti medžiagos struktūros modifikacijas ar net optinį pažeidimą. Kai kurioms plačios draustinės juostos medžiagoms vienas svarbiausių relaksacijos mechanizmų yra eksitonų formavimasis, sukeliantis lokalų gardelės persitvarkymą ir šių defektų kaupimąsi [25].

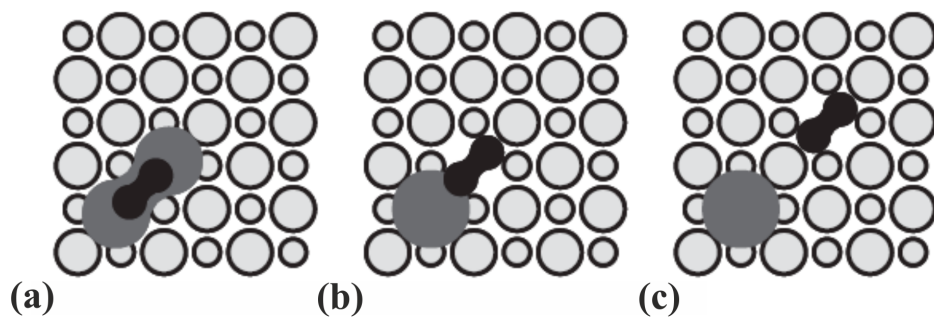
Kai elektronas yra sužadinamas į laidumo juostą, valentinėje juostoje lieka skylė. Elektronas ir skylė gali būti susieti Kulono trauka, ir bendrai šis sužadintas, bet elektriškai neutralus darinys yra vadinamas eksitonu. Eksitono susiformavimas iš elektrono ir skylės poros yra greitas procesas ir dielektrikuose dažniausiai trunka mažiau nei 1 ps [26]. Kristaluose eksitonai sąveikauja su fononais - gardelės virpesiais. Priklausomai nuo eksitoną palaikančios sąveikos stiprumo (sužadinto elektrono ir skylės Kulono traukos stiprumo), eksitonas gali būti suardytas fononų, jei sąveika yra silpna. Stiprios sąveikos atveju, susidaro surištas eksitonas (*angl. exciton self – trapping*).

Surištieji eksitonai dažniausiai formuojasi dielektrinėse medžiagose su dideliu draustinės juostos tarpu, pavyzdžiui - šarminių metalų halidai. Įdomu tai, kad šarminių metalų halidai buvo pirmieji, kuriuose buvo manoma, kad galėtų pasireikšti surištieji eksitonai, bei kuriuose pirmą kartą ir buvo stebėti šie eksitonai. Šarminių metalų haliduose, draustinės juostos tarpas yra nuo 5,9 eV (NaI) iki 13,7 eV (LiF) [27], o surištas eksitonas yra sudarytas iš elektrono apsupto šarminių metalų jonų bei skylės, užėmusios halogeninės molekulės jono orbitą [25].

### 2.4.1 Spalvinių centrų formavimasis

Naujausi surišųjų eksitonų struktūrų tyrinėjimai suteikė platesnį supratimą apie vidinių defektų formavimosi mechanizmus [27]. Surištieji eksitonai gali suteikti reikalingą energiją (paprastai keletą eV) vidinių defektų susidarymui [25].

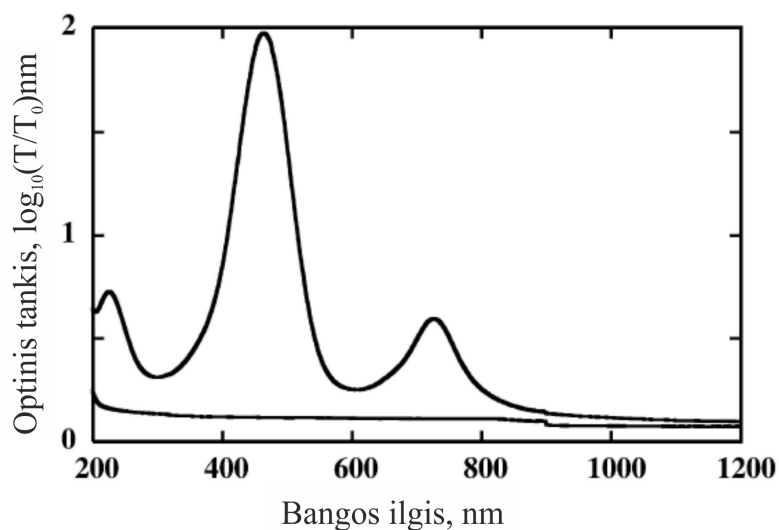
Eksitonas turi baigtinį gyvavimo laiką - galiausiai jis skyla. Pagrindiniai šio skilimo produktai šarminių metalų haliduose yra F-H poros. Relaksuojant eksitonui formuojasi F centras, kuris dar vadinamas spalviniu centru ir yra sudarytas iš elektrono užpildžiusio halogeno (neigiamo jono) vakanciją. Kartu su F centru, relaksuojant eksitonui, susidaro ir H centras - tarpmazginis halogeno atomas susietas su gardelės halogeno jonu. Surištojo eksitono skilimas vyksta per jo išcentravimą (žiūr. 4 pav. (b) dalį), kai H centras yra paslenkamas nuo jo susiformavimo vietos, tokiu būdu sudarant stabilią F-H centrų porą [25].



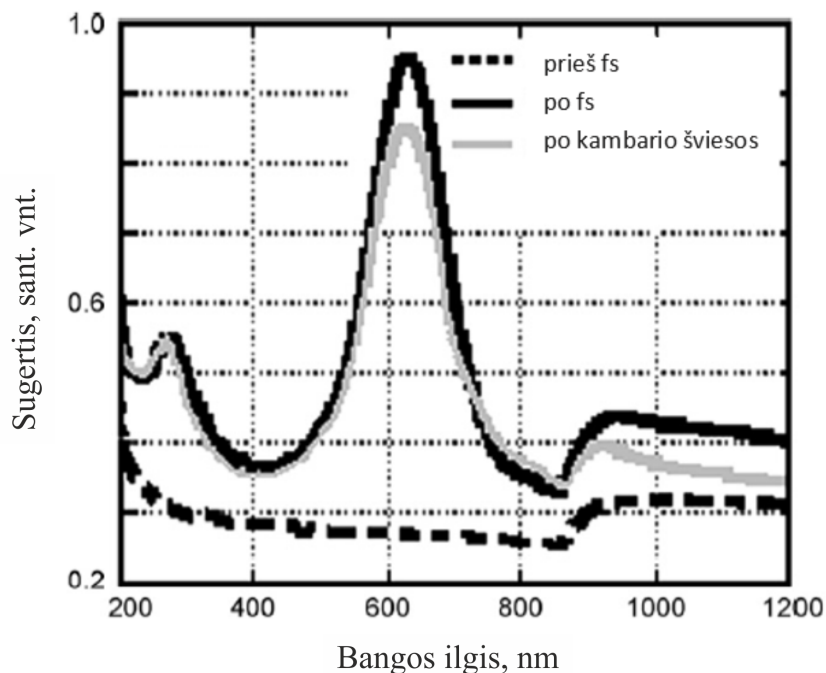
4 pav. Taškinių defektų formavimosi iš surišųjų eksitonų principinė schema: (a) Surištasis eksitonas; (b) Išcentruotas surištas eksitonas; (c) F-H pora šarminių metalų haliduose. Maži rutuliai atvaizduoja šarminių metalų, o dideli - halidų jonus [25].

F centras vadinamas spalviniu centru, nes elektronas, užėmęs halido vakanciją, pasižymi sugertimi regimojo spektro ruože. Dėl šios sugerties skaidrus kristalas įgauna spalvą. NaCl spalvinių centrų sugerties spektras yra pateiktas 5 pav., o KBr kristale susiformavusių spalvinių centrų sugertis pateikta 6 pav. Šiuose paveiksluose pateiktos defektų sugertys turi po vieną išraiškingą smailę, kuri atitinka F centro sugertį (NaCl spalvinio centro sugertis ties 460 nm, o KBr spalvinio centro sugertis ties 625 nm). Tačiau be spalvinių centrų kristaluose formuojasi ir daugiau defektų, turinčių savitas sugertis. V centrai - tai gardelėse susiformavusios skylės, kurios dažnai siejamos su įvairiomis priemaišomis. V centrų sugertis F centrų sugerties atžvilgiu yra pasislinkusi į trumpabangę sritį (NaCl kristale ties 220 nm, o KBr ties 240 nm) [28]. Pora F centrų (gretimose gardelės mazguose esantys F centrai) taip pat turi savitą sugertį, kuri yra ilgesnių bangos ilgių srityje pavienio F centro sugerties atžvilgiu (NaCl kristale ties 510 nm, o KBr kristale ties 920 nm), o bendrai šis darinys vadinamas M centru [28].

F centrų sugerties juosta yra gana plati, tačiau sugerties smailės, kurios KBr kristale yra ties 625 nm [29], o NaCl ties 460 nm [28], priklauso nuo halido vakancijos dydžio. Didėjant gardelės parametrai, sugerties smailės bangos ilgis taip pat didėja. Ši tendencija pasireiškia visiems šarminių metalų halidams [30]. Gardelės konstanta NaCl yra 5,64 Å, o KBr 6,6 Å, todėl ir KBr spalvinių centrų sugerties smailė yra didesnio bangos ilgio [31].



5 pav. NaCl optinio tankio, atitinkančio sugertį, spektrai prieš ir po spalvinių centrų susidarymo paveikus 400 nm bangos ilgio femtosekundinės trukmės impulsais [28].



6 pav. KBr sugerties spektrai prieš ir po spalvinių centrų susidarymo paveikus 400 nm bangos ilgio femtosekundinės trukmės impulsais [29].

#### 2.4.2 Optinės natrio chlorido ir kalio bromido savybės

Šarminių metalų halidai yra stabilūs kristaliniai junginiai. Jie sudaryti iš elementų, esančių IA ir VIIB cheminėje periodinėje lentelėje. Šarminiai metalai pasižymi tuo, kad yra vieni iš labiausiai elektropozityvių elementų, priešingai, halidai - vieni iš labiausiai elektroneigiamų elementų. Dėl to šarminių metalų halidai yra medžiagos, pasižyminčios stipriausiu joniniu ryšiu [32]. Šie joniniai kristalai turi didelį draustinės energijos tarpą. Grynai kristalai yra skaidrūs

labai plačiame diapazone, skaidrumą ultravioletinėje srityje riboja elektroninis sužadimas, o infraraudonoje - gardelės virpesinis sužadimas [32]. Šarminių metalų halidams priklauso ir natrio chloridas bei kalio bromidas. Pagrindinės optinės šių kristalų savybės yra pateiktos 1 lentelėje. Kad būtų galima šių medžiagų savybes palyginti su klasikinėmis netiesinėje optikoje naudojamomis medžiagomis, lentelėje yra pateikti ir YAG kristalo parametrai.

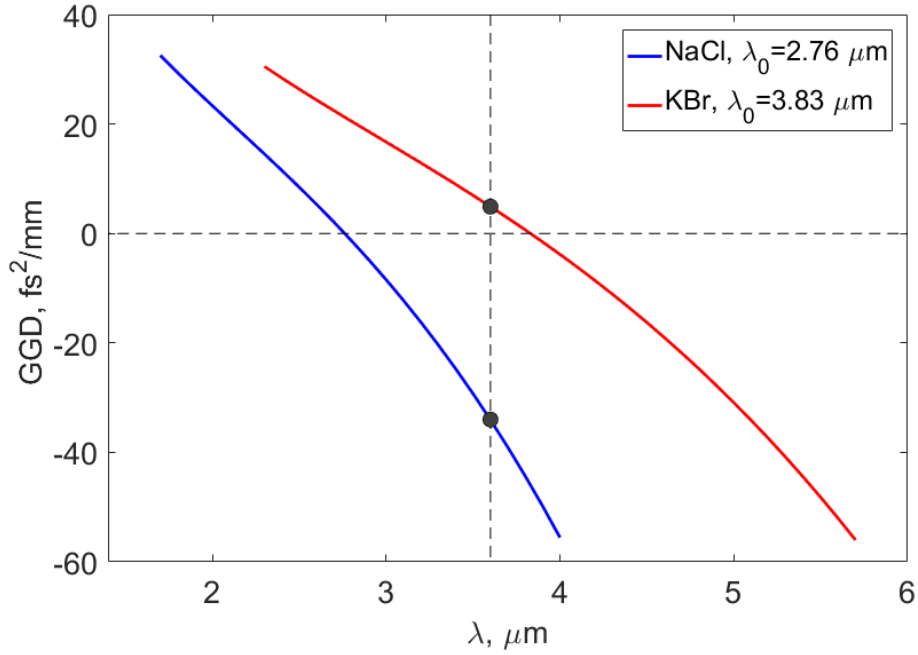
1 lentelė. Pagrindiniai optiniai NaCl, KBr ir YAG parametrai. Tiesinis lūžio rodiklis  $n_0$  šioms medžiagoms pateiktas ties 3,6  $\mu\text{m}$  bangos ilgiu [33, 34], YAG netiesinis lūžio rodiklis  $n_2$  - ties 1,06  $\mu\text{m}$  bangos ilgiu [3], o netiesinio lūžio rodiklio vertės NaCl ir KBr kristaluose apskaičiuotos ties 3,6  $\mu\text{m}$  bangos ilgiu [3, 6].

Medžiaga	NaCl	KBr	YAG
<i>Pralaidumo sritis, <math>\mu\text{m}</math></i>	0,17 – 18,0	0,20 – 30,6	0,21 – 5,2
<i><math>E_g, \text{eV}</math></i>	9,0	7,6	6,5
<i><math>\lambda_0, \mu\text{m}</math></i>	2,76	3,83	1,60
<i><math>n_0</math></i>	1,523	1,536	1,783
<i><math>n_2 \cdot 10^{-16}, \text{cm}^2/\text{W}</math></i>	1,3	2,6	6,2

Tiek NaCl, tiek KBr gardelės yra kubinės [6]. Taip pat šie kristalai yra tirpūs vandenyje. NaCl tirpumas yra 39,8 g/100g  $\text{H}_2\text{O}$ , o KBr 65,2 g/100g  $\text{H}_2\text{O}$  [6]. Norint dirbti su tirpiomis kristalinėmis medžiagomis labai svarbu palaikyti sausas darbo sąlygas arba izoliuoti pačius kristalus nuo jiems agresyvios aplinkos, kad būtų išlaikomos pastovios kristalų savybės.

Netiesinės optikos reiškiniuose ypač svarbus medžiagos parametras yra grupinių greičių dispersija. Anksčiau buvo minėta, kad plačiausi superkontinuumo spektrai yra generuojami arti nulinės GGD vertės. 7 pav. yra pateiktos NaCl ir KBr grupinių greičių dispersijos kreivės. Šių medžiagų nulinės GGD vertės NaCl kristale yra ties 2,76  $\mu\text{m}$ , o KBr kristale ties 3,83  $\mu\text{m}$ .

Šiame darbe NaCl ir KBr kristaluose femtosekundinės šviesos gijos buvo žadinamos 3,6  $\mu\text{m}$  bangos ilgio spinduliuote. Ties šiuo bangos ilgiu GGD vertės NaCl ir KBr kristaluose yra  $-36,07 \text{ fs}^2/\text{mm}$  ir  $4,90 \text{ fs}^2/\text{mm}$  atitinkamai. Tuo tarpu YAG kristale, ties šiuo kaupinimo bangos ilgiu, grupinių greičių dispersijos vertė yra  $-718,56 \text{ fs}^2/\text{mm}$ . Todėl galima teigti, kad šiame darbe šviesos gijos NaCl ir KBr kristaluose buvo žadinamos srityje artimoje jų nulinėms grupinių greičių dispersijoms.

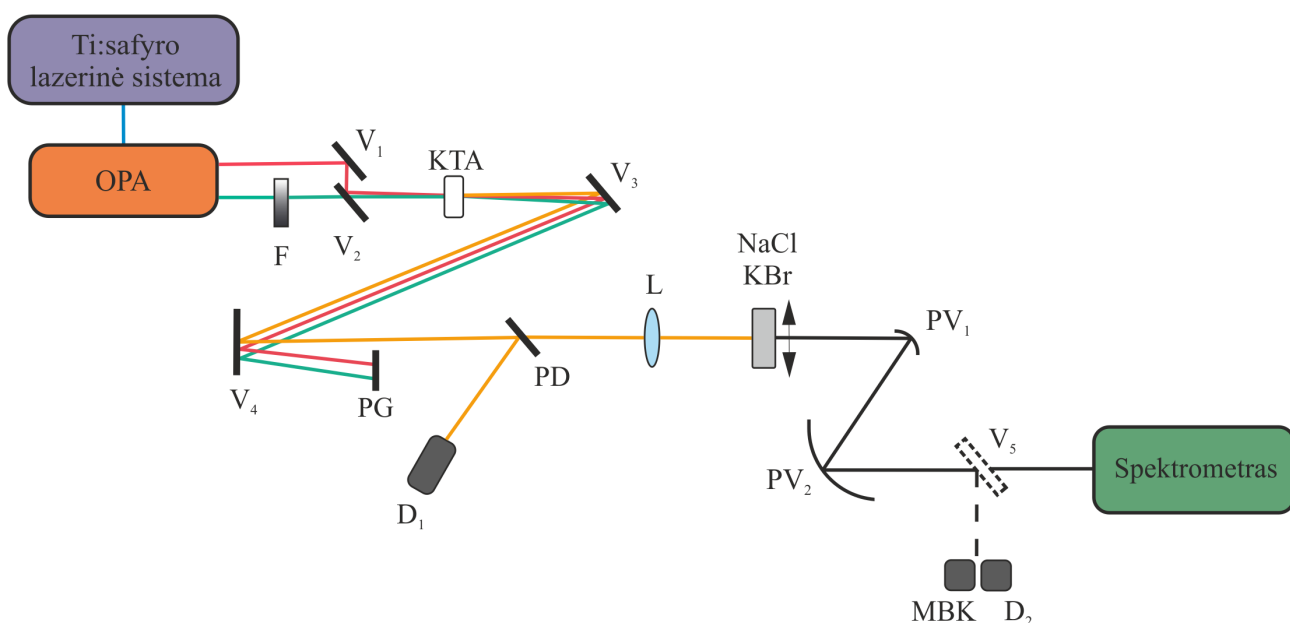


7 pav. Grupinių greičių dispersijos kreivės NaCl ir KBr kristaluose. Horizontali punktyrinė linija žymi nulinę GGD vertę, o vertikali punktyrinė linija žymi kaupinimo bangos ilgį - 3,6  $\mu\text{m}$ . Taškais pažymėtos vietos atitinka GGD vertę ties kaupinimo bangos ilgiu: NaCl kristale -36,07  $\text{fs}^2/\text{mm}$ , o KBr kristale 4,90  $\text{fs}^2/\text{mm}$  [34].

Kompiuterinio modeliavimo darbai pademonstravo puikius rezultatus superkontinuumo generavimui su ypač plačiu spektru NaCl bei KBr medžiagose. Teigiama, kad teoriškai NaCl kristale, žadinant jį 3,5  $\mu\text{m}$  bangos ilgio spinduliuote, galėtų susidaryti 0,75 – 6  $\mu\text{m}$  superkontinuumas, o kaupinant 5  $\mu\text{m}$  spinduliuote, kontinuumas išplistų dar labiau - 0,7 – 7,6  $\mu\text{m}$  [8]. Teoriniai tyrimai KBr kristale pademonstravo, kad kaupinant 4  $\mu\text{m}$  bangos ilgio spinduliuote generuojamas 0,8 – 8  $\mu\text{m}$  pločio superkontinuumas, o žadinant 6,5  $\mu\text{m}$  bangos ilgio spinduliuote - spektras išplinta 0,63 – 15  $\mu\text{m}$  [35]. Šie rezultatai paskatino platesnius eksperimentinius superkontinuumo generacijos šiose medžiagose tyrimus.



### 3 Tyrimo metodas ir aparatūra



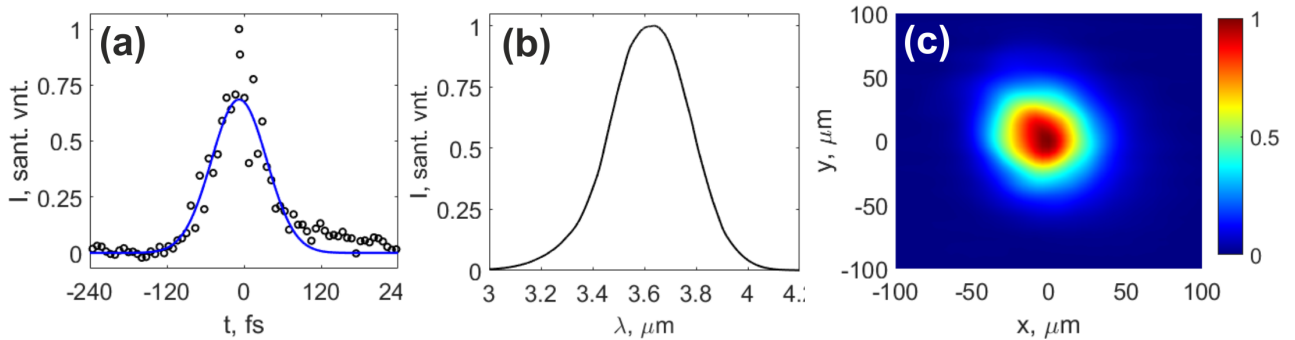
8 pav. Eksperimentinė femtosekundinių šviesos gijų NaCl ir KBr kristaluose tyrimo schema: OPA - optinis parametrinis stiprintuvas,  $V_1, V_3 - V_5$  - veidrodžiai,  $V_2$  - dichroinis veidrodis, F - kintamojo pralaidumo filtras, KTA - skirtuminio dažnio generacijos kristalas, PG - pluošto gaudyklė, PD - pluošto daliklis,  $D_1, D_2$  detektoriai, L - lęšis, NaCl ir KBr - natrio chlorido ir kalio bromido bandiniai,  $PV_1, PV_2$  - paraboliniai veidrodžiai, MBK - mikro-bolometrinė kamera. Rodyklė žymi transliacinę staliuką, žalios ir raudonos spalvų linijos vaizduoja signalinę ir šalutinę spinduliuotę atitinkamai, geltona - skirtuminio dažnio spinduliuotę, juoda - kristaluose sugeneruotą spinduliuotę.

Femtosekundinių šviesos gijų tyrimo natrio chloride ir kalio bromide, eksperimentinė schema yra pateikta 8 pav. Titano safyro lazerinė sistema (Spitfire PRO, Newport-Spectra Physics) generuoja 100 fs, 800 nm, iki 3 mJ energijos ir 500 Hz pasikartojimo dažnio impulsus. 0,9 mJ Ti:safyro spinduliuotės naudojama kaupinti BBO netiesiniais kristalais paremtą optinį parametrinį stiprintuvą (Topas-C, UAB "Šviesos konversija"). Iš parametrinio stiprintuvo gaunami paprastosios poliarizacijos signalinės ir nepaprastosios poliarizacijos šalutinės bangų impulsai, kurių bangos ilgis atitinkamai gali būti derinamas 1,15 – 1,6  $\mu\text{m}$  ir 1,6 – 2,4  $\mu\text{m}$  ribose. Signalinės bangos energija, o kartu ir skirtuminio dažnio bangos energija, buvo kontroliuojama kintamojo pralaidumo filtru (NDL-25C-2, Thorlabs Inc.). Veidrodžiu  $V_1$  ir dichroiniu veidrodžiu  $V_2$  (ZnSe pagrindu, HR:1110-1600 nm, HT:2000-2600 nm,  $i=60^\circ$ ) laike ir erdvėje mažu nekolinearumo kampu (išorinis kampas  $0,3^\circ$ ) suderinti šalutinės (2057 nm) ir signalinės (1309 nm) bangų impulsai buvo nukreipiami į skirtuminio dažnio generacijos kristalą. Generacijai buvo naudojamas 1 mm storio, II tipo fazinio sinchronizmo ( $\theta = 43^\circ, \varphi = 0^\circ$ ) KTA (KTiOAsO<sub>4</sub>) kristalas. Šiame kristale buvo sugeneruota toliau eksperimente naudota skirtuminio dažnio spinduliuotė.  $V_3$  ir  $V_4$  veidrodžiais signalinės ir šalutinės bangų spinduliuotės buvo nukreipiamos į pluošto gaudyklę, o skirtuminio dažnio spinduliuotė į ploną atspindinčią plokštelę (0,2 mm storio IKS7), nuo kurios 2 % spinduliuotės buvo nukreipiama į PbSe atraminį detektorių,

kritusiai į bandinius spinduliuotės energijai nustatyti. Detektoriaus energinei kalibracijai buvo naudojamas NOVA II galios matuoklis (OPHIR PE9-SH-ROHS). Likusi skirtuminio dažnio spinduliuotė BaF<sub>2</sub> (f=+100) lęšiu buvo fokusuojama bandinio tūryje, 2 mm atstumu nuo priekinio paviršiaus. Eksperimentiškai buvo nustatyta, kad tokiais sąlygomis buvo generuojami stabiliausi superkontinuumo spektrai.

Darbe buvo tiriami 5,2 mm storio KBr ir 5 mm storio NaCl monokristalai poliruotais paviršiais. Bandiniai kritusio pluošto atžvilgiu buvo judinami skersai pluošto sklidimo krypties naudojantis transliaciniu staliuku. Šiuose bandiniuose sugeneruotos femtosekundinės šviesos gijos spinduliuotė paraboliniiais veidrodžiais PV<sub>1</sub> (f=+50) ir PV<sub>2</sub> (f=+200) buvo nukreipiama į laboratorijoje sukonstruotą skenuojantį prizminį spektrometrą su Si ir InAsSb detektoriais (0,4 – 5,8 μm). Spektrometru buvo matuojami superkontinuumo spinduliuotės spektrai. Du detektoriai naudojami dėl skirtingų jautrių skirtingose spektrinėse srityse bei galimybės fiksuoti platesnio spektrinio diapazono spinduliuotę. Apdorojant duomenis, skirtingais detektoriais užfiksuoti spektrai buvo sujungti, atsižvelgiant į detektorių jautrių skirtumus.

Erdviniai pluoštų skirstiniai buvo registruojami pastatant V<sub>5</sub> veidrodį prieš spektrometrą ir nukreipiant pluoštą į mikro-bolometrinę kamerą (WinCamD-FIR2-16-HR). Kameros pikselio dydis 17 μm, o į kamerą krentantis pluoštas 4 kartus padidintas. Į tai buvo atsižvelgiama atliekant duomenų apdorojimą. Šia kamera buvo registruoti ir atvaizduoti erdviniai pluoštų skirstiniai ant galinio bandinio paviršiaus, žadinančios spinduliuotės atžvilgiu. Matuojant pro medžiagą praėjusios spinduliuotės energijos priklausomybę nuo laiko, V<sub>5</sub> veidrodžiu pluoštas buvo nukreipiamas į galios matuoklį (Ophir) su piroelektriniu detektoriumi (PE9-SH).



9 pav. KTA kristale sugeneruotos skirtuminio dažnio spinduliuotės charakteristikos: (a) impulso autokoreliacinė funkcija, (b) impulso spektras, (c) pluošto erdvinis skirstinys lęšio židinyje.

Femtosekundinių šviesos gijų tuo pačiu ir superkontinuumo charakteristikos tiesiogiai priklauso nuo giją žadinančios spinduliuotės ir terpės, kurioje šviesos gija yra generuojama. Šiame darbe šviesos gijų žadimui buvo naudojama KTA kristale sugeneruota skirtuminio dažnio spinduliuotė, kurios pagrindinės charakteristikos yra pateiktos 9 pav. Skirtuminio dažnio impulso trukmė buvo išmatuota autokoreliaciniu būdu. Autokoreliacinė funkcija buvo gauta laboratorijoje sukonstruotu skenuojančiu daugiašūviu autokoreliatoriumi generuojant antrąją harmoniką 2 mm storio polikristaliniame ZnSe. Sąryšis tarp autokoreliacinio signalo trukmės ir impulso trukmės, kai impulso pavidalas yra Gausinis, išreiškiamas taip:

$$\tau = \frac{\tau_A}{\sqrt{2}}, \quad (14)$$

čia  $\tau_A$  - žymi autokoreliacinės funkcijos trukmę, o  $\tau$  - žymi Gausinio pavidalo impulso trukmę [9]. Išmatuoti duomenys su aproksimuota Gausine funkcija (mėlyna kreivė) yra pateikti 9 pav. (a). Iš Gausinės funkcijos buvo rasta autokoreliacinio signalo trukmė pusės intensyvumo aukštyje, kurios vertė yra  $\tau_A = 101,1$  fs, o remiantis (14) išraiška, buvo apskaičiuota ir skirtuminio dažnio impulso trukmė pusės intensyvumo aukštyje, kurio vertė yra 72 fs. 9 pav. (b) dalyje yra pateiktas skirtuminio dažnio spinduliuotės spektras, kurio centrinis bangos ilgis yra  $3,6 \mu\text{m}$ . 9 pav. (c) dalyje yra pateiktas pluošto erdvinis skirstinys, kurio diametras pusės intensyvumo aukštyje yra  $54 \mu\text{m}$ .

## 4 Tyrimo rezultatai ir jų aptarimas

Femtosekundinių šviesos gijų žadinimo ir superkontinuumo generacijos tyrimas NaCl ir KBr kristaluose buvo pradėtas nuo šviesos gijų spektro detektavimo, norint įsitikinti ar šiuose šarminių metalų haliduose formuojasi šviesos gija ir išplinta spektras. Gauti rezultatai patvirtino šviesos gijų formavimąsi kristaluose, tačiau pastebėta, kad superkontinuumo spektro plotis laikui bėgant siaurėjo. Spektras siaurėjo priklausomai nuo žadinančios spinduliuotės ekspozicijos trukmės, nors spinduliuotės parametrai bei išorinės sąlygos buvo pastovios. Pakeitus kristalo poziciją žadinančios spinduliuotės atžvilgiu ir pakartotinai atlikus spektro matavimus buvo gauti analogiški rezultatai. Šis spektro siaurėjimas, kaip bus aptarta vėliau, buvo sąlygotas modifikacijų, atsiradusių spinduliuotės sąveikos su bandiniais metu. Tačiau norint įvertinti nuo modifikacijų nepriklausantį superkontinuumo spektro plotį, buvo nuspręsta matavimo metu bandinius transliuoti - keisti jų poziciją statmena žadinančiai spinduliuotei kryptimi.

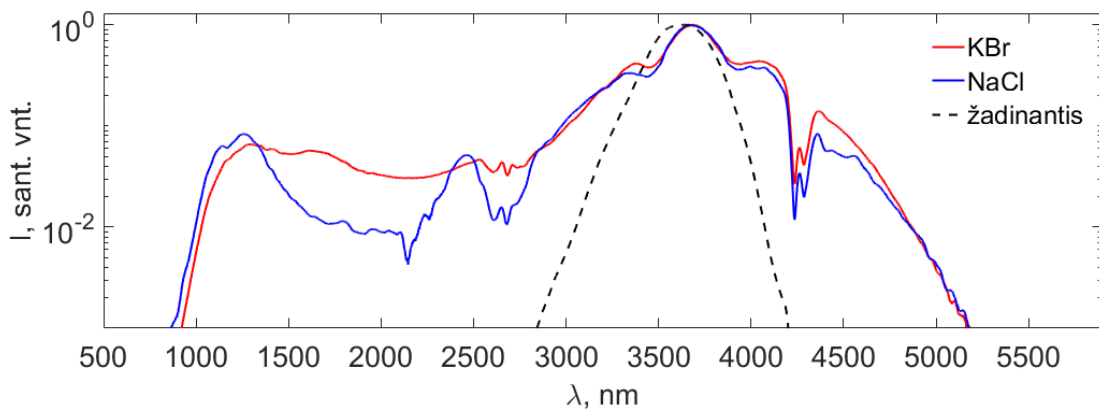
NaCl ir KBr kristaluose sugeneruoti superkontinuumo spektrai, žadinant šviesos gijas su 3,6  $\mu\text{m}$  bangos ilgio ir 72 fs trukmės impulsais bei viso matavimo metu transliuojant bandinius, yra pateikti 10 pav. Kritusio pluošto į KBr kristalą energija 2,5  $\mu\text{J}$ , o į NaCl - 4  $\mu\text{J}$ . Įvertinus Frenelio atspindžius yra gaunamos energijų vertės, kuriomis buvo žadinamos šviesos gijos šiuose kristaluose. KBr kristale šviesos gija buvo žadinama 2,23  $\mu\text{J}$  energijos pluoštu, o NaCl - 3,56  $\mu\text{J}$ . Šios energijos buvo pasirinktos ne atsitiktinai, o surandant didžiausią energijos vertę, prie kurios formavosi tik viena šviesos gija su tvarkingu erdvinio skirstiniu. Ši energijų skirtumą galima paaiškinti netiesinio lūžio rodiklio  $n_2$  verte. Netiesinis lūžio rodiklis lemia netiesinių reiškinių efektyvumą. NaCl ir KBr netiesinių lūžio rodiklių skaičiavimai buvo atlikti remiantis formalizmu, pateiktu [36] šaltinyje, kurio išraiška yra:

$$n_2 = K' \frac{\sqrt{E_p}}{n_0 E_g^4} G_2(\hbar\omega/E_g), \quad (15)$$

čia  $K' = 7,33 \cdot 10^{-9}$  [37] ir  $E_p = 21 \text{ eV}$  [36] yra konstantos, o  $G_2(\hbar\omega/E_g)$  parametras buvo rastas iš kreivės, pateiktos [37] šaltinyje,  $E_g$  - medžiagos draustinė energija (eV),  $n_0$  - tiesinis lūžio rodiklis. Gauta netiesinio lūžio rodiklio išraiška yra *esu* matavimo vienetais, todėl atlikus skaičiavimus,  $n_2$  vertės buvo perskaičiuotos į *SI* sistemos vienetus. Apskaičiuotos vertės parodė, kad KBr netiesinis lūžio rodiklis, kurio vertė 2,6  $\cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ , yra beveik du kartus didesnis už NaCl netiesinį lūžio rodiklį, kurio vertė 1,3  $\cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ . Todėl ir panašios šviesos gijų formavimosi sąlygos KBr kristale buvo pasiektos prie maždaug dvigubai mažesnių energijų nei NaCl kristale.

Tęsiant 10 pav. pateiktų duomenų analizavimą, superkontinuumo spektro plotis NaCl kristale,  $10^{-4}$  santykinio intensyvumo lygyje, apima bangos ilgus nuo 720 nm iki 5380 nm, o tai atitinka 2,9 optinės oktavos. KBr kristale,  $10^{-4}$  santykinio intensyvumo lygyje, buvo gautas kiek siauresnis superkontinuumo spektras. Sugeneruoto SC spektro plotis apėmė bangos ilgus nuo 850 nm iki 5310 nm, o tai atitinka 2,6 optinės oktavos. Taip pat šiuose spektruose, kaip ir toliau pateiktuose, galima pastebėti bendrą ryškiają  $\text{CO}_2$  sugertį ties 4,3  $\mu\text{m}$  ir silpną  $\text{H}_2\text{O}$  garų

sugertį ties  $2,7 \mu\text{m}$  bangos ilgiu.



10 pav. Femtosekundinių šviesos gijų normuoti spektrai gauti transliuojant NaCl ir KBr kristalus: raudona linija žymi superkontinuumo spektrą sugeneruotą KBr kristale, mėlyna kreivė - NaCl kristale, punktyrinė linija žymi žadinančio impulso spektrą. Plušto energija KBr kristale  $2,23 \mu\text{J}$ , o NaCl kristale -  $3,56 \mu\text{J}$

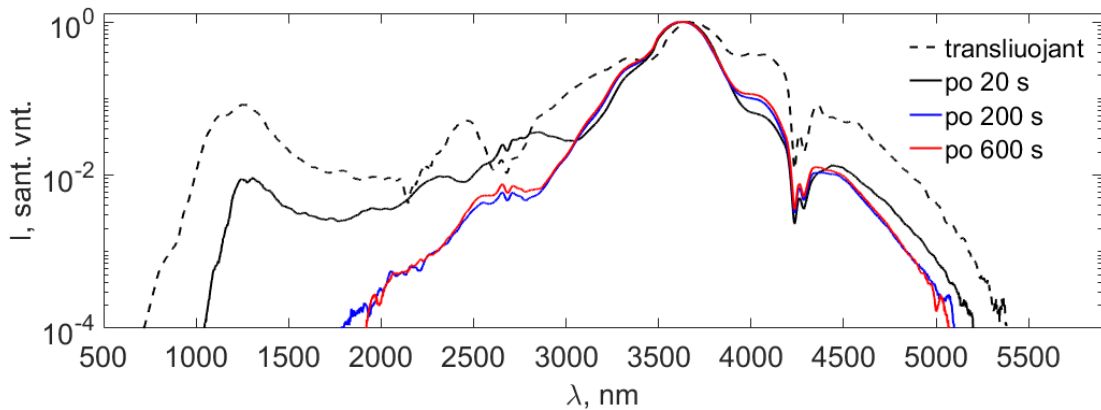
Skaitmeninio modeliavimo darbuose [8,35] atliktos SC simuliacijos KBr ir NaCl kristaluose pateikė itin perspektyvius rezultatus. Žadinant šviesos gijas NaCl kristale su  $3,5 \mu\text{m}$  bangos ilgio spinduliuote, buvo prognozuojamas 3,0 optinės oktavos superkontinuumo spektras, o žadinant  $5,0 \mu\text{m}$  net 3,4 optinės oktavos ( $10^{-3}$  santykinio intensyvumo lygyje) [8]. KBr kristale buvo prognozuojamas 3,3 optinės oktavos superkontinuumo spektras, šviesos giją žadinant su  $4 \mu\text{m}$  bangos ilgio spinduliuote ir net 4,6 optinės oktavos superkontinuumas, žadinant su  $6,5 \mu\text{m}$  bangos ilgio spinduliuote ( $10^{-3}$  santykinio intensyvumo lygyje) [35]. Norint palyginti šiame darbe gautus bei skaitmeninio modeliavimo darbuose prognozuotus SC spektrų pločius, 2 lentelėje yra pateikti rezultatai prie panašiausių kaupinimo bangos ilgių. Skaitmeninio modeliavimo rezultatai yra pateikti  $10^{-3}$  santykinio intensyvumo lygyje, o šiame darbe gauti rezultatai -  $10^{-4}$ .

2 lentelė. Prognozuoti skaitmeninio modeliavimo darbuose ir šiame darbe gauti superkontinuumų spektrų pločiai NaCl ir KBr kristaluose.

Medžiaga	Kaupinimo bangos ilgis, $\mu\text{m}$	SC spektro plotis, $\mu\text{m}$	Optinės oktavos	Šaltinis
NaCl	3,6	0,72 - 5,38	2,6	šis darbas
NaCl	3,5	0,75 - 6,0	3,4	[8]
KBr	3,6	0,85 - 5,31	2,5	šis darbas
KBr	4,0	0,8 - 8,0	3,3	[35]

Iš 2 lentelėje pateiktų duomenų, matyti, kad eksperimentiškai išmatuoti superkontinuumų spektrai yra siauresni, tačiau vienareikšmiškai lyginti šių rezultatų nederėtų. Eksperimentiniai matavimai ilgabangėje srityje buvo ribojami spektrometro detekcijos srities, o trumpabangėje srityje, lyginant su  $10^{-4}$  santykinio intensyvumo lygyje gautais duomenimis, generuojamų superkontinuumų spektrai yra beveik identiški. Todėl galima teigti, kad NaCl ir KBr kristaluose, infraraudonoje spektro srityje, yra generuojama labai plataus spektro superkontinuumo spinduliuotė.

Norint panagrinėti NaCl ir KBr kristaluose generuojamų SC spektrų siaurėjimą, buvo atlikti ilgalaikiai spektrų matavimai netransliuojant kristalų. Matavimų rezultatai pademonstravo, kad spektro siaurėjimas yra greitas ir įsisotinantis procesas. Tai reiškia, kad spektras sparčiausiai siaurėja per pirmąsias sąveikos su spinduliuote sekundes, o po kelių minučių ekspozicijos praktiškai nebekeičia savo spektrinio pločio. 11 pav. yra pateikti NaCl kristale gauti apibendrinti spektrų siaurėjimo rezultatai, o 12 pav. KBr kristale gauti rezultatai. Šiuose paveiksluose yra pateikti ir superkontinuumų spektrų pločiai kristalus transliuojant (punktyrinės linijos), kurie atitinka nesiaurėjančius dėl modifikacijų, spektrų pločius. Juodos linijos vaizduoja spektrus po 20 s spinduliuotės ekspozicijos, mėlynos linijos - po 200 s, o raudonos - po 600 s NaCl kristale ir po 1200 s KBr kristale.



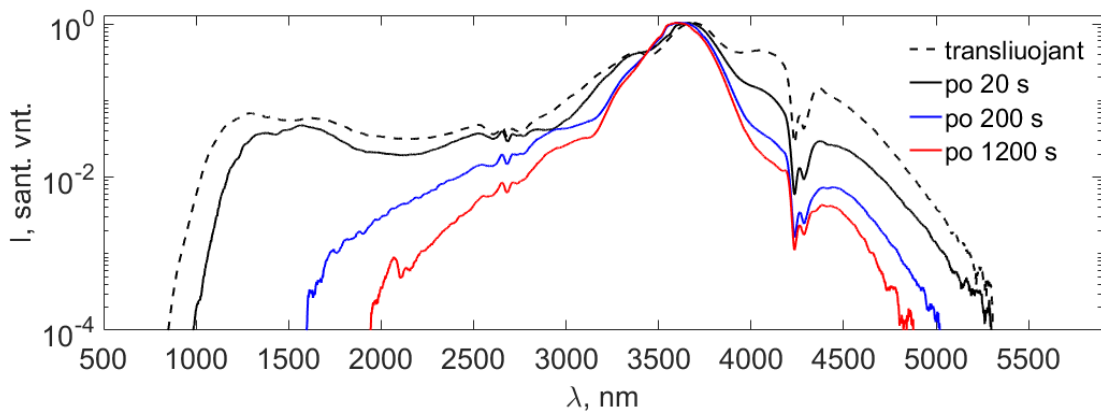
11 pav. NaCl kristale generuotų femtosekundinių šviesos gijų normuoti spektrai, gauti prie skirtingų žadinančios spinduliuotės ekspozicijos trukmių: punktyrinė linija žymi SC spektrą bandinį transliuojant, juoda linija - po 20 s ekspozicijos, mėlyna - po 200 s, raudona - po 600 s.

Tiek NaCl, tiek KBr kristaluose SC spektrai po pirmųjų 20 s ekspozicijos yra susiaurėję. NaCl kristale superkontinuumo spektras po 20 s apėmė bangos ilgus nuo 1045 nm iki 5200 nm ( $10^{-4}$  santykinio intensyvumo lygyje). Lyginant su SC spektru gautu transliuojant NaCl kristalą, po 20 s ekspozicijos spektras smarkiau susiaurėjo trumpabangėje srityje. Po 200 s ir 600 s superkontinuumų spektrai NaCl kristale yra susiaurėję dar labiau, o trumpabangės srities siaurėjimas išlieka stipresnis. Kartu su spektro siaurėjimu, mažėja ir spektrinių komponentų intensyvumas. Taip pat galima pastebėti, kad spektro siaurėjimas įsisotina, nes spektrų pločiai po 200 s ir po 600 s yra praktiškai identiški, o tai reiškia, kad superkontinuumo spektro plotis pradeda nepriklausyti nuo žadinančios spinduliuotės ekspozicijos trukmės. Didžiausias spekt-

ro susiaurėjimas NaCl kristale, kuris ir atitinka nebe priklausantį nuo spinduliuotės ekspozicijos spektrą, apima bangos ilgus nuo 1920 nm iki 5070 nm.

KBr kristale buvo gauta labai panaši SC spektrų laikinė evoliucija. Po pirmųjų 20 s superkontinuumo spektras yra susiaurėjęs ir apima bangos ilgus nuo 985 nm iki 5300 nm. KBr kristale po 20 s ekspozicijos, spektro susiaurėjimas stebimas tik trumpabangėje srityje, tačiau tęsiantis spinduliuotės ekspozicijai, SC spektras siaurėja tiek trumpabangėje, tiek ilgabangėje srityse. Kartu su spektro siaurėjimu, mažėja ir spektrinių komponentų intensyvumas, o spektras kinta tol, kol galiausiai siaurėjimas įsisotina. Nebekintančio spektro plotis KBr kristale apima bangos ilgių sritį nuo 1580 nm iki 4930 nm.

Aptartos NaCl ir KBr kristaluose generuojamų superkontinuumų spektrų dinamikos yra praktiškai vienodos - spektrai siaurėja, kol įsisotina ir labiau siaurėja trumpabangėje srityje. Tačiau spektrų siaurėjimo įsisotinimo trukmė, šiuose kristaluose yra skirtingas. NaCl kristale spektro siaurėjimo įsisotinimas pasiekiamas po mažesnių spinduliuotės ekspozicijos trukmių. Nebekintantis SC spektro plotis NaCl kristale buvo gautas po 80 s spinduliuotės ekspozicijos, kai KBr kristale spektras nustojo siaurėti tik po 1200 s. Bendrai, superkontinuumo spektro siaurėjimas pasireiškia dėl sąveikos su spinduliuote metu medžiagoje indukuojamų modifikacijų bei šių modifikacijų sukeltų tiesinių bei netiesinių nuostolių.

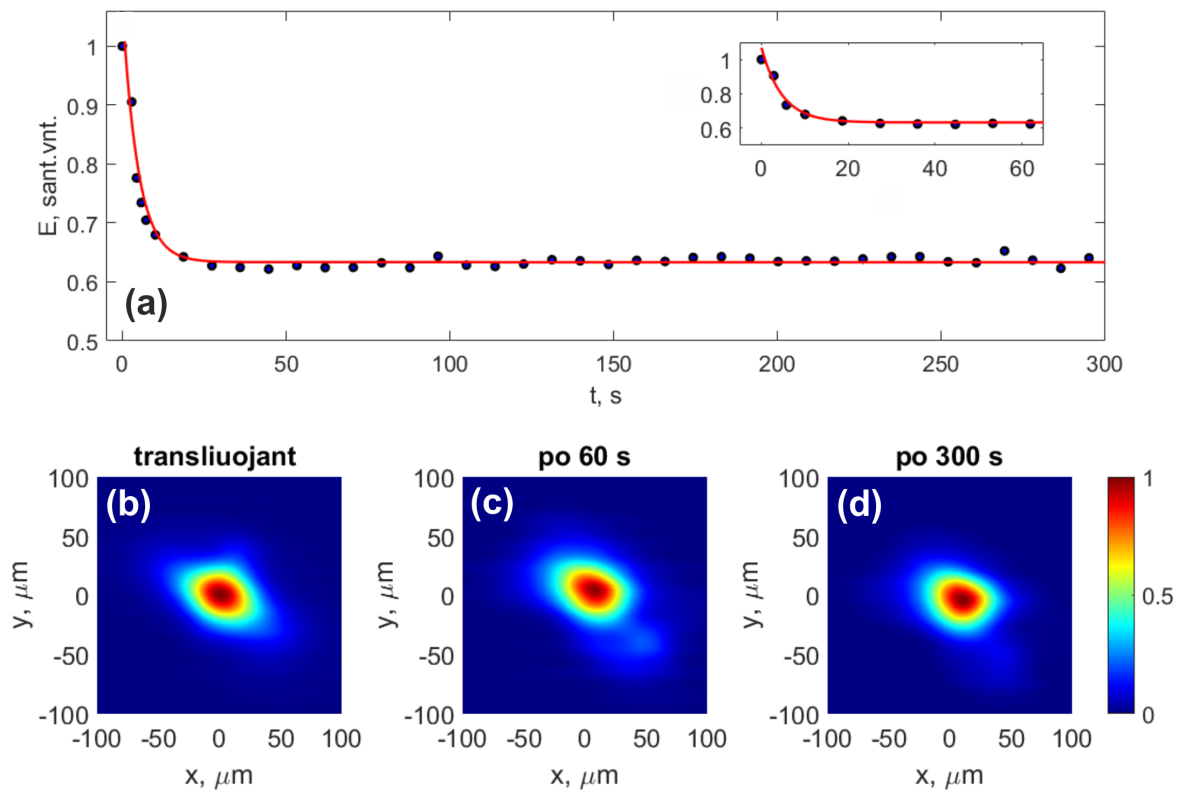


12 pav. KBr kristale generuotų femtosekundinių šviesos gijų normuoti spektrai, gauti prie skirtingų žadinančios spinduliuotės ekspozicijos trukmių: punktyrinė linija žymi superkontinuumo spektrą bandinį transliuojant, juoda linija - po 20 s ekspozicijos, mėlyna - po 200 s, raudona - po 1200 s.

Norint detaliau panagrinėti NaCl ir KBr kristaluose indukuojamų modifikacijų laikinę evoliuciją buvo atlikti ilgalaikiai energijos matavimai, o matuojama buvo kristalus praėjusios spinduliuotės energija. Sunormuoti matavimų rezultatai yra pateikti 13 pav. (a) ir 14 pav. (a). Rezultatai buvo sunormuoti į praėjusios kristalus energijos vertes, gautas, kai bandiniai yra transliuojami. Tai leido įvertinti energijos dinamiką, kuri priklauso tik nuo generuojamų modifikacijų. Pateiktuose grafikuose matavimų duomenys yra pažymėti taškai, o raudona linija vaizduoja dvieksponentinę jų aproksimaciją.

Iš pateiktų NaCl kristalą praėjusios energijos mažėjimo duomenų 13 pav. (a), matyti, kad energija kinta pirmąsias 20 sekundžių, o vėliau išlaiko pastovią vertę. Modifikacijų indukuojami nuostoliai sudaro apie 40 % pradinės energijos vertės. Taip pat matyti, kad dvieksoponentė aproksimacija labai tiksliai atkartoja duomenis. Iš šios aproksimacijos gautos trukmės konstantos, kurių vertės yra 0,53 s ir 5,1 s. Būtų galima teigti, kad NaCl kristale yra indukuojamos dviejų tipų modifikacijos, su skirtingomis susiformavimo trukmėmis. Nebekintančią energijos sritį būtų galima aiškinti pasiekta pusiausvyra tarp modifikacijų generacijos ir jų suirimo/skilimo.

NaCl kristalą praėjusios energijos matavimų rezultatai koreliuoja su 11 pav. pateiktais superkontinuumo spektrų siaurėjimo duomenimis. Dėl modifikacijų sukeltų nuostolių, siaurėja ir superkontinuumo spektro plotis, nes keičiasi pluošto fokusavimosi sąlygos (netiesinio židinio nuotolis, pluošto dėmė), mažėja intensyvumas ir to pasekoje indukuojamas mažesnis fazės moduliavimasis. Nustojus kisti bandinį praėjusiai energijai, superkontinuumo spektras taip pat nustoja siaurėti.

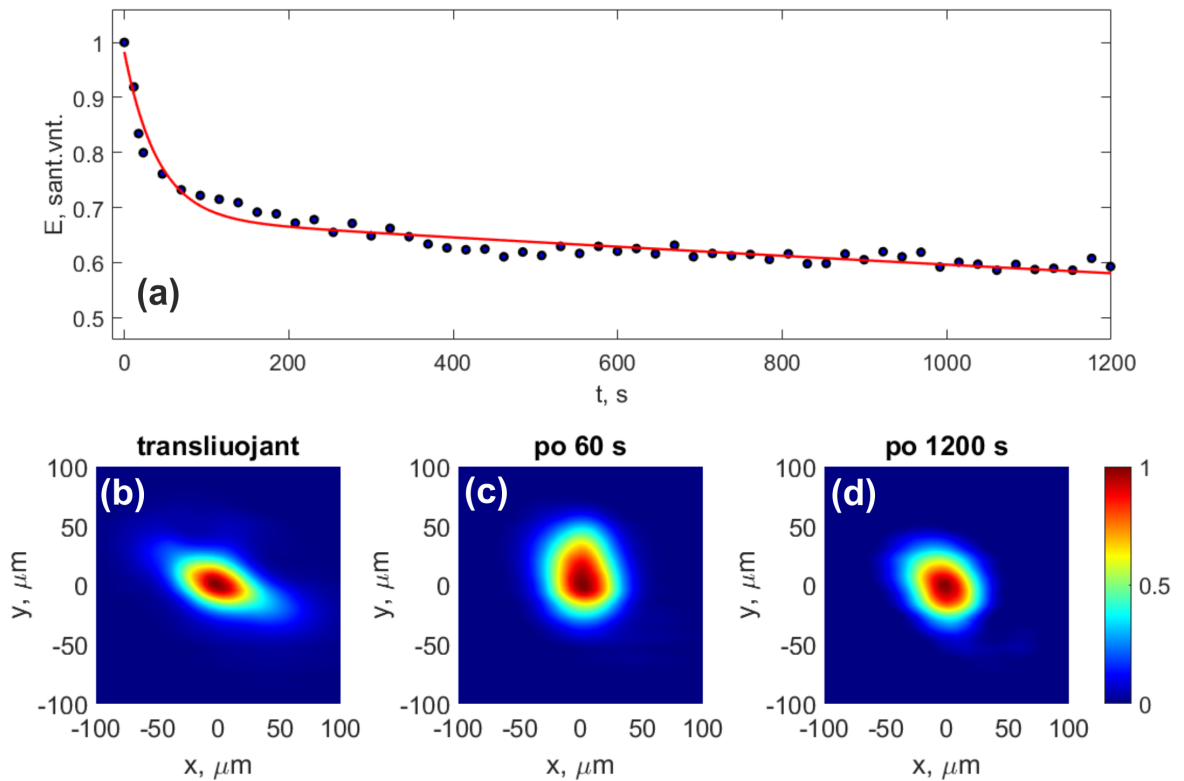


13 pav. (a) praėjusios NaCl kristalą normuotos energijos kitimas laike: taškai žymi eksperimentinius duomenis, raudona linija - dvieksoponentinę aproksimaciją. Femtosekundinių šviesos gijų erdviniai skirstiniai gauti 5,0 mm storio NaCl kristale: (b) transliuojant bandinį, (c) po 60 s spinduliuotės ekspozicijos, (d) po 300 s ekspozicijos.

KBr kristalą praėjusios energijos kitimas laike yra pateiktas 14 pav. (a). Matyti, kad KBr kristalą praėjusios energijos kitimas yra lėtesnis, lyginant su anksčiau nagrinėtais rezultatais NaCl kristale. KBr kristale iš pradžių yra stebimas greitas energijos mažėjimas, kuris tęsiasi maždaug 200 s, vėliau energijos mažėjimas sulėtėja, kol galiausiai ties 800 s praktiškai nebekin-



ta. Šie rezultatai atitinka ir lėtesnį KBr kristale sugeneruoto superkontinuumo spektro pločio siaurėjimą 12 pav. Modifikacijų sukelti nuostoliai KBr kristale, kaip ir NaCl kristale, sudaro apie 40 % pradinės spinduliuotės energijos. Trukmių konstantos, gautos iš dviekspontės aproksimacijos, yra 10,6 s ir 282 s. Šias charakteringąsias trukmes, analogiškai, būtų galima aiškinti skirtingų modifikacijų formavimuisi skirtingais greičiais. Kadangi tiek spektrų siaurėjimo greitis, tiek energijos mažėjimo greitis KBr kristale yra lėtesnis, tai ir modifikacijų formavimosi trukmės yra didesnės, lyginant su gautomis NaCl kristale.



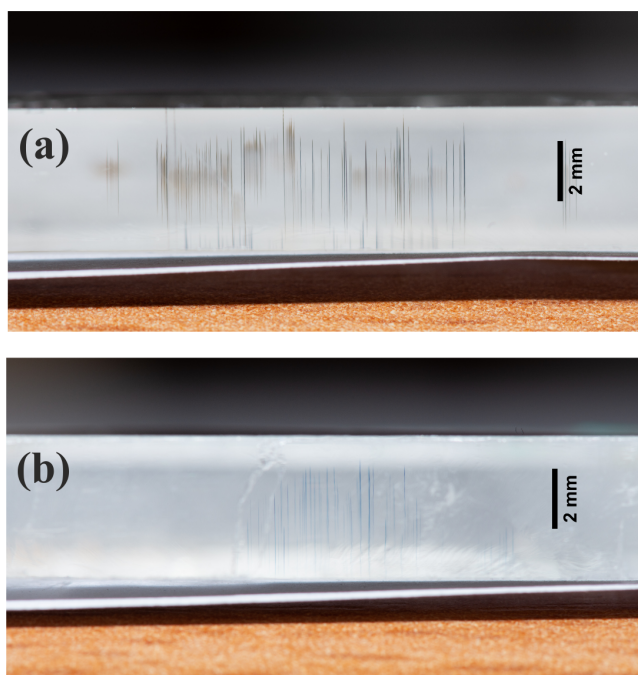
14 pav. (a) praėjusios KBr kristalą normuotos energijos kitimas laike: taškai žymi eksperimentinius rezultatus, raudona linija - dviekspontę aproksimaciją. Femtosekundinių šviesos gijų erdviniai skirstiniai gauti 5,2 mm storio KBr kristale: (b) transliuojant bandinį, (c) po 60 s žadinančios spinduliuotės ekspozicijos, (d) po 1200 s ekspozicijos.

Šviesos gijų erdviniai skirstiniai NaCl kristale yra pateikti 13 pav. (b), (c) ir (d), o KBr kristale 14 pav. (b), (c) ir (d). Nagrinėjant erdvinius skirstinius, kai bandiniai yra transliuojami, galima nustatyti susiformavusių šviesos gijų, kurios nepriklauso nuo modifikacijų, diametrus pusės intensyvumo aukštyje. Transliuojamame NaCl kristale 13 pav. (b) susiformavo 41,88  $\mu\text{m}$  diametro šviesos gija (pusės intensyvumo aukštyje), o KBr kristale 14 pav. (b) susiformavo 41,93  $\mu\text{m}$  diametro šviesos gija (pusės intensyvumo aukštyje). Gijų diametrai kristaluose yra praktiškai identiški, todėl galima teigti, kad ir šviesos gijų formavimosi sąlygos abiejuose kristaluose yra vienodos. Taip pat galima pastebėti bendrą tendenciją - šviesos gijos įgauna eliptišką formą.

13 pav. (c), (d) dalyse yra pateikti šviesos gijų erdviniai skirstiniai po skirtingų ekspozicijos trukmių NaCl kristale. Šviesos gijos diameteras po 60 sekundžių NaCl kristale yra 43,3  $\mu\text{m}$ ,

o po 300 sekundžių -  $41,9 \mu\text{m}$ . 14 pav. (c), (d) dalyse yra pateikti atitinkamai KBr kristale gauti rezultatai. KBr kristale šviesos gijos diametras po 60 sekundžių yra  $55,0 \mu\text{m}$ , o po 1200 sekundžių -  $49,1 \mu\text{m}$ . Tiek NaCl, tiek KBr kristaluose po 60 s ekspozicijos trukmės, pluoštų diametrai yra padidėję, lyginant su diametrais gautais transliuojant bandinius. Po ilgesnės trukmės ekspozicijų (300 s bei 1200 s), matyti, kad diametrai yra nežymiai mažesni, nei diametrai, gauti po 60 s ekspozicijos. Bendrai, šiuos rezultatus galima aiškinti, kaip atsiradusius dėl modifikacijų sukeliama tiesinių ir netiesinių nuostolių, dėl kurių keičiasi pluošto sklaidimo sąlygos, ko pasekoje pakinta ir šviesos gijos erdvinis skirstinys.

Po eksperimentinių tyrimų apžiūrėjus bandinius buvo pastebėti kristalų tūryje susiformavę skirtingų spalvų kanalai. Gauti rezultatai patvirtino, kad NaCl ir KBr sąveikos su kaupinančia spinduliuote metu pasireiškia pačios medžiagos modifikacija, kuri atitinkamai sukelia ir pačios spinduliuotės parametru kitimą. Besiformuojantys defektai sukelia spinduliuotės spektrinių, energetinių ir erdvinų charakteristikų kitimą, o pasiekus pusiausvyrą tarp defektų formavimosi bei skilimo, nusistovi ir šviesos gijos charakteristikos. Kristaluose susiformavusių defektų vaizdai statmena pluošto sklaidimo kryptimi yra pateikti 15 pav.



15 pav. Spalviniai centrai: (a) NaCl kristale, (b) KBr kristale. Priekiniai kristalų paviršiai, žadinančios spinduliuotės atžvilgiu, nukreipti į viršų.

Defektai susiformavo išilgai šviesos gijų kanalų, per visą gijos ilgį. NaCl kristale susidarė rusvos spalvos 15 pav. (a), o KBr - melsvos spalvos kanalai 15 pav. (b). Susiformavusių defektų spalvos atitinka NaCl ir KBr spalvinių centrų, dar vadinamų F centrais, sugertis regimojoje spektro srityje (žiūr. 5 pav. ir 6 pav.). NaCl spalvinių centrų sugerties smailė yra ties  $460 \text{ nm}$ , o KBr ties  $625 \text{ nm}$ . Kartu su spalviniais centrais formuojasi ir kiti defektai. M centrai, tai gretimose gardelės mazguose esantys F centrai, kurių sugertis, F centrų sugerties atžvilgiu, yra pasislinkusi į ilgabangę sritį. M centrų sugerties smailė NaCl kristale yra ties  $510 \text{ nm}$ , o

KBr kristale ties 920 nm. Remiantis trukmių konstantomis gautomis iš dvieksoponentinių ap-  
roksimacijų, būtų galima teigti, kad NaCl ir KBr kristaluose, spalviniai centrai yra generuojami  
skirtingais greičiais - F susiformuojasi greičiau nei M centrai. NaCl kristale gautos relaksavimo  
trukmės, kurių vertės 0,53 s ir 5,1 s. Tuo tarpu KBr kristale gautos 10,6 s ir 282 s eksponentinės  
relaksavimo konstantos.

Apibendrinant, NaCl ir KBr kristalai turi ypač platų skaidrumo langą, kuris NaCl kri-  
stale yra 0,17 – 18,0  $\mu\text{m}$  bangos ilgių srityje, o KBr kristale yra 0,2 – 30,6  $\mu\text{m}$  srityje. Šie  
kristalai pasižymi ir ypač plačiomis draustinės energijos juostomis - NaCl kristale 9 eV, KBr  
kristale 7,6 eV. Tačiau sąveikos su intensyvia infraraudonosios srities spinduliuote metu, be  
femtosekundinių šviesos gijų generacijos, NaCl ir KBr kristaluose yra generuojami ir defektai -  
F ir M spalviniai centrai. Šie centrai turi savitą sugertį bei savitą energijos lygmenų struktū-  
rą. Medžiagos draustinės energijos juostoje spalviniai centrai indukuoja papildomus energijos  
lygmenis. Tokiu atveju, atstojamasis draustinės energijos tarpas sumažėja ir pradeda vyrėti  
mažesnės eilės daugiafotonė sugertis, kuri atitinkamai sukelia anksčiau pasiekiamą intensyvumo  
ribojimą, ko pasekoje generuojamas ir siauresnis superkontinuumo spektras. Dėl šių priežasčių,  
NaCl ir KBr kristaluose generuojamų femtosekundinių šviesos gijų energijos staigiai mažėja, o  
superkontinuumo spektrai bėgant laikui siaurėjo. Tačiau pasiekus pusiausvyrą tarp spalvinių  
centrų generacijos ir jų skilimo, buvo gauti nebekintančios energijos ir spektrų pločio rezultatai.

## 5 Išvados ir rezultatai

1. NaCl ir KBr kristaluose dėl plataus draustinės energijos tarpo, žadinant 72 fs trukmės ir 3,6  $\mu\text{m}$  bangos ilgio impulsais, yra generuojama labai plataus spektro superkontinuumo spinduliuotė. NaCl kristale generuojamas superkontinuumas 0,72 – 5,38  $\mu\text{m}$  bangos ilgių srityje, kurio plotis atitinka 2,9 optinės oktavos, o KBr kristale 0,85 – 5,31  $\mu\text{m}$ , kurio plotis atitinka 2,6 optinės oktavos.
2. NaCl ir KBr kristaluose besiformuojantys defektai - spalviniai centrai, sąlygoja femto-sekundinių šviesos gijų spektrinių, erdvinių ir energetinių parametrų greitą degradaciją laike. Defektai medžiagos draustinės energijos juostoje indukuoja papildomus energijos lygmenis, dėl kurių sumažėja daugiafotonės sugerties eilė, anksčiau pasiekiamas intensyvumo ribojimas ir generuojamas siauresnis superkontinuumo spektras. Norint užtikrinti atsikartojančias šviesos gijos charakteristikas bei superkontinuumo spektro plotį būtina bandinius transliuoti.
3. Energijos mažėjimo dvieksponentinės aproksimacijos relaksavimo trukmės parodo, kad NaCl ir KBr kristaluose susidaro dviejų tipų defektai - F ir M spalviniai centrai, kurių formavimosi greičiai yra skirtingi.

## 6 Santrauka

Sigita Balandytė

### FEMTOSEKUNDINIŲ ŠVIESOS GIJŲ ŽADINIMAS IR SUPERKONTINUUMO GENERACIJA ŠARMINIŲ METALŲ HALIDŲ KRISTALUOSE

Superkontinuumas vidurinėje infraraudonojoje spektro srityje turi platų pritaikymą molekulinėje spektroskopijoje, parametriniame šviesos stiprinime, keleto optinių ciklų trukmės impulsų generavime. Generuojant femtosekundines šviesos gijas medžiagose, pasižyminčiose plačia draustinės energijos juosta, gaunama superkontinuumo spinduliuotė taip pat pasižymi ypač plačiu spektru. Kristalai, turintys vieną didžiausių draustinės energijos tarpų bei pasižymintys ypač plačiu skaidrumo langu yra šarminių metalų halidai, tokie kaip NaCl bei KBr monokristalinės medžiagos. NaCl skaidrumo langas apima 0,17 – 18,0  $\mu\text{m}$ , o KBr 0,20 – 30,6  $\mu\text{m}$  spektrinę sritį. Draustinės energijos tarpo vertė NaCl kristale yra 9,0 eV, o KBr kristale - 7,6 eV. Todėl šio *darbo tikslas* - eksperimentiškai ištirti superkontinuumo generacijos dėsningumus šarminių metalų halidų kristaluose (NaCl ir KBr), žadinant femtosekundiniais impulsais, kurių nešantysis bangos ilgis yra 3,6  $\mu\text{m}$ .

NaCl ir KBr kristaluose šviesos gijos buvo žadinamos 3,6  $\mu\text{m}$  bangos ilgio ir 72 fs trukmės impulsais. Gauti rezultatai pademonstravo labai plataus spektro superkontinuumo spinduliuotę. NaCl kristale buvo sugeneruotas superkontinuumas 0,72 – 5,38  $\mu\text{m}$  bangos ilgių srityje, kurio plotis atitinka 2,9 optinės oktavos. KBr kristale sugeneruoto superkontinuumo spektro plotis buvo kiek mažesnis ir apėmė 0,85 – 5,31  $\mu\text{m}$  bangos ilgių sritį, kuri atitinka 2,6 optinės oktavos  $10^{-4}$  santykinio intensyvumo lygyje.

Kartu su besiformuojančiomis šviesos gijomis, NaCl ir KBr kristaluose formavosi ir defektai - F ir M spalviniai centrai. Spalviniai centrai kristaluose formavosi skirtingais greičiais, F centrų generacija spartesnė M centrų formavimosi atžvilgiu. Femtosekundinės šviesos gijos tūryje indukuoti defektai, sąlygojo šviesos gijos spektrinių, erdvinių ir energetinių parametru greitą degradaciją laike. Norint užtikrinti atsikartojančias šviesos gijos charakteristikas bei superkontinuumo spektro plotį būtina NaCl ir KBr bandinius transliuoti.

## 7 Summary

Sigita Balandytė

### FEMTOSECOND FILAMENTATION AND SUPERCONTINUUM GENERATION IN ALKALI METAL HALIDE CRYSTALS

Supercontinuum generation in the mid-infrared spectral range is desired for various applications in molecular spectroscopy, parametrical light amplification, or in generating few-optical-cycle pulses. Supercontinuum radiation produced by femtosecond light filamentation in materials that possess wide energy band-gap characteristics covers the broadest spectral range. Among crystals having some of the highest energy band-gap and widest transmission window properties are alkali metal halide crystals such as NaCl and KBr monocrystalline materials. NaCl and KBr transmission range encompasses  $0,17 - 18,0 \mu\text{m}$  and  $0,20 - 30,6 \mu\text{m}$  wavelength range respectively. Furthermore, energy band-gap value in NaCl crystals equals  $9,0 \text{ eV}$ , while in KBr  $7,6 \text{ eV}$ . Subsequently *the purpose of this work* is to experimentally investigate the features of white supercontinuum generation in alkali metal halide crystals (NaCl and KBr) by excitation with femtosecond pulses with a carrier wavelength of  $3,6 \mu\text{m}$ .

Femtosecond filamentation in NaCl and KBr crystals was generated by  $3,6 \mu\text{m}$  wavelength and  $72 \text{ fs}$  duration pulses. Results showed a very broad spectrum of supercontinuum radiation. Supercontinuum spectrum generated in NaCl crystal, covers wavelength range of  $0,72 - 5,38 \mu\text{m}$  that corresponds to  $2,9$  optical octave. In KBr crystal supercontinuum spectrum in the  $0,85 - 5,31 \mu\text{m}$  range was measured that corresponds to  $2,6$  optical octave (at the  $10^{-4}$  intensity level).

However, together with light filamentation, generation of defects, was observed. These defects are called F and M color centers and formed in different time constants. F centers forms faster than M centers. Generation of color centers results in rapid degradation of spectral, spatial and energy parameters of femtosecond light filaments in time. Therefore, in order to ensure the reproducible characteristics of the femtosecond light filament and the width of the supercontinuum spectrum, it is necessary to change the transverse position of samples constantly.

## Literatūros sąrašas

- [1] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich, Generation of optical harmonics, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118–119 (1961).
- [2] A. Dubietis, *Netiesinė optika*, (Vilniaus universiteto leidykla, 2011).
- [3] A. Dubietis, G. Tamošauskas, R. Šuminas, V. Jukna, A. Couairon, Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media, *Lith. J. Phys.* **57**(5), 113–157 (2017).
- [4] F. Silva, D. Austin, A. Thai, M. Baudisch, M. Hemmer, D. Faccio, A. Couairon, J. Biegert, Multi-octave supercontinuum generation from mid-infrared filamentation in a bulk crystal, *Nat. Commun.* **3**, 807 (2012).
- [5] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, G. Mourou, Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air, *Opt. Lett.* **20**, 73–75 (1995).
- [6] M. J. Weber, *Handbook of optical materials* (CRC Press, 2003).
- [7] A. Dormidonov, V. Kompanets, S. Chekalin, V. Kandidov, Giantly blue-shifted visible light in femtosecond mid-ir filament in fluorides, *Optics Express* **23**(22), 29202–29210 (2015).
- [8] S. Frolov, V. Trunov, V. Leshchenko, E. Pstryakov, Multi-octave supercontinuum generation with IR radiation filamentation in transparent solid-state media, *Appl. Phys. B* **122**, 124 (2016).
- [9] A. P. Stabinis, G. Valiulis, *Ultratrumpųjų šviesos impulsų netiesinė optika*, (TEV leidykla, 2008).
- [10] A. Brodeur, S. Chin, Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 637–650 (1999).
- [11] A. Couairon, A. Mysyrowicz, Femtosecond filamentation in transparent media, *Phys. Rep.* **441**, 47–190 (2007).
- [12] A. Dubietis, E. Gaižauskas, G. Tamošauskas, P. D. Trapani, Light filaments without self-channeling, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 253903 (2004).
- [13] W. L. Smith, P. Liu, N. Bloembergen, Superbroadening in H<sub>2</sub>O and D<sub>2</sub>O by self-focused picosecond pulses from a YALG: Nd laser, *Phys. Rev. A*, **15**(6), 2396–2403 (1977).
- [14] P. Corkum, C. Rolland, T. Srinivasan-Rao, Supercontinuum generation in gases, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2268–2272 (1986).
- [15] F. Ilkov, L. S. Ilkova, S. Chin, Supercontinuum generation versus optical breakdown in CO<sub>2</sub> gas, *Opt. Lett.* **18**(9), 681–683 (1993).

- [16] A. L. Gaeta, Catastrophic collapse of ultrashort pulses, *Phys. Rev. Lett.* **84**(16), 3582–3585 (2000).
- [17] S. Skupin, L. Bergé, Self-guiding of femtosecond light pulses in condensed media: Plasma generation versus chromatic dispersion, *Physica D* **220**(1), 14–30 (2006).
- [18] A. Brodeur, S. Chin, Band-gap dependence of the ultrafast white-light continuum, *Phys. Rev. Lett.* **80**(20), 4406–4409 (1998).
- [19] P. Chernev, V. Petrov, Self-focusing of light pulses in the presence of normal group-velocity dispersion, *Opt. Lett.* **17**(3), 172–174 (1992).
- [20] J. E. Rothenberg, Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media, *Opt. Lett.* **17**(8), 583–585 (1992).
- [21] J. E. Rothenberg, Space–time focusing: breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of femtosecond pulses, *Opt. Lett.* **17**(19), 1340–1342 (1992).
- [22] S. A. Diddams, H. K. Eaton, A. A. Zozulya, T. S. Clement, Amplitude and phase measurements of femtosecond pulse splitting in nonlinear dispersive media, *Opt. Lett.* **23**(5), 379–381 (1998).
- [23] J. K. Ranka, R. W. Schirmer, A. L. Gaeta, Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media, *Phys. Rev. Lett.* **77**(18), 3783–3786 (1996).
- [24] F. DeMartini, C. Townes, T. Gustafson, P. Kelley, Self-steepening of light pulses, *Phys. Rev.* **164**(2), 312–323 (1967).
- [25] S. Mao, F. Quéré, S. Guizard, X. Mao, R. Russo, G. Petite, P. Martin, Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics, *Appl. Phys. A* **79**(7), 1695–1709 (2004).
- [26] R. Haglund Jr, N. Itoh, *Laser Ablation: Principles and Applications ed JC Miller* (Springer-Verlag, Berlin, 1994).
- [27] K. Song, R. T. Williams, *Self-trapped excitons: Alkali halides* (Springer, 1993).
- [28] J. Dickinson, S. Orlando, S. Avanesyan, S. Langford, Color center formation in soda lime glass and NaCl single crystals with femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. A* **79**(4-6), 859–864 (2004).
- [29] J. Dickinson, S. Langford, S. Avanesyan, S. Orlando, Color center formation in KCl and KBr single crystals with femtosecond laser pulses, *Appl. Surf. Sci.* **253**(19), 7874–7878 (2007).
- [30] A. B. Ellis, et al., *Teaching General Chemistry: A Materials Science Companion.* (ERIC, 1993).



- [31] W. J. Tropf, M. E. Thomas, T. J. Harris, Properties of crystals and glasses, Handbook of optics **2**, 33–61 (1995).
- [32] S. Baldochi, I. Ranieri, *Encyclopedia of Materials: Alkali halide crystals growth* (Science and Technology, 2001).
- [33] D. E. Zelmon, D. L. Small, R. Page, Refractive-index measurements of undoped yttrium aluminum garnet from 0.4 to 5.0  $\mu\text{m}$ , Appl. Opt. **37**(21), 4933–4935 (1998).
- [34] H. Li, Refractive index of alkali halides and its wavelength and temperature derivatives, J. Phys. Chem Ref. Data **5**(2), 329–528 (1976).
- [35] S. Frolov, V. Trunov, Features of infrared ultrabroadband supercontinuum generation under filamentation of femtosecond laser pulses in solid media with various bandgaps, Proc. SPIE **9810**, 98100M (2015).
- [36] M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, Dispersion of bound electron nonlinear refraction in solids, IEEE J. Quantum Electron. **27**(6), 1296–1309 (1991).
- [37] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, M. Sheik-Bahae, Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and  $n_2$  in wide bandgap solids, IEEE J. Quantum Electron. **32**(8), 1324–1333 (1996).

BALANDYTĖ, Sigita. *Femtosekundinių šviesos gijų žadinimas ir superkontinuumo generacija šarminių metalų halidų kristaluose*: Lazerinės fizikos ir optinių technologijų magistrantūros studijų programos baigiamasis darbas. Vad. prof. habil. dr. Audrius Dubietis. Vilnius: Vilniaus universitetas, Fizikos fakultetas, 2019, 32 p.

Šiame darbe buvo tiriami femtosekundinių šviesos gijų ir superkontinuumo generacijos dėsningumai šarminių metalų halidų kristaluose. Aptariami NaCl ir KBr kristaluose atlikti eksperimentai bei gauti energijos mažėjimo, spektrų siaurėjimo bei erdviųjų skirstinių kitimo rezultatai.