

Vilniaus universitetas  
Fizikos fakultetas  
Kvantinės elektronikos katedra

Milda Veličkė

**NELYGINĖMIS HARMONIKOMIS PRATURTINTO  
SUPERKONTINUUMO GENERACIJA  $\text{CaF}_2$  KRISTALE**

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinės fizikos ir optinių technologijų studijų programa

Studentas	Milda Veličkė
Darbo vadovas	Prof. habil. dr. Audrius Dubietis
Recenzentas	Doc. dr. Vygandas Jarutis
Katedros vedėjas	Prof. habil. dr. Valdas Sirutkaitis

Vilnius 2016

# Turinys

<b>I ĮVADAS</b> .....	2
<b>II LITERATŪROS APŽVALGA</b> .....	4
<b>2.1 Šviesos saviveikos reiškiniai</b> .....	4
2.1.1 Šviesos impulsų fazės moduliavimasis .....	4
2.1.2 Šviesos pluoštų fokusavimasis, erdvėlaikinis kolapsas .....	6
2.1.3 Kryžminė fazės moduliacija ir keturbangis maišymas .....	8
2.1.4 Daugiafotonė sugertis ir laisvųjų elektronų plazmos formavimasis .....	9
2.1.5 Optinis pažeidimas .....	12
<b>2.2 Superkontinuumo generacija normaliosios dispersijos srityje</b> .....	14
<b>2.3 Superkontinuumo generacija anomaliosios dispersijos srityje</b> .....	17
<b>2.4 Nelyginių harmonikų generacija didelio fazinių ir grupinių greičių nederinimo atveju</b> .....	20
<b>2.5 Superkontinuumo ir nelyginių harmonikų generacija (skaitm. modeliavimas)</b> ....	22
<b>III DARBO METODIKA</b> .....	25
3.1 Eksperimento schema .....	25
<b>IV PAGRINDINIAI REZULTATAI IR JŲ APTARIMAS</b> .....	27
<b>V IŠVADOS</b> .....	34
<b>VI LITERATŪROS SĄRAŠAS</b> .....	35
<b>VII SANTRAUKA</b> .....	39
<b>VIII SUMMARY</b> .....	40

## I. ĮVADAS

Skaidrioje dielektrinėje terpėje sklindant galingiems ultratrumpiesiems lazerio impulsams, dėl įvairių netiesinių efektų tarpusavio sąveikos, pradinio impulso forma smarkiai pasikeičia. Impulso spektro transformacija – išplitimas kelis šimtus kartų – pasireiškia kaip unikalus netiesinės optikos reiškinys – baltos šviesos kontinuumo, dar vadinamo superkontinuumu, generacija. Pirmą kartą superkontinuumas buvo sužadintas dar 1970 m., mokslininkų R. Alfano ir S. Shapiro, kurie įvairiuose stiklo bandiniuose stebėjo galingų pikosekundinių impulsų spektro plitimą [1]. Jų stebėtas superkontinuumas išplito į regimąją ir artimąją infraraudonąją sritis. Pirmasis femtosekundinis superkontinuumas, nepažeidžiant optinės terpės, sugeneruotas tik praeito amžiaus devintojo dešimtmečio pradžioje, o jo išplitimas apėmė ir ultravioletinę spektro sritį [2].

Superkontinuumui generuoti tinka įvairios skaidrios medžiagos dielektrinės – kristalai, taip pat dujos ir skysčiai, tokie kaip vanduo. Nors terpė nėra ribojama fazinės būsenos, yra kitų kriterijų, kurie lemia, ar pasirinktoje medžiagoje pavyks sužadinti superkontinuumą. Superkontinuumo generaciją vienareikšmiškai lemia lazerio fotono energijos ir medžiagos, į kuria sklinda impulsai, draustinės energijos juostos pločio  $E_g$  santykis. Iš tiesų, tai išreiškiama daugiafotonės sugerties eile  $K$ . Eksperimentiškai pastebėta, kad jei  $K < 3$ , superkontinuumas nėra sužadinamas [3].

Šiais laikais superkontinuumo generacija jau nėra vien fundamentinis eksperimentas ir yra neabejojama jo potencialu, pritaikant jį įvairiose fizikos, ir ne tik, srityse. Superkontinuumo spinduliuotė pasižymi aukštu erdviniu koherentiškumu, tuo pat metu apimdama platų bangos ilgių spektrą. Pagrindinis bruožas, lemiantis įvairias jo panaudojimo sritis, yra galimybė derinti ar kitaip keisti jo spektrines charakteristikas. Spektriškai filtruotas superkontinuumas gali būti siauro spektro, bet plačiai derinamo dažnio šviesos šaltiniu. Dėl savo spektrinių ypatumų taip pat pritaikomas biologinių audinių atvaizdavime aukštos spektrinės raiškos sąlygomis. Superkontinuumas sėkmingai naudojamas ultrasparčiojoje spektroskopijoje, o taip pat netgi tiriant ne Saulės sistemos planetų struktūrinius kompozitus [4]. Šviesolaidžiuose generuojamas superkontinuumas komercinėje nišoje pritaikomas praktiškai visur, kur anksčiau buvo naudoti nekoherentiniai baltos šviesos lempų ir LED šaltiniai.

Kaip taisyklė, lazeriniai šaltiniai, kurių nešantysis bangos ilgis yra vidurinėje infraraudojoje spektro srityje, veikia optinio parametrinio stiprinimo pagrindu, kadangi jokie femtosekundiniai lazeriai natūraliai nespinduliuoja tokiaame spektriniame diapazone. Artimosios-vidurinės infraraudonosios spektro srities lazerinių šaltinių generuojamas didesnis nei  $1,5 \mu\text{m}$  bangos ilgis atsiduria tokių medžiagų kaip lydytas kvarcas,  $\text{CaF}_2$  ar YAG anomalios dispersijos srityje. Tokiu atveju, impulso netiesinis sklidimas lemia jo laikinę spūdą, skirtingai nuo normaliosios dispersijos srityje vykstančio impulso skilimo. Artimojoje-vidurinėje infraraudojoje spektro srityje veikiančių lazerinių šaltinių tobulėjimas taip pat lėmė šviesos gijų skaidriose kietakūnėse terpėse tyrimų vystymąsi. Pastaruoju metu atlikti tyrimai atskleidė šviesos gijų formavimosi dėsningumus anomalios grupinių greičių dispersijos srityje [5-7], o visai neseniai sugeneruotas 5 oktavas apimantis superkontinuumas jį žadinant ore  $3,9 \mu\text{m}$  lazerio spinduliuote [8-9]. Tačiau atvejis, kai šviesos-medžiagos sąveika anomalios grupinių greičių dispersijos srityje lemia tokį smarkų spektrinį išplitimą žadinant kietakūnę terpę, dar nėra užregistruotas. Įprastai šioje srityje, spektro plėtra vyksta dėl anomalios grupinių greičių dispersijos bei fazinės moduliacijos sąveikos, tačiau skaitmeninis modeliavimas atskleidė, kad šiuo atveju pagrindinį vaidmenį atlieka susiformavusios plazmos lemiama impulso laikinė spūda, o taip pat kelių eilių nelyginių harmonikų, kurių dažniai patenka į regimąją-ultravioletinę spektro sritį, generacija. Šio darbo tikslas yra ištirti femtosekundiniais lazerio impulsais žadinamo superkontinuumo spektro plėtros ir generacijos dėsningumus  $\text{CaF}_2$  kristale anomalios grupinių greičių dispersijos srityje, bei surasti sąlygas superkontinuumo generavimui ultravioletinėje - vidurinėje infraraudojoje spektro srityje optiškai nepažeidžiant netiesinės terpės.

## II. LITERATŪROS APŽVALGA

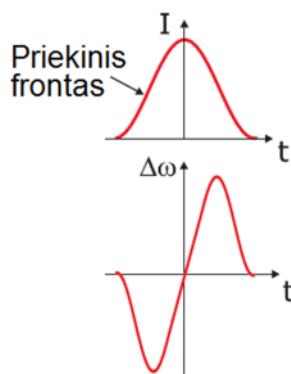
### 2.1 Šviesos saviveikos reiškiniai

#### 2.1.1 Šviesos impulsų fazės moduliavimasis

Kai skaidrioje terpėje sklinda intensyvus ultratrumpasis lazerio impulsas, jo spektras smarkiai išplinta ir apima platų diapazoną – regimąjį, artimąjį ir vidurinį infraraudonąjį. Superkontinuumas - tai erdvėje ir laike koherentinė labai plataus spektro spinduliuotė, kuri sklinda šviesos pluošto ir impulso pavidalu. Superkontinuumą žadinant įvairiose skaidriose kietakūnėse terpėse kaip YAG, vanadato, fluorido ar safyro kristalai arba lydytas kvarcas, sugeneruoto superkontinuumo charakteristikos:

1. Spektro plotis tiesiogiai proporcingas medžiagos draustinės energijos juostos pločiui;
2. Spektro forma glotni su intensyvia smaile ties žadinačiojo impulso bangos ilgiu;
3. Spektrinis išplitimas beveik nepriklauso nuo žadinančiojo impulso trukmės;
4. Spektro plotis ir forma smarkiai priklauso nuo žadinančio impulso bangos ilgio ir medžiagos dispersinių savybių;

Spektrinis išplitimas paprastai yra impulso fazės moduliavimosi dėl Kerr'o efekto rezultatas. Intensyvumo kitimas laike lemia fazės pokytį, o laikinė fazės išvestinė duoda dažnį, todėl impulso fazės moduliacija lemia dažnio moduliaciją. Normaliosios grupinių greičių dispersijos atveju, sklindant impulsui priekinis jo frontas (-t) įgauna neigiamą dažnio poslinkį ir tampa raudonesnis, o galinis frontas (+t), įgaudamas teigiamą dažnio poslinkį, tampa mėlynesnis. Toks šviesos impulsas yra vadinamas faziškai moduluotu.



1. pav. Šviesos impulso dažnio moduliacija. [10]

Spektre atsiranda naujų dažnio komponentų ir jis išplinta kelis šimtus, o ypatingais atvejais, net kelis tūkstančius kartų. Tiesa, superkontinuumo spektro formai ir ypatumams paaiškinti vien impulso fazės moduliavimosi teorijos nepakanka. Didelę itaką superkontinuumo generacijai turi pluošto fokusavimosi reiškinys - erdvinis fazės moduliavimosi analogas. Impulsinio pluošto transformacija vyksta dėl netiesinės lūžio rodiklio priklausomybės nuo intensyvumo:

$$n(r, t) = n_0 + n_2 I(r, t), \quad (1)$$

čia  $n_0$  - tiesinis lūžio rodiklis,  $n_2$  - netiesinis lūžio rodiklis;  $I(r, t)$  – impulsinio pluošto intensyvumo skirstinys plokštumoje, statmenoje sklidimo kryptčiai. Dėl pluošto fokusavimosi lazerio spinduliuotės energija yra sukonzentruojama arti sklidimo ašies – intensyvumas išauga ir tai prisideda prie spektro plitimo. Yra nustatyta, kad slenkstinė galia superkontinuumo generacijai  $P_{SK}$  beveik sutampa su apskaičiuota pluošto fokusavimosi kritine galia:

$$P_{KR} = \frac{3.77 \lambda^2}{8n_0 n_2}, \quad (2)$$

čia  $\lambda$  – žadinančios spinduliuotės bangos ilgis [3]. Viršijus kritinę galią, intensyvumo sukeltas lūžio rodiklio padidėjimas sukelia netiesinį bangos fronto išlinkimą. Šis atsveria difrakcinę skėstį, bei lemia greit besivystantį pluošto fokusavimąsi. Galiausiai, besifokusuojančio pluošto smailinis intensyvumas tampa pakankamai didelis, kad pasireikštų kiti procesai, tokie kaip netiesinė sugertis ar plazmos formavimasis.

Faziškai moduluoto impulso spektras nešančiojo dažnio atžvilgiu tolygiai plinta į abi puses – raudonąją ir mėlynąją. Faziškai moduluoto impulso spektre atsiranda mušimų (osciliacijų), kurie kyla iš to, kad fazės pokytis yra simetrinis laiko atžvilgiu ir gerai atkartoja impulso laikinę gaubtinę. Tai reiškia, kad kiekvienam dažnio pokyčio kreivės taškui egzistuoja kitas taškas, kuris indukuos tą patį dažnį, tik skirtingos fazės. Taip atsiranda dvi to paties dažnio bangos, kurios interferuoja, o jų interferencijos rezultatas priklausys nuo to, ar fazių skirtumas tenkins maksimumo ar minimumo sąlygą.

Tačiau superkontinuumo spektras retai kada plinta simetriškai į abi puses. Spektro formos asimetrija tampa labiau išreikšta įskaičius nevienodą impulso frontų statėjimą. Yra du asimetrinio spektro išplitimo šaltiniai. Vienas jų susijęs su grupinių greičių dispersija, o kitas yra impulso frontų statėjimas, pasireiškiantis tuo, kad impulso smailė keliauja lėčiau, nei priekinis ir galinis frontai.

Superkontinuumo generaciją lemia daugelis netiesinės optikos reiškinių, kurie pasireiškia vienu metu, kai spinduliuotės intensyvumas yra pakankamai didelis. Tai ne tik jau minėti impulso fazės moduliavimasis ir erdvėlaikinis fokusavimasis, o taip pat tokie reiškiniai kaip keturbangis dažnių maišymas, laikinis impulsų skilimas ar spūda. O pastebėjimas, kad superkontinuumo spektrinis išplitimas didėja didėjant medžiagos draustinės energijos juostos pločiui, prieštarauja fazės moduliavimosi Kerr'o terpėje mechanizmui, kuris anksčiau buvo laikomas pagrindiniu, atsakingu už superkontinuumo generaciją [11].

Taigi, superkontinuumo aiškinimas nėra trivialus ir netgi šiais laikais įvairūs šaltiniai pateikia skirtingas dominuojančių mechanizmų, atsakingų už superkontinuumo generaciją, teorijas. Vienas iš siūlomų mechanizmų yra fazės moduliavimasis, tuo pat metu vykstant daugiafotonei sugerčiai - dėl jos vyksta laisvųjų elektronų generacija, kuri stabdo tolesnį pluošto fokusavimąsi medžiagoje.

## 2.1.2 Šviesos pluoštų fokusavimasis, erdvėlaikinis kolapsas

Netiesinėje optikoje šviesos pluošto kolapsas (smarkus pluošto skersinių matmenų susitraukimas) pasireiškia kaip šviesos savaimis fokusavimasis jai sklindant skaidrioje terpėje. Kaip jau minėta, sklindant intensyviai ultratrumpajam impulsui, dėl šviesos pluošto fokusavimosi vyksta intensyvumo augimas. Normaliosios grupinių greičių dispersijos srityje, dėl fazės moduliavimosi, dispersijos, daugiafotonės sugerties ir impulso frontų statėjimo, netiesiniame židinyje, impulsas suskyla į du subimpulsus, kurie turi skirtingus nešančiuosius dažnius. Todėl jie juda skirtingais grupiniais greičiais ir tolsta vienas nuo kito. Tai yra superkontinuumo generacijos pradžia.

Taigi, daugybė reiškinių siejasi su šviesos pluošto kolapsu – impulso plyšimas, šviesos gijų formavimasis, smūginių bangų susidarymas, savipanašus kolapsas ir t.t. Nors kolapsas yra iš daugelio skirtingų netiesinių lygčių išplaukiantis reiškinys (gaunamas ne tik netiesinėje optikoje, bet ir plazmos fizikoje, hidrodinamikoje, tiriant Boze-Einšteino kondensatus), tačiau jas visas vienija universalūs su kolapsu susiję bruožai. Šviesos-medžiagos sąveika skaidrioje dielektrinėse terpėse (tokiose kaip oras, vanduo, įvairūs kristalai) yra nerezonansinės prigimties. Dėl šios priežasties ji yra gerai modeliuojama netiesinėmis Šriodingerio tipo lygtimis, plačiame šviesos lauko stiprio diapazone.

Fokusavimasis buvo pradėtas išsamiai nagrinėti gana greitai po lazerinio šaltinio sukūrimo, pastebėjus, kad šviesos pluoštas gali savaime fokusuotis, kai jo galia viršija tam tikrą kritinę vertę ( $P_{KR}$ ) [12-14]. Dauguma atvejų, fokusavimasis ir yra lemiamas faktorius apsprendžiantis maksimalią galią, kurią įmanoma perduoti medžiaga.

Tiriant fokusavimąsi buvo pastebėtas savipanašaus kolapso (*self-similar collapse*) reiškinys. Jis vyksta, kai sklindantis pluoštas išlaiko tą patį profilį, bet nėra pastovus ta prasme, kad vyksta pluošto matmenų mažėjimas didėjant smailiniam intensyvumui tol, kol pats pluoštas visiškai kolapsuoja. Normaliosios dispersijos srityje, kolapso dinamika labai panaši ir kietakūnėse terpėse ir skysčiuose, tačiau dujose ji kitokia. Skirtumas atsiranda pirmiausia dėl to, kad kietakūnėse medžiagose dispersiniai efektai bei griūtinė jonizacija, lemianti besiformuojančios plazmos tankį, daro daug didesnę įtaką negu dujose. Atliekant teorinį modeliavimą buvo nustatyta, kad tokia hipotezė yra teisinga ir kad įvairių formų pradinis pluoštas kolapsuodamas evoliucionuoja į tą patį profilį, nepaisant to, kokia buvo jo pradinė forma [15]. O eksperimentiškai ir teoriškai parodyta, kad Gauso pluoštas transformuojasi į Beselio tipo pluoštą [16]. Iš tiesų, evoliucija į kokį nors simetrinį profilį yra universalus daugelio netiesinių lygčių, aprašančių kolapsą, bruožas.

Kalbant apie fokusavimąsi anomaliosios dispersijos srityje, nėra atlikta daug teorinių bei eksperimentinių kolapso tyrimų, o pati dinamika šioje srityje esmingai skiriasi nuo kolapso esant normaliai grupinių greičių dispersijai. Anomaliosios dispersijos srityje nevyksta impulso plyšimas ir impulsas gali pradėti spaustis, net kai pasiekiamos galios nesiekia kritinės. Kai pradeda formuotis plazma, susidariusi šviesos gija sklinda daug didesnius atstumus nei normaliosios grupinių greičių dispersijos atveju, o erdvinis papildymas (*spatial replenishment*) vyksta atstumuose kurie yra daug didesni už netiesinį židinį (kolapso tašką) [17]. Tokį padidėjusį gijos atsistatymo atstumą lemia anomali grupinių greičių dispersija, kuri leidžia impulsui toliau spaustis net po defokusuojančio plazmos poveikio. Tai sudaro prielaidą anomaliosios dispersijos srityje egzistuoti visiškai lokalizuotiems ir matmenų nekeičiantiems dariniams - šviesos kulkoms [18]. Kita vertus, gali egzistuoti ir toks sąveikos mechanizmas, kai vykstant fazinės moduliacijos ir grupinių greičių dispersijos konkurencijai, anomaliosios dispersijos srityje impulsas nepatiria spūdos, o taip pat įgauna didelį dažnių pokytį ir jo spektras esmingai išplinta.



Su fokusavimusi susijusių netiesinių procesų dinamika yra labai sudėtinga, tačiau jos geras atkartojimas netiesinėmis Šriodingerio tipo lygtimis, leidžia daryti įvairias prielaidas ir patikrinti teoriškai sumodeliuotus rezultatus.

### 2.1.3 Kryžminė fazės moduliacija ir keturbangis maišymas

Dėl Kerr'o netiesiškumo, sąveikaujant dviem skirtingo dažnio laukams, pasireiškia efektai lemiantys fazės bei dažnio pokyčius. Tai kryžminė fazės moduliacija (*cross-phase modulation* arba *XPM*) ir keturbangis dažnių maišymas. Keturbangis maišymas Kerr'o terpėje lemia naujų dažnių atsiradimą dėl energijos mainų tarp keturių skirtingų dažnių laukų. Kryžminė fazinė moduliacija gali pasireikšti, pavyzdžiui, kai sąveikauja dvi skirtingo dažnio bangos arba dvi to paties dažnio bangos, kurios skiriasi savo poliarizacija.

Lygtys aprašančios šiuos procesus gaunamos išskaidžius pradinį šviesos lauką į stipriąją ir silpnąją komponentes. Laikoma, kad lauką sudaro žadinantysis dažnis (stiprioji komponentė) bei signalinis dažnis (silpnoji komponentė). Bendra sklindančio lauko amplitudė, tokiu atveju:  $E = A_p e^{i\omega_p t} + A_s e^{i\omega_s t}$ , o lygtys:

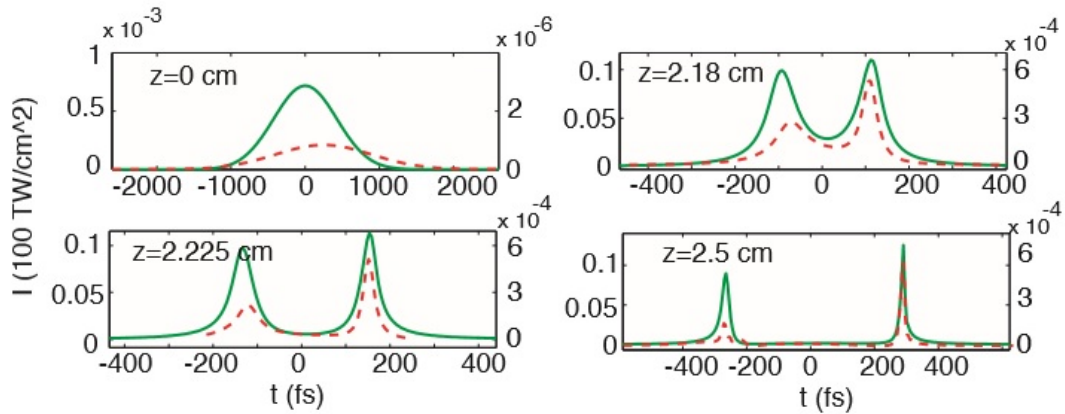
$$i \frac{\partial A_p e^{i\omega_p t}}{\partial z} + \frac{1}{k_p} \nabla_{\perp}^2 A_p e^{i\omega_p t} - \frac{k''}{2} \frac{\partial^2 A_p e^{i\omega_p t}}{\partial \tau^2} + k_p \frac{n_2}{n_0} [|A_p e^{i\omega_p t}|^2 A_p e^{i\omega_p t}] = 0, \quad (3)$$

$$i \frac{\partial A_s e^{i\omega_s t}}{\partial z} + \frac{1}{k_s} \nabla_{\perp}^2 A_s e^{i\omega_s t} - \frac{k''}{2} \frac{\partial^2 A_s e^{i\omega_s t}}{\partial \tau^2} + k_s \frac{n_2}{n_0} [|A_p e^{i\omega_p t}|^2 A_s e^{i\omega_s t}] = 0, \quad (4)$$

Kadangi žadinančiojo impulso fazės moduliacija yra susijusi su pokyčiais terpėje (indukuojamas netiesinio lūžio rodiklio pokytis), bet kokiu, kartu su žadinančiąją, atėjusi banga tuos pokyčius pajunta. Tarkime, kad žadinančioji ir signalinė banga turi skirtingus dažnius. Sklisdami Kerr'o terpėje, šie impulsai persiklos erdvėje ir laike, ir dėl terpės dispersijos sklis skirtingais grupiniais greičiais. Žadinantysis impulsas sukurs tokios poliarizacijos bangą, kurios gaubtinė atitiks žadinančiojo impulso, bet bus moduluota pagal signalinio impulso dažnį.

Pavyzdžiui, sklindant 527 nm bangos ilgio 200 fs trukmės žadinančiajam impulsui kartu su 640 nm signaliniu impulsu, susidaro šviesos gija. 2 pav. ištisine linija vaizduojamas jos intensyvumas, o taškine linija - signalinio impulso intensyvumas [19].

Aiškiai matyti, kad dėl kryžminės fazės moduliacijos poveikio, signalinis impulsas patiria formos pokyčius ir jo profilis tampa panašus į žadinančiojo impulso tuo pat metu įgydamas ir jo grupinį greitį.



**2. pav. Teoriškai sumodeliuota 527 nm bangos ilgio, 200 fs trukmės žadinančiojo impulso (kuris formuoja šviesos giją) ir 640 nm signalinio impulso evoliucija. Ištisinė linija vaizduoja žadinančiojo impulso intensyvumo profilį (skalė kairėje), brūkšninė linija vaizduoja signalinio impulso intensyvumo profilį (skalė dešinėje), kuris kinta dėl kryžminės fazės moduliacijos. [19]**

Iš esmės, silpnoji (signalinė) banga yra išsklaidoma netiesinės poliarizacijos, indukuotos dėl žadinančiojo dažnio impulso sklidimo. Įdomu tai, kad išsklaidyta signalinė banga suformuoja stacionarų, nedisperguojantį kūginių bangų paketą, kuris sklinda tokiu pat grupiniu greičiu kaip ir žadinantysis impulsas [19]. Tai reiškia, kad nors fazinį greitį lemia signalinio impulso dažnis, tačiau grupinis greitis priklauso tik nuo to, koks yra žadinančio impulso dažnis. Taigi, kryžminė fazės moduliacija gali būti naudojama generuoti stacionariai sklindančioms kūginėms bangoms.

#### 2.1.4 Daugiafotonė sugertis ir laisvųjų elektronų plazmos formavimasis

Spinduliuotės ribinis intensyvumas ir pluošto diametras, pasiekus netiesinį židinį -  $d_{min}$  - priklauso nuo daugiafotonės sugerties eilės  $K$ . Medžiagose, kuriose draustinės energijos juostos plotis yra siauras, laisvuosius elektronus kuria žemos eilės netiesinė sugertis ir pluošto defokusavimas, dėl laisvųjų elektronų plazmos, pasiekiamas esant didesniai pluošto diametrai židinyje ( $d_{min}$ ) [3]. Todėl intensyvumas bus mažas ir maksimalus įgyjamas

netiesinis fazės poslinkis bus mažas ir nestebėsime plataus spektro išplitimo. Medžiagoms, kurių draustinės energijos juostos plotis yra didelis, būdingi priešingi dėsningumai - pluošto  $d_{min}$  yra mažas, nes aukštesnių eilių daugiafotonė sugertis pasireiškia tik esant labai dideliame intensyvumui. Didelis intensyvumas sukelia didelį netiesinį fazės poslinkį, taigi ir efektyvų spektro plitimą.

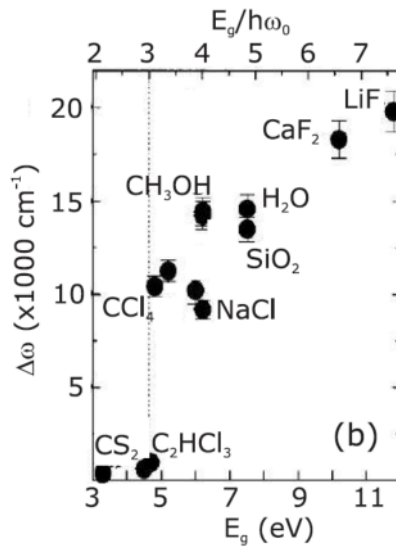
Sugeneruoto superkontinuumo spektro plotis tiesiogiai proporcingas medžiagos draustinės energijos juostos pločiui. Draustinės energijos juostos pločio ir žadinančios spinduliuotės fotono energijos sveikoji dalis  $\langle \frac{E_g}{h\nu_0} \rangle + 1$  nusako daugiafotonės sugerties eilę  $K$ . Nors fazės moduliavimasis prie pakankamai didelių intensyvumų stebimas visose medžiagose, superkontinuumui sužadinti nepakanka vien didelio impulsų intensyvumo - superkontinuumas negali būti stebimas visose medžiagose be išimties. Kai kuriose medžiagose superkontinuumas nėra generuojamas net viršijus kritinę fokusavimo galią  $P_{KR}$ . Kadangi kritinė fokusavimo galia yra beveik tapati superkontinuumo generacijos slenkstinei galios ribai  $P_{SK}$ , ją pasiekus yra tikimasi generuoti superkontinuumą. Bet yra medžiagų, kuriose nepriklausomai nuo fokusavimo sąlygų, didinant kritusios šviesos intensyvumą, visuomet pirmiausia pasiekiamas optinis terpės pažeidimas dar iki spektrui pradedant plisti. Yra tam tikra  $K$  vertė, kurios nepasiekus, medžiagoje superkontinuumas nėra generuojamas, o šią vertę viršijus, stebimas tiesioginis superkontinuumo spektro pločio didėjimas didėjant medžiagos draustinės energijos juostos pločiui. Apibendrinus, generacija galima tik tose medžiagose, kuriose:

$$K = \langle \frac{E_g}{h\nu_0} \rangle + 1 \geq 3, \quad (5)$$

čia  $K$  - daugiafotonės sugerties eilė;  $h\nu_0$  - kritusios spinduliuotės fotono energija;  $E_g$  - draustinės energijos juostos plotis.

Žadinant superkontinuumą, pavyzdžiui, artimosios IR srities impulsais, stebimi tokie dėsningumai - kuo didesnis medžiagos draustinės energijos juostos plotis, tuo didesnis anti-Stokso išplitimas superkontinuumo spektre. Ryšys tarp anti-Stoksinio spektro išplitimo, daugiafotonės sugerties eilės  $K$ , bei draustinės energijos juostos vertės pavaizduotas 3 pav. Aiškiai matyti, kad viršijus minimalią medžiagos draustinės energijos vertę (esant fiksuotai fotono energijai) superkontinuumas generuojamas, o didinant draustinės energijos vertę, daugiafotonės sugerties eilė  $K$  monotoniškai didėja. Verta pastebėti, kad kaip ir aptarta, nepasiekus  $K \geq 3$ , superkontinuumas nėra generuojamas. Anksčiau buvo manoma, kad

slenkstinė superkontinuumo generacijos galia  $P_{SK}$  tiesiog didėja didėjant  $E_g$  [3]. Dabar yra žinoma, kad  $n_2 \sim E_g^{-4}$  arba  $P_{SK} \sim P_{KR} \sim E_g^4$  [10]. Taip pat žinoma, kad anti-Stokso poslinkis atvirkščiai proporcingas  $n_2$ . Tai prieštarauja impulso fazės moduliavimosi teorijai Kerr'o terpėje, kuri teigia, jog anti-Stoksinis išplitimas didėja didėjant  $n_2$ , taigi dar kartą sėkmingai įrodo, kad vien ja remtis nepakanka.



3. pav. Mėlynojo dažnio poslinkio priklausomybė nuo medžiagos draustinės juostos pločio. [10]

Laisvųjų elektronų generacija yra labai svarbus veiksnys ribojantis fokusavimąsi (t.y. spinduliuotės ribinį intensyvumą, bei pluošto skersmenį) skaidriose medžiagose. Tokiu atveju, netiesinis lūžio rodiklio pokytis susideda iš Kerr'o dalies indėlio  $n_2 I$  ir laisvųjų elektronų indėlio:

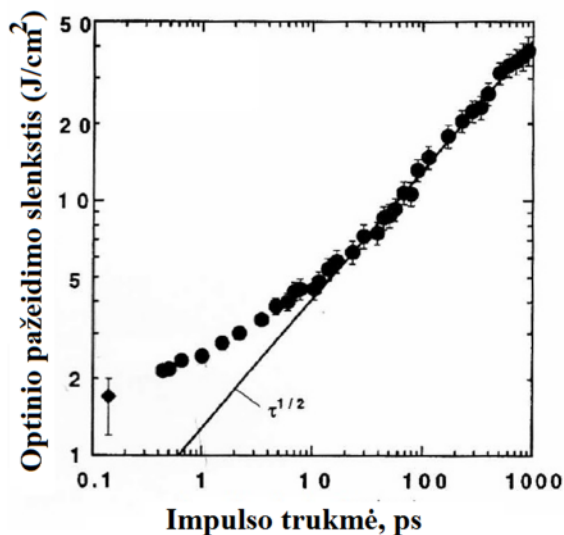
$$\Delta n_e = -\frac{2\pi e^2 N_e}{n_0 m_e (\omega_0^2 + \nu^2)}, \quad (6)$$

čia  $N_e$ - elektronų tankis,  $n_0$  - tiesinis lūžio rodiklis,  $m_e$  – elektrono masė,  $\omega_0$ - spinduliuotės dažnis, o  $\nu$  – elektronų susidūrimo dažnis [3]. Laisvieji elektronai lemia neigiamą lūžio rodiklio pokytį, kuris defokusuoja pluoštą netiesiniame židinyje ir neleidžia jam kolapsuoti. Kai elektronų koncentracija pasiekia tam tikrą ribą, Kerr'o netiesinio lūžio rodiklio komponentas  $n_2 I$  kompensuojamas dėl laisvųjų elektronų plazmos indukuojamo lūžio rodiklio pokyčio  $\Delta n_e$ , ir tada fokusavimasis sustoja. Laisvųjų elektronų generacijos šaltinis yra ne tik daugiafotonė sugertis, bet ir griūtinė jonizacija.

Daugiafotonės sugerties atveju, šuolis į sužadintą būseną įvyksta todėl, kad kelis fotonus vienu metu sugėręs elektronas įgyja energiją, lygią ar didesnę draustinės energijos juostos pločiui. Griūtinės jonizacijos atveju, pradinis elektronas (sugeneruotas pvz.: priemaišų jonizacijos) įgauna papildomos energijos iš optinės spinduliuotės, ir sužadina kitą elektroną (į laidumo juostą) susidūrimo metu. Tie du elektronai vėliau sužadina dar du, ir taip toliau. Griūtinės jonizacijos atveju laisvųjų elektronų tankis auga eksponentiškai. Griūtinė jonizacija vyksta jau po daugiafotonės sugerties, nes griūtinėi jonizacijai vykti yra būtinas laisvųjų elektronų egzistavimas. Griūtinės jonizacijos pasireiškimo mastai femtosekundinių impulsų atveju yra nežymūs, ir optinė terpė generuojant superkontinuumą išlieka nepažeista. Kitaip yra ilgesnių impulsų atveju, čia griūtinė jonizacija vaidina svarbų vaidmenį. Manoma, kad femtosekundinių impulsų atveju pagrindinis laisvųjų elektronų generacijos šaltinis yra daugiafotonė sugertis, o pikosekundinių impulsų atveju – griūtinė jonizacija. Dėl šių dėsningumų femtosekundiniais impulsais žadinti superkontinuumą kietakūnėse medžiagose išvengiant optinio terpės pažeidimo yra daug lengviau nei pikosekundinių impulsų atveju.

### 2.1.5 Optinis pažeidimas

Terpės optinio pažeidimo mechanizmas stipriai susijęs su impulso trukme, kaip pavaizduota 4 pav. Femtosekundinių impulsų atveju pažeidimas nepriklauso nuo pradinės elektronų koncentracijos (kaip yra ilgesnių – pikosekundinių – impulsų atveju), kadangi daugiafotonė sugertis sukuria gerokai daugiau elektronų nei buvo iš pradžių ir elektronų tankio augimas yra nepriklausomas nuo pradinės jų koncentracijos. Medžiagos yra atsparios femtosekundinei spinduliuotei, ir optinio pažeidimo slenkstis yra tiksliai apibrėžtas. Femtosekundinių impulsų atveju pažeidimas susijęs tik su būdingomis medžiagos savybėmis, o ne, pavyzdžiui, su medžiagos defektais (sąlygojančiais pradinę laisvųjų elektronų koncentraciją). Femtosekundinių impulsų atveju laisvųjų elektronų šaltinis yra daugiafotonė jonizacija, kadangi pasiekiami dideli intensyvumai. Tačiau impulsas yra per trumpas išsivystyti griūtinėi jonizacijai – šilumos kiekis, perduodamas gardelei, yra palyginti nedidelis. Jeigu terpėje išsivysto pažeidimas, jis yra praktiškai tik daugiafotonės sugerties rezultatas, kadangi su femtosekundiniais impulsais pasiekiami tokie intensyvumai, kad pakanka daugiafotonės sugerties, elektronų tankiui (kritinis plazmos tankis) užaugti tiek, kad išsivystytų optinis pažeidimas.



4. pav. Teoriškai sumodeliuota ir eksperimentiškai užregistruota pažeidimo slenkščio priklausomybė nuo impulso trukmės lydytame kvarce, kai žadinančiojo impulso bangos ilgis 1064 nm. [20]

Norint išvengti terpės optinio pažeidimo, superkontinuumas generuojamas švelnaus pradinio fokusavimo sąlygomis. Tai reiškia, kad pradinis pluošto energijos tankis turi būti gerokai mažesnis nei slenkstinis medžiagos pažeidimo energijos tankis  $F_{paž}$ . Taip pat nustatyta, kad fokusuojant aštriai, kristalinė terpė optiškai pažeidžiama net kai įėjimo galia yra kelis kartus mažesnė nei  $P_{SK}$ . Tokiu atveju, bus greitai pasiekiamas toks pluošto energijos tankis, kad medžiaga bus pažeista, nors galia net nėra pakankama sužadinti superkontinuumui. Taip pat, net kelis kartus viršijus  $P_{SK}$ , superkontinuumas gali būti negeneruojamas, bet nepaisant to, išsivysto milžiniški optiniai pažeidimai [21]. Manoma, kad šiuo atveju dėl itin stipraus pažeidimo susiformavimo, lazerio spinduliuotė medžiagoje yra smarkiai sugerama ir išsklaidoma. Iš esmės, susiformavusi plazma sugeria didelę impulso energijos dalį...

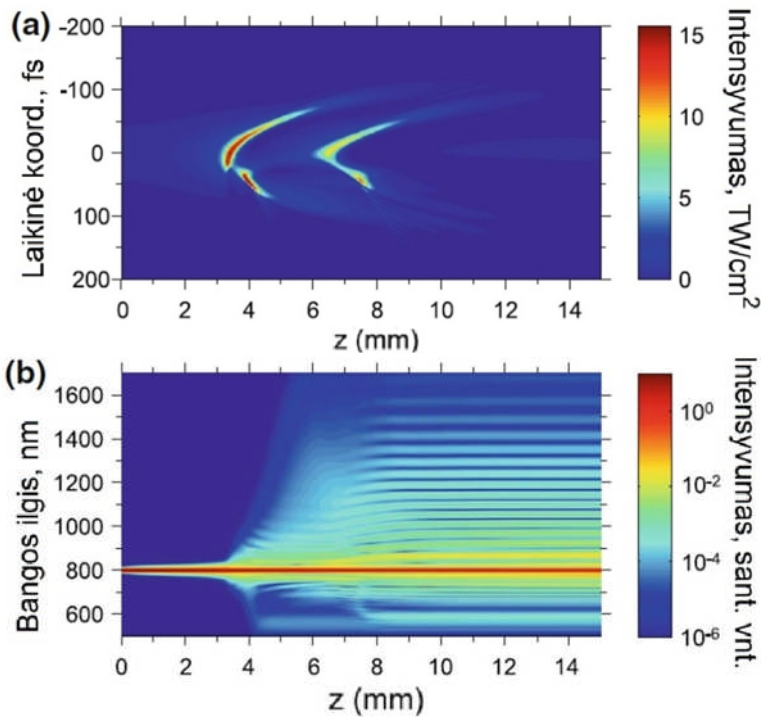
Aprašytasis pažeidimas vadinamas katastrofišku ir yra negrįžtamas. Be katastrofiško pažeidimo, optinėje terpėje gali būti indukuojami ilgai išliekantys medžiagos lūžio rodiklio pokyčiai – formuojama bangolaidinė struktūra. Toks „bangolaidžio įsirašymas“ pasireikšia esant dideliems impulsų pasikartojimo dažniams. Po pirmojo impulso, antrasis impulsas pasiekia medžiagą tada, kai dar yra nerekombinavusių laisvųjų elektronų ir medžiaga ilgalaikiai paveikiama. Toks procesas įvyksta kurį laiką veikiant medžiagą lazerio impulsais - paveikus tik keletu impulsų, bangolaidinė struktūra nėra formuojama. Kitaip tariant, lazerio impulsais ilgai veikiant tą pačią medžiagos vietą, dėl riboto šiluminio laidumo ar dėl elektronų formuojamų spalvinių centrų medžiaga patamsėja. Gardelės struktūra taip modifikuojama, kad laisvieji elektronai atsiduria gardelės tarpuose ir ten išlieka. Taip medžiagoje įrašomas siauras kanalas su pakitusiomis optinėmis savybėmis.

Generuojant superkontinuumą pasiekiami dideli intensyvumai, todėl iš esmės yra sukuriama sąlyga pasireikšti optiniam pažeidimui. Visgi, femtosekundinių impulsų atveju, esant optimalioms eksperimento sąlygoms, optinis pažeidimas nepasireiškia.

## **2.2 Superkontinuumo generacija normaliosios grupinių greičių dispersijos srityje**

Įvairių netiesinių reiškinių (fokusavimosi, fazės moduliavimosi, impulso skilimo ar spūdos, frontų statėjimo, daugiafotonės sugerities, laisvųjų elektronų plazmos formavimosi...) sąveika su difrakcija bei grupinių greičių dispersija lemia šviesos gijos susidarymą. Šviesos gija – tai dinaminė struktūra su intensyvia šerdimi, galinti nusklisti daug didesnius atstumus nei difrakcinis, išlaikant nedidelį diametrą, be jokio papildomo kreipiančiojo ar palaikančiojo mechanizmo ir kurios laikinė dinamika lemia spektrinį išplitimą bei superkontinuumo generaciją [22].

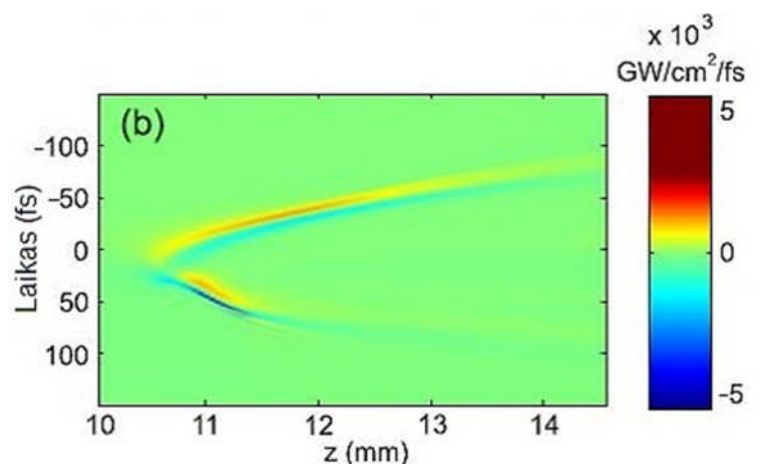
5 pav. pavaizduota kaip plinta spektras, femtosekundiniam impulsui netiesiškai sklindant safyro kristale bei formuojantis femtosekundinei šviesos gijai normaliosios dispersijos srityje. Superkontinuumą žadinančio impulso bangos ilgis yra 800 nm. Po pirmojo impulso skilimo ties 3,5 mm (ir smarkaus spektro išplitimo), toliau sklindant vyksta antrinis fokusavimas. Antrame netiesiniame židinyje (ties 7 mm) jis baigiasi antruoju impulso skilimu. Priekinis ir galinis subimpulsai, atsiradę po šio skilimo, pasižymi labai panašia spektrinio plitimo dinamika, bei interferuoja su pirmojo skilimo metu atsiradusiais subimpulsais. To rezultatas yra periodinės moduliacijos superkontinuumo spektre, aiškiai matomos nuo 7 mm sklidimo atstumo (pav. 5 b). Praktikoje, generuojant superkontinuumą, žadinančiojo impulso energija pasirenkama taip, kad būtų išvengta antrojo impulso skilimo, taip siekiant gauti glotnesnį ir mažiau moduluotą superkontinuumo spektrą. Taip pat žinoma, kad mažinant skaitinę apertūrą, didėja žadinančiojo impulso energijų intervalas tarp pirmojo ir antrojo impulsų skilimo [23].



5. pav. Teoriškai sumodeliuota sklaidimo safyre a) laikinė ir b) erdvinė evoliucija, sklindant 1,1 μJ, 800nm, 120 fs trukmės žadinančiajam impulsui, fokusuojant su  $f = +200$  mm lęšiu. [23]

Superkontinuumo generaciją iš tiesų apsprendžia ne pats impulso intensyvumas, o jo kitimo sparta  $\frac{dI}{dt}$ , tuo tarpu dėl netiesinės fazės moduliacijos atsirandantis dažnio pokytis yra  $\omega = \frac{d\phi}{dt}$ . Impulso formą iš esmės lemia intensyvumo kitimo laike pobūdis, o 6 pav. ir yra pavaizduotas impulso  $\frac{dI}{dt}$ . Paveiksle matomi priekinio ir galinio subimpulsų, priekinio bei galinio frontų statumai, kai žadinantysis bangos ilgis yra 800 nm. Priekinio subimpulso priekinis frontas gana gulsčias, o galinio subimpulso galinis frontas - status. Status galinio subimpulso frontas lemia mėlynąjį dažnių poslinkį - atsiranda didesnių dažnių už nešantįjį ir vyksta ryškus plitimas į mėlynąją spektro pusę [23].

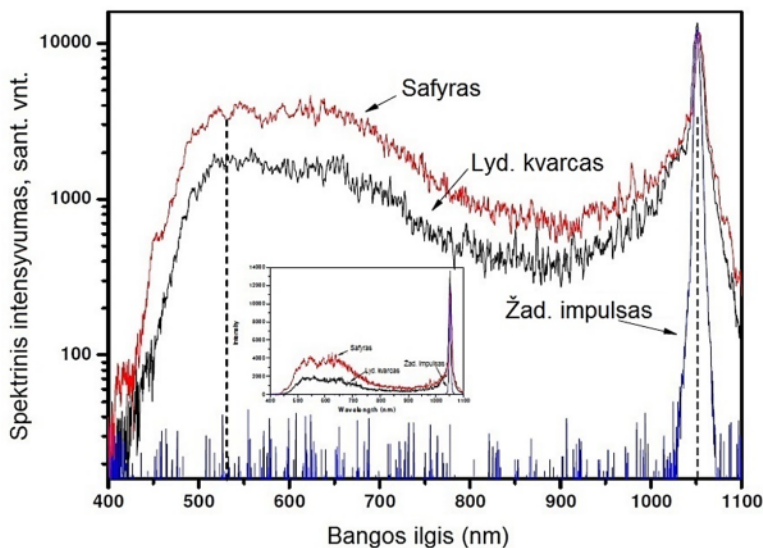
6. pav. Priekinio ir galinio subimpulsų statėjimo evoliucija safyro kristale, superkontinuumo žadinimui naudojant 120 fs trukmės 800 nm bangos ilgio impulsus, fokusuojant lęšiu, kurio židinio nuotolis yra 400 mm. [23]





Iš tiesų, spektro plitimas yra kaupiamasis reiškinys, priklausantis nuo to, kokią atstumą geba nusklisti impulsas terpėje. Yra nustatytas ryšys tarp impulso fronto statumo ir jo išsilaikymo terpėje trukmės – kuo impulsas statesnis tuo jis greičiau dėl dispersijos nuslopsta, o mažiau status impulsas – priešingai - ilgiau išsilaiko nenuslopęs. Jei statesnis galinio subimpulso galinis (mėlynasis) frontas – vyks smarkus spektro plitimas į mėlynąją pusę (tai galioja impulsams iš IR srities, išskyrus viduriniąją IR), o esant priekinio subimpulso statesniam priekiniam frontui (toks dėsningumas nustatytas tik UV srityje) spektras smarkiau plis į raudonąją pusę. Tuo tarpu, frontams pasižymint vienodu statumu (regimojoje spektro srityje) – spektras tolygiai plis į abi puses nešančiojo dažnio atžvilgiu.

Superkontinuumo žadinimui artimojoje infraraudonojoje (NIR) srityje naudojamos skaidrios kristalinės dielektrinės terpės, tokios kaip YAG, YVO<sub>4</sub>, GdVO<sub>4</sub>, KGW, CaF<sub>2</sub>, safyras arba lydytas kvarcas [3, 24, 25]. Naudojant tokias medžiagas gaunamas labai platus superkontinuumo spektras, apimantis regimąją bei artimąją infraraudonąją sritis. Žadinant artimosios infraraudonosios srities impulsais, generuojamas superkontinuumas tipiškai pasižymi ryškiu išplitimu į mėlynąją spektro sritį, kaip pavaizduota 7 pav. [26].



**7 pav. Spektrai superkontinuumo, eksperimentiškai sužadinto safyre ir lydytame kvarce naudojant 250 fs trukmės 1053 nm bangos ilgio impulsus. [25]**

Tokio superkontinuumo formavimosi pradžia gali būti ne tik plitimas apie nešančiojo impulso bangos ilgį. Kai kurie autoriai pastebėjo, kad vidurinės infraraudonosios srities impulsais žadinamas superkontinuumas pradeda formuotis nuo mėlynosios smailės, o tik tada prasideda plitimas žadinančiojo impulso bangos ilgio aplinkoje [26]. Superkontinuumo mėlynosios smailės padėtis gali būti keičiama keičiant fokusavimo sąlygas,

o tai atveria galimybes superkontinuumo spektro formos valdymui [26]. Kuo didesnis atstumas yra tarp bandinio įėjimo plokštumos ir lęšio židinio, tuo mažesnis atstumas nustatytas tarp mėlynosios smailės ir nešančiojo impulso smailės.

## 2.3 Superkontinuumo generacija anomaliosios grupinių greičių dispersijos srityje

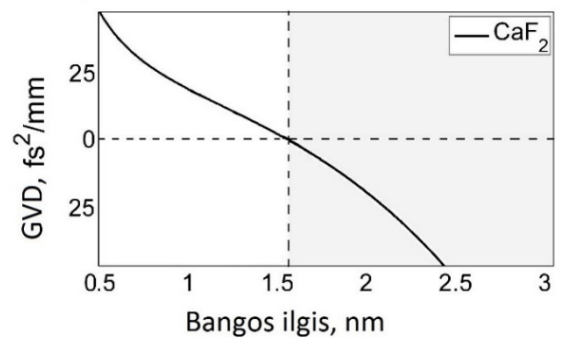
Didinant žadinančiojo impulso bangos ilgį link vidurinės infraraudonosios spektro srities, jis pakliūva į skaidrių medžiagų anomaliosios grupinių greičių dispersijos sritį. Anomaliosios dispersijos atveju, priešingai nei jau skyrelyje 2.1.1 aptartos normaliosios, priekinis impulso frontas (-t) įgauna teigiamą dažnio poslinkį ir tampa mėlynėsnis, o galinis jo frontas (+t), įgaudamas neigiamą dažnio poslinkį, tampa raudonesnis. Toks šviesos impulsas spaudžiasi laike ir dispersiškai neplinta dėl fazinės moduliacijos bei normaliosios grupinių greičių dispersijos sąveikos. Įprastai, normaliosios dispersijos srityje, šviesos gijos skilimas įvyksta nusklidus atstumą artimą difrakciniam. Grupinių greičių dispersija spektro neišplečia, tik sukuria tiesinę dažnio moduliaciją, dėl ko impulso trukmė išauga. Tačiau, anomaliosios dispersijos srityje atlikti tyrimai [27] atskleidė, jog šioje srityje šviesos gijos sklaidimo atstumas smarkiai pailgėja, o pluošto kolapsas įvyksta nusklidus atstumus, keliskart viršijančius difrakcinį ilgį. Toks fenomenas buvo paaiškintas per kūginių bangų susidarymą femtosekundiniams impulsams sklindant netiesinėje terpėje [6, 28-31], tiek normaliosios, tiek anomaliosios dispersijos režime. Buvo nustatyta, jog žadidantysis impulsas yra išsklaidomas medžiagoje susidariusios netiesinės poliarizacijos bangos, kuri kyla iš paties impulso netiesinės sąveikos su terpe. Tuo pat metu buvo atrastos ir šviesos kulkos [27], kaip jau minėta gebančios sklisti visiškai lokalizuotai, nekeičiant matmenų ir sklindimo metu išvengiant netiesinių nuostolių. Tokios struktūros susidarymą lemia tai, jog impulsui sklindant netiesinėje skaidrioje terpėje vyksta jo laikinė spūda.

Sklindant impulsui, dėl fazinės moduliacijos ir anomaliosios grupinių greičių dispersijos sąveikos impulsas neplinta, o priešingai, jo trukmė mažėja, kaip buvo parodyta eksperimentiškai bei sumodeliuota teoriškai [25]. Vykstant impulso trukmės mažėjimui jo erdvinis profilis lieka nepakitęs, o toks metodas gali būti naudojamas kelių optinių ciklų impulsų formavimui, kai terpėje su anomalija grupinių greičių dispersija sklinda impulsas su plokščia viršūne. Trumpai tariant, spektriniame ruože, atitinkančiame anomaliją grupinių

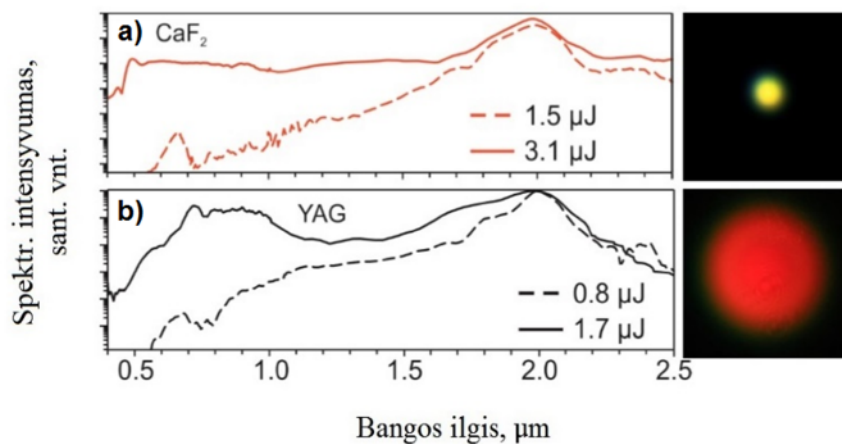
greičių dispersiją ( $g_0 < 0$ ), vyksta dispersijos ir netiesiškumo konkurencija, o pasiekus slenkstinį galios tankį impulso trukmė stabilizuojasi [32].

Superkontinuumo generavimui vidurinėje infraraudonojoje (MIR) spektro srityje, kaip ir NIR srityje, taip pat tinka praktiškai visos skaidrios dielektrinės medžiagos - lydytas kvarcas, safyro ar YAG kristalai, fluoridai. Generuojant MIR srities impulsais, gali būti naudojamos ir siauresnės  $E_g$  medžiagos palyginus su UV-NIR impulsais generuojamu superkontinuumu, tačiau plačiausi superkontinuumo spektrai gaunami medžiagose su didžiausia  $E_g$ . MIR srities impulsais sugeneruotas superkontinuumas labai platus ir įprastai apima regimąją spektro sritį, artimąją infraraudonąją bei viduriniąją infraraudonąją sritis, o jo forma smarkiai priklauso nuo medžiagų dispersinių savybių. 8 pav. pavaizduota kalcio fluorido grupinių greičių dispersijos kreivė – matyti, kad MIR srities impulsai atsiduria anomaliosios grupinių greičių dispersijos srityje.

8. pav.  $\text{CaF}_2$  grupinių greičių dispersijos priklausomybė nuo bangos ilgio. Anomaliąją dispersiją paveiksle žymi tamsesnės spalvos sritis.



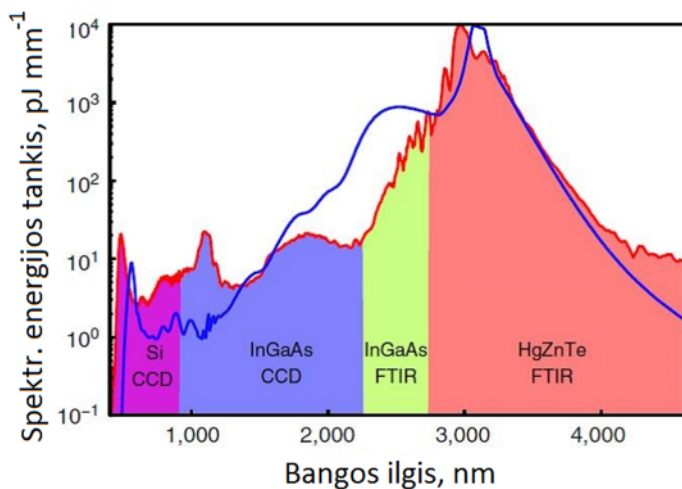
Pavyzdžiui, 2  $\mu\text{m}$  bangos ilgio impulsais žadintas superkontinuumas apima regimąją-infraraudonąją spektrinį diapazoną, o jo spektrui būdingas smarkus intensyvumo padidėjimas trumpabangėje srityje (pav. 9).



9. pav. Superkontinuumo, sugeneruoto a)  $\text{CaF}_2$  ir b) YAG kristaluose, spektras, kai žadinančiojo impulso bangos ilgis 2  $\mu\text{m}$ . Brūkšninė ir ištisinė linijos vaizuoja pereinamąjį ir išotintą generacijos režimą, atitinkamai. [24]

Didinant žadinančiojo impulso energiją, šis trumpabangis išplitimas užmaskuoja trečiosios harmonikos spektrą, kuris nesusijęs su superkontinuumo generacija, tačiau įeina į jo spektrą ir yra lengvai pastebimas nedidelių žadinimo energijų srityje. Taip pat, ultratrumpaisiais impulsais generuojamam superkontinuumui būdinga kūginė spinduliuotė, regimojoje spektro srityje matoma kaip spalvotas tolimojo lauko intensyvumo skirstinys. Keičiant netiesinę terpę, kurioje žadinamas superkontinuumas, jo spektro forma gali šiek tiek kisti, tačiau šie bruožai atsikartoja visose terpėse. Priklausomai nuo terpės netiesinio lūžio rodiklio keičiasi tai, koku kampu išsklaidoma superkontinuumo spinduliuotė – todėl didžiausią  $n_2$  turinčiame YAG kristale, kaip matoma 9 pav., užfiksuotas labiausiai išplitęs tolimojo lauko intensyvumo skirstinys.

Generuojant superkontinuumą su 3,1  $\mu\text{m}$  bangos ilgio ultratrumpaisiais impulsais, superkontinuumo spektras apima didesnę dalį infraraudonojo spektrinio diapazono tiek eksperimentiniu bei teoriniu atveju (10 pav.) [33]. Plitimas ilgabangėje srityje priklauso nuo žadinančiojo impulso bangos ilgio bei energijos, tačiau mėlynasis išplitimas yra apspręstas netiesinės terpės charakteristikų.



**10. pav. Superkontinuumo sugeneruoto YAG kristale, spektras, kai žadinama 85 fs trukmės 3,1  $\mu\text{m}$  bangos ilgio impulsais. [33]**

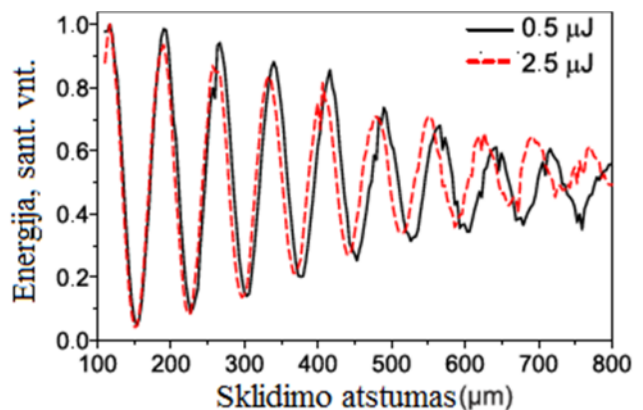
Medžiagose su maža dispersija mėlynasis maksimumas nėra toks išreikštas, o kuo dispersija didesnė, tuo jis aiškesnis ir labiau išplitęs į ilgabangę spektro pusę. Eksperimentiškai užregistruotame spektre taip pat pastebėti du maksimumai trumpabangėje srityje, kurie galėtų atitikti trečiąją ir penktąją harmonikas (ties 600 nm ir 1100 nm). Dėl anomaliosios grupinių greičių dispersijos, sklindant impulsui, plitimas yra beveik simetrinis (kaip ir matyti paveiksle), kadangi impulsas neskykla - jis spaudžiasi laike, o impulso priekinis ir galinis frontai yra vienodo statumo.

## 2.4 Nelyginių harmonikų generacija didelio fazinių ir grupinių greičių nederinimo atveju

Nelyginių harmonikų generacija – tai keturbangio dažnių maišymo atvejis. Trečiosios harmonikos generacija yra puikiai žinomas procesas, tačiau retai kada įskaitomas reiškinys kalbant apie šviesos gijų susidarymą ar spektro plitimą kietakūnėse terpėse. Dujose žemiausios eilės nelyginės (trečiosios) harmonikos generacija stebėta susidarant šviesos gijoms bei vykstant superkontinuumo generacijai [24]. O vos praeitais metais sugeneruotas nelyginėmis harmonikomis praturtintas, 5 oktavas apimantis superkontinuumas jį žadinant ore 3,9  $\mu\text{m}$  lazerio spinduliuote [8-9]. Žinoma, kad eksperimentiškai trečiosios harmonikos generacija prasideda dar prieš pradėdant plisti spektrui ir generuoti superkontinuumui. Trečioji harmonika buvo užregistruota pasiekus energiją, kuri yra dvigubai žemesnė negu superkontinuumo slenkstinė generacijos energija, o tokios trečiosios harmonikos generacijos efektyvumas siekė  $10^{-6} - 10^{-4}$  priklausomai nuo žadinančiojo impulso galingumo [24]. Izotropinėse terpėse trečioji harmonika generuojama per medžiagų kubinį netiesiškumą  $\chi^{(3)}$ , o sąveika aprašoma kaip  $\omega + \omega + \omega = 3\omega$ . Dėl to, jog kubinis netiesiškumas yra gerokai mažesnis nei kvadratinis, didelių šios sąveikos efektyvumų pasiekti nepavyksta.

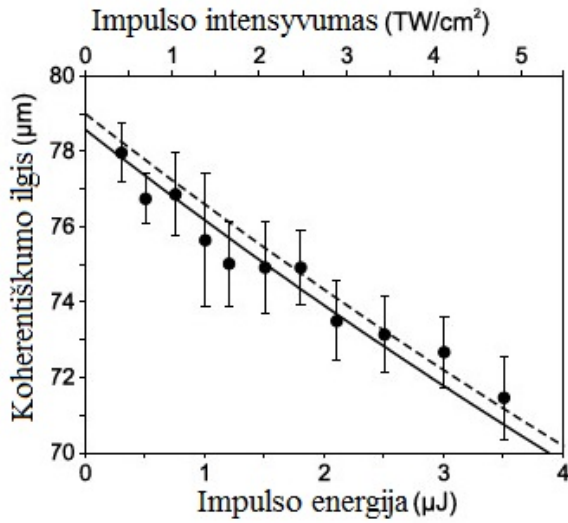
Pav. 12 [34] pavaizduota trečiosios harmonikos energijos priklausomybė nuo sklaidimo atstumo, o harmonikos energijos osciliacijų periodai atitinka jų koherentinės sąveikos ilgį  $L_{koh}$ .

12. pav. Normuota trečiosios harmonikos energijos priklausomybė nuo sklaidimo atstumo netiesinėje terpėje, kai žadinančiojo impulso energija yra 0,5  $\mu\text{J}$  (ištiesinė linija), bei 2,5  $\mu\text{J}$  (brūkšninė linija) [34]



Dėl didelio fazinio nederinimo sąlygų, nepriklausomai nuo pasirinktos žadinimo energijos (0,5  $\mu\text{J}$  ar 2,5  $\mu\text{J}$ ), stebimos periodinės trečiosios harmonikos energijos osciliacijos. Matyti, kad mažinant energiją didėja osciliacijų periodas. Koherentinio sąveikos ilgio ( $L_{koh}$ ) priklausomybė nuo žadinančiojo impulso energijos pavaizduota 13 pav. [34].

Koherentinis sąveikos ilgis apibrėžia sąveikos ilgį, kuriame vyksta generuojamo dažnio (harmonikos) spinduliuotės intensyvumo augimas, o formaliai  $L_{koh} = 2\pi/\Delta k$ .



13. pav. Koherentinio sąveikos ilgio priklausomybė nuo žadinančiojo impulso energijos bei intensyvumo. Taškai vaizduoja eksperimentinius rezultatus, ištininė ir brūkšninė linijos vaizduoja teoriškai apskaičiuotą koherentinės sąveikos ilgį, kai žadinančiojo impulso bangos ilgis yra 1,98 μm ir 2 μm, atitinkamai. [34]

Stebimas  $L_{koh}$  trumpėjimas didėjant žadinančiojo impulso energijai, gali būti paaiškintas per bangos vektoriaus  $k$  ilgio pasikeitimą:

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} [n(\omega) + n_2 I], \quad (7)$$

$$k(3\omega) = \frac{3\omega}{c} [n(3\omega) + 2n_2 I], \quad (8)$$

čia  $k$  – bangos vektorius,  $I$  – žadinančiojo impulso intensyvumas,  $n$  – lūžio rodiklis,  $n_2$  – netiesinis lūžio rodiklis,  $\omega$  – žadinančiosios spinduliuotės dažnis,  $c$  – šviesos greitis. Žadinančiojo impulso energijos didėjimas lemia netapatų sąveikaujančių vektorių  $k(\omega)$  ir  $k(3\omega)$  ilgių kitimą (ilgėjimą), todėl ir  $L_{koh}$  mažėjimą. Taip pat, iš paveikslėlio matyti, jog žadinimas didesnio bangos ilgio spinduliuote lemia koherentinės sąveikos pailgėjimą.

Kalbant apie aukštesnių eilių nelyginių harmonikų generaciją, akivaizdu, kad per penktosios eilės netiesiškumą  $\chi^{(5)}$  generuoti penktąją harmoniką yra dar sudėtingiau, kadangi šios sąveikos efektyvumas yra dar keliomis eilėmis mažesnis. Teoriškai, generuoti penktajai harmonikai yra ne vienas būdas (tiesioginis arba pakopinis procesas), tačiau, eksperimentiškai buvo nustatyta, kad penktosios harmonikos intensyvumo svyravimų periodas sutampa su trečiosios harmonikos svyravimų periodu, o tai reiškia, kad penktoji yra generuojama per pakopinį keturbangį maišymą proceso  $3\omega + \omega + \omega = 5\omega$  metu [22].

Analogiškai, aukštesniosios harmonikos (7-oji, 9-oji ir t.t.) taip pat gali būti generuojamos per tiesioginį ir pakopinį procesus. Jei generacija vyksta pakopinio proceso metu - pakopinis netiesinis lūžio rodiklis  $n_{kaskad}$  prisideda prie medžiagos savitojo netiesinio lūžio rodiklio  $n_2$ , ir  $n_{visas} = n_2 + n_{kaskad}$ .

## 2.5 Superkontinuumo ir nelyginių harmonikų generacija (skaitmeninis modeliavimas)

Kitaip nei normaliosios grupinių greičių dispersijos atveju, femtosekundiniais impulsais žadinamas superkontinuumas anomaliosios dispersijos srityje skaidriose dielektrinėse terpėse kol kas yra mažai ištirtas. Neseni tyrimai atskleidė, kad kai pradinis bangų paketo intensyvumas yra itin didelis (keli TW/cm<sup>2</sup>), impulsinio pluošto sklaidimo dinamika pasikeičia iš esmės – impulso spūda vyksta jau nebe dėl grupinių greičių dispersijos ir fazinės moduliacijos sąveikos, bet dėl sparčiai besiformuojančios laisvųjų elektronų plazmos poveikio.

Toliau pateikiamas teorinis CaF<sub>2</sub> kristale, anomaliosios dispersijos srityje, sklindančio femtosekundinio impulso evoliucijos tyrimas, sumodeliuotas dr. Vytauto Juknos. Žadinančios spinduliuotės intensyvumas yra 4,8 TW/cm<sup>2</sup>, o pradinis pluošto diametras yra 55 μm. Šie teoriniai rezultatai gauti iš vienakrypčio neparaksialinio sklaidimo modelio elektriniam laukui, kuris aprašomas:

$$\frac{\partial E}{\partial z} = i \left( \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2} - \frac{\omega}{v_g} \right) E + \frac{i\omega}{2\varepsilon_0 c^2 k(\omega)} [\omega P + iJ] = 0, \quad (9)$$

čia  $k(\omega) = \omega n(\omega)/c$  – dispersinis sąryšis,  $v_g = (\partial k / \partial \omega)_{\omega_0}$  – žadinančiojo impulso grupinis greitis,  $P$  ir  $J$  – netiesinė poliarizacija ir srovės tankis, kurie yra išreiškiami, atitinkamai:

$$P = 2\varepsilon_0 n_0 n_2 |E|^2 E, \quad (10)$$

bei

$$J = c\sigma\varepsilon_0 (1 + i\omega\tau_c)\rho E + cn_0\varepsilon_0 \frac{w(I)U_i}{l} \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{nt}}\right) E, \quad (11)$$

čia  $n_0 = 1,42$  yra tiesinis lūžio rodiklis,  $n_2 = 1,5 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$  – netiesinis lūžio rodiklis,  $\rho_{at} = 2,1 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  yra neutralių atomų tankis,  $\sigma = 3,47 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$  yra išorinio stabdomojo spinduliavimo skerspjuvis,  $\tau_c = 3 \text{ fs}$  yra laikas tarp elektronų susidūrimų,  $W(I)$  – Keldysh'o jonizacijos sparta, apskaičiuota, kai gaubtinės intensyvumas:  $I = \epsilon_{0c} n_0 |E|^2 / 2$ ,  $U_i = 12 \text{ eV}$  yra atomo jonizacijos potencialas. Besiformuojančios laisvųjų elektronų plazmos tankis apskaičiuojamas iš lygties:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W(I) (\rho_{at} - \rho) + \frac{\sigma}{U_i} \rho I - \frac{\rho}{\tau_{rec}}, \quad (12)$$

čia  $\tau_{rec} = 150 \text{ fs}$  yra elektronų rekombinacijos trukmė. Svarbu pažymėti, kad modelyje yra įskaitytas tik kubinis medžiagos netiesiškumas ir su juo susiję efektai.

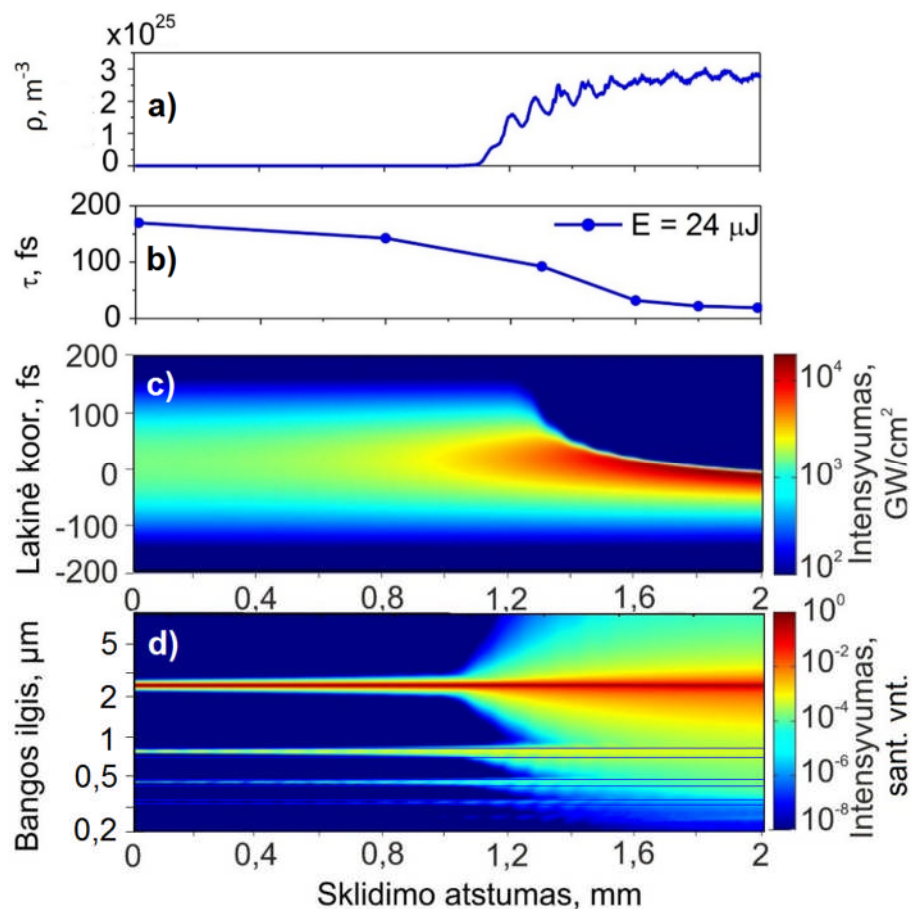
Pav. 11 pavaizduota teoriškai sumodeliuota 170 fs trukmės, 2,4  $\mu\text{m}$  bangos ilgio impulso laikinė dinamika kartu su atitinkama spektrinio plitimo dinamika, kai žadinančiojo impulso energija yra 24  $\mu\text{J}$ . Pav. 11 a) dalyje matyti plazmos tankio  $\rho$  kitimas sklidimo metu, b) dalyje – impulso trukmės  $\tau$  kitimas, c) dalyje pavaizduota impulso transformacija laike, o d) dalyje matomas atitinkamas spektrinis plitimas.

Švelniai į kristalą fokusuojant pradinį femtosekundinį impulsinį pluoštą, paveiksle matyti smailės ties 800 nm, 480 nm ir 343 nm, kurios atitinka 3-iają, 5-ąją ir 7-ąją harmonikas, kurios atskirtos mėlyna ištisine linija. Impulsinio pluošto fokusavimasis vyksta pakankamai ilgai ir per pirmąjį sklidimo milimetrą impulsas sklinda kvazistacionariai ir nepatiria praktiškai jokių formos pokyčių. Nusklidus apie 0,9 mm, pradeda matytis silpnas spektrinis plitimas apie nelyginių harmonikų centrinius dažnius.

Tik nusklidus apie 1,2 mm impulsas patiria formos transformaciją (c)) dėl smarkiai išaugusio plazmos tankio (a)). Impulsas pradeda spaustis laike (b)), o jo galinis frontas sparčiai statėja, kol baigiasi stačiu nukirtimu, ir yra atsakingas už plitimą į trumpabangį diapazoną. Kartu su impulso laikine transformacija prasideda ir spektro plitimas apie nešantįjį dažnį, apjungiantis spektrinę sritį iki trečiosios harmonikos centrinio dažnio. Taip pat, matyti, kad užpildoma ir sritis tarp trečiosios-penktosios, bei penktosios-septintosios harmonikų.

Nusklidus apie 1,6 mm jau susiformuoja intensyvus, plokščias superkontinuumo spektras apimantis itin platų spektrinį diapazoną vidurinėje infraraudonojoje srityje, o ultravioletinėje srityje pasiekiamas išplitimas ne mažesnis nei 200 nm.





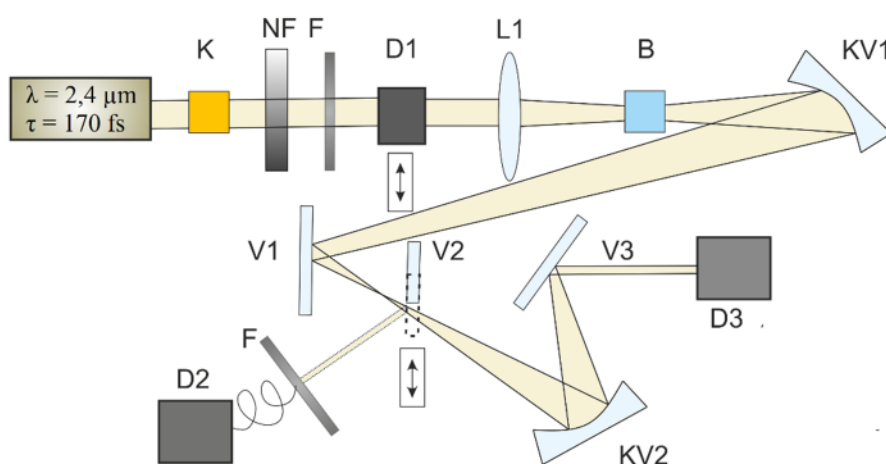
11. pav. Teoriškai sumodeliuota laikinė ir spektrinė besifokusuojančio 170 fs impulso evoliucija sklindant CaF<sub>2</sub> kristale, fokusuojant  $f = +100$  mm lęšiu. a) pavaizduotas plazmos tankio kitimas, b) impulso trukmė, c) laikinė ir d) spektrinė evoliucija sklidimo metu.

Sugeneruoto superkontinuumo spektras apima UVB-MIR spektrinę sritį, o plitimas trumpabangėje srityje smarkiai susijęs su kaskadinių procesų metu generuojamomis nelyginėmis trečiaja, penktąja ir septintąja harmonikomis. Generuojantis superkontinuumui vyksta perėjimas iš Kerr'o indukuoto šviesos gijos susidarymo mechanizmo į laisvųjų elektronų plazmos formavimosi sukeltos šviesos gijos susidarymo. Įprastai, spektrinį išplitimą pasiekti leidžia anomaliosios grupinių greičių dispersijos bei fazinės moduliacijos sąveika, tačiau šiuo atveju, superkontinuumas generuojamas pagrinde dėl plazmos sukeltos žadinančiojo impulso laikinės spūdos, dėl kurios plinta nelyginių harmonikų spektras pasireiškiant kryžminei fazės moduliacijai, o grupinių greičių dispersija tam įtakos neturi.

### III. DARBO METODIKA

#### 3. 1. Eksperimento schema

Šiame eksperimente tiriama superkontinuumo, žadinamo vidurinės infraraudonosios srities femtosekundiniais lazerio impulsais, generacija  $\text{CaF}_2$  kristale vykstant vienalaikiai nelyginių nešančiojo dažnio harmonikų generacijai. Eksperimente naudojami impulsai sustiprinti parametriniame stiprintuve *Topas-Prime* su dvejomis stiprinimo pakopomis. Superkontinuumui žadinti naudojama stiprintuve generuojama šalutinė banga, kurios  $\lambda = 2,4 \mu\text{m}$ , impulso trukmė – 170 fs. Stiprintuvas kaupinamas 90 fs trukmės lazerio impulsais, kurių nešantysis bangos ilgis yra  $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ , generuojami Ti:Safyro sistemoje *Spitfire*, veikiančioje 200 Hz pasikartojimo dažniu. Eksperimento schema pateikta 14 pav.



14. pav. K – ZnSe kristalas, NF- kintamo pralaidumo filtras, F – praleidžiamą spektr. diapazoną ribojantys filtrai, D1 – energomatis, L1 – glaudžiamasis lęšis, B –  $\text{CaF}_2$  bandinys, KV- kreivo paviršiaus veidrodžiai, V – aliuminio veidrodžiai, D2 – šviesolaidinis spektrometras, D3 – savadarbis prizminis spektrometras.

Išėjusios iš stiprintuvo spinduliuotės kelyje statomas ZnSe kristalas (K), siekiant kompensuoti grupinių greičių dispersiją optiniuose elementuose, naudojamuose signalinės ir šalutinės bangų atskyrimui. Dėl to reali impulso trukmė gali būti mažesnė nei 170 fs. Tuomet impulso energija reguliuojama neutraliu kintamo pralaidumo filtru (NF), keičiant jo padėtį statmenai optinės ašies. Papildomai naudojamas praleidžiamą spektrinį diapazoną reguliuojantis filtras (F), siekiant nufiltruoti iš stiprintuvo išeinančią signalinę bangą. Energija

matuojama energomačiu *Ophir* (D1), patalpinant jį už ZnSe kristalo prieš atliekant matavimą. Glaudžiamuoju  $f = +100$  mm lęšiu (L1), spinduliuotė fokusuojama į 2 mm storio  $\text{CaF}_2$  bandinį (B). Iš jo išėjusi superkontinuumo spinduliuotė kreivu  $r = +2000$  mm veidrodžiu (KV1) fokusuojama ir nukreipama į aliuminio veidrodį (V1).

Atsispindėjusi nuo V1 superkontinuumo spinduliuotė yra dar kartą fokusuojama kreivo paviršiaus veidrodžiu (KV2), kuris ją nukreipia į aliuminio veidrodį V3 bei savadarbį prizminį spektrometrą. Prizminis spektrometras naudojamas spinduliuotės registravimui UV-IR spektriniame diapazone (200-3500 nm). Spektrometre detektavimui naudojami 3 skirtingi puslaidininkiniai detektoriai: Si, kurio registravimo diapazonas yra 200-1000 nm, Ge (700-1800 nm), ir PbSe (1500-4000 nm). Tokiu būdu registruojamas visas superkontinuumo spektras. Impulsų energija pasirenkama taip, kad superkontinuumas būtų generuojamas nepažeidžiant kristalo. Eksperimentui naudojamas pleišto formos (300  $\mu\text{m}$  – 2 mm ilgio)  $\text{CaF}_2$  kristalas, kurio pagrindiniai parametrai pateikiami 1 lentelėje.

Optiniai pažeidimai registruoti naudojantis platų spektrinį diapazoną detektuojančiu Si detektoriumi. Kristalas paveikiamas skirtingų energijų impulsų sekomis (15-30  $\mu\text{J}$ ) ir registruojamas detektoriaus užregistruoto superkontinuumo signalo intensyvumo kitimas atliekant 8000 matavimų. Tokiu būdu galima nustatyti, po kiek atliktų matavimų (po kiek lazerio impulsų) medžiaga yra pažeidžiama. Pažeidimu laikomas toks lazerio impulsų poveikis kristalui, kad smarkiai mažėja generuojamo superkontinuumo signalo intensyvumas – generacija tampa nebeefektyvi dėl kristalo destruktijos arba dėl šviesos sklaidos nuo pažeistos zonos.

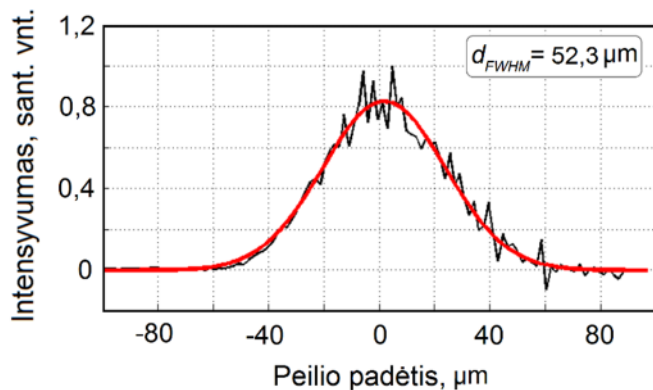
**1 lentelė. Kristalinio bandinio pagrindinės charakteristikos.  $E_g$  – medžiagos draustinė energija,  $F_{Paž}$  - slenkstinis pažeidimo energijos tankis 150 fs trukmės impulsui,  $n_0$  - tiesinis medžiagos lūžio rodiklis,  $n_2$  – netiesinis medžiagos lūžio rodiklis,  $P_{KR}$  – kritinė fokusavimosi galia medžiagoje,  $K$  – daugiafotonės sugerties eilė,  $\lambda_{TR}$  – pralaidumo juostos trumpabangė riba,  $\lambda_{SC}$  – mažiausias bangos ilgis užregistruoto superkontinuumo spektre (trumpabangė riba).**

<i>Medžiaga</i>	$E_g, eV$	$F_{Paž}, J/cm^2$	$n_0$	$n_2, cm^2/W$
$\text{CaF}_2$	10,2 [36]	2,3 [37]	1,43 [36]	$1,9 \cdot 10^{-16}$ [36]
$P_{KR}, MW$	$K$	$\lambda_{TR}, nm$	$\lambda_{SC}, nm$	
1,3	20	135 [37]	280 [37]	

## IV. PAGRINDINIAI REZULTATAI IR JŲ APTARIMAS

Šiame eksperimente superkontinuumas generuojamas įvairios energijos MIR spektrinės srities lazerio impulsais kintamo ilgio  $\text{CaF}_2$  kristale. Šio spektrinio diapazono žadinančio impulso bangos ilgis patenka į  $\text{CaF}_2$  kristalo anomaliosios grupinių geičių dispersijos sritį, kaip matyti iš 8 pav. Eksperimentiniai sugeneruoto superkontinuumo spektrai palyginti su teoriškai sumodeliuotais superkontinuumo spektrais esant trimis skirtingoms žadinančiojo impulso energijoms. Atvejis, kai žadinančiojo impulso energija yra  $6 \mu\text{J}$ , atspindi nelyginių harmonikų formavimąsi be superkontinuumo generacijos, esant  $12,5 \mu\text{J}$  žadinančiojo impulso energijai stebima superkontinuumo generacijos pradžia, o pasiekus  $15 \mu\text{J}$  žadinamas plataus spektro superkontinuumas.

Superkontinuumo generacijai naudojamas lazerio pluoštas, kurio matmenys nustatyti peilio metodu, transliuojant peilį po  $1,7 \mu\text{m}$  ir atliekant apie 130 matavimų. 15 pav. matyti eksperimentiškai užregistruota ir išdiferencijuota kreivė bei jos aproksimacija Gauso funkcija. Eksperimentiškai nustatytas lazerio pluošto diametras yra  $52,3 \mu\text{m}$ .

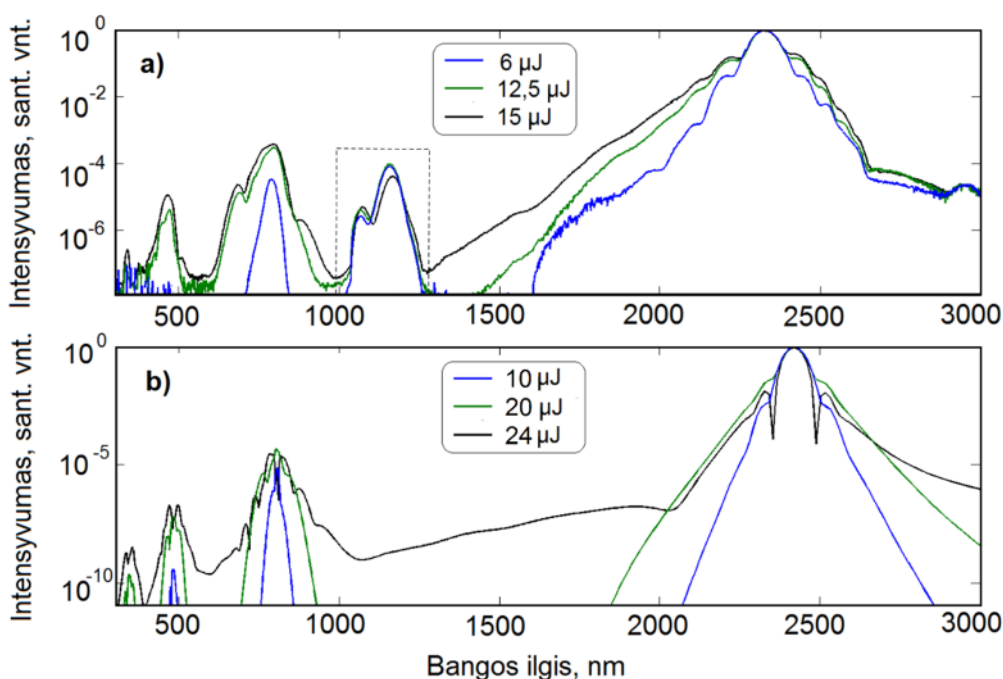


**15. pav. Žadinančiojo pluošto matmenų matavimo peilio metodu rezultatai. Juoda spalva žymi eksperimentiškai užregistruotą kreivę, spalvota – jos aproksimaciją Gauso funkcija.**

Toliau palyginti a) teorinės bei b) eksperimentinės superkontinuumo generacijos spektrai  $2 \text{ mm}$  ilgio  $\text{CaF}_2$  kristale, kai superkontinuumas generuojamas esant įvairioms žadinančiojo impulso energijoms (16 pav.).

Kristale sklindant nedidelės energijos impulsams ( $6 \mu\text{J}$ ), užregistruotame spektre matyti tik sugeneruotos nelyginės pagrindinio dažnio harmonikos, kurių efektyvumas yra žemas dėl didelio fazinio nederinimo. Spektre matyti 3-iosios ir 5-osios harmonikų smailės,

kurių centriniai bangos ilgiai, atitinkamai, yra 800 nm ir 480 nm. Eksperimentiniu atveju, ties 1155 nm matoma intensyvi smailė su dviem viršūnėmis (išskirta brūkšnine linija). Svarbu pažymėti, kad ji atsiranda dėl antrosios harmonikos generacijos vykstančios ZnSe kristale (kuris eksperimento metu naudojamas kompensuoti grupinių greičių dispersijai), o taip pat dėl ne iki galo pašalintos signalinės bangos likučių. Teoriniu atveju šis elementas nėra įskaitytas.



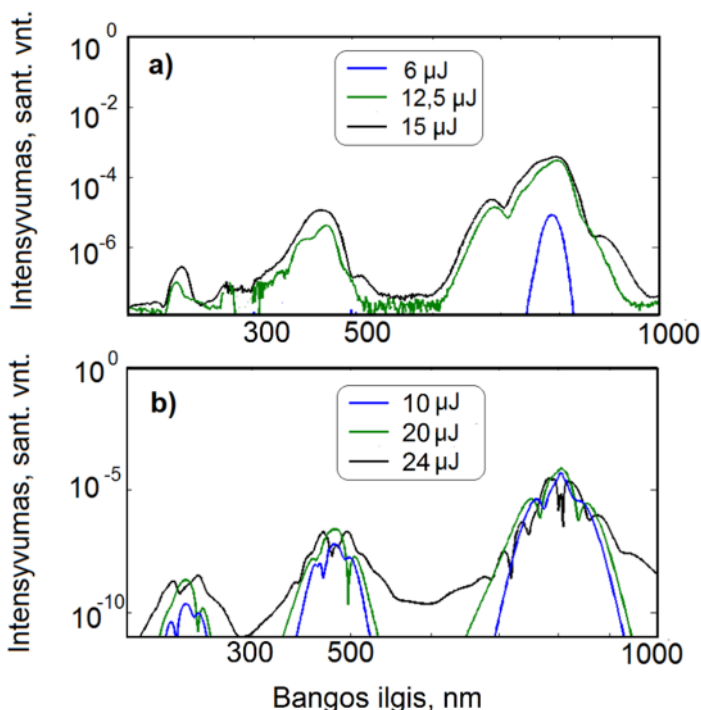
16. pav. Superkontinuumo sugeneruoto  $\text{CaF}_2$  kristale a) eksperimentiniai bei b) teoriškai sumodeliuoti spektrai, esant įvairioms žadinančiojo impulso energijoms.

Kristale sklindant didesnės energijos impulsams ( $12,5 \mu\text{J}$ ), kartu su 3-iosios bei 5-osios harmonikų smailėmis, jau matyti ir spektro plitimas. Tiek teoriniu, tiek eksperimentiniu atveju plitimas vyksta apie žadinantįjį dažnį bei harmonikas, o tą lemia laisvųjų elektronų plazmos formavimasis ir beprasidedanti impulso laikinė spūda. Tačiau spektras nėra vientisas ir superkontinuumo signalo intensyvumas likusioje spektrinėje srityje yra nedidelis - tai yra pereinamasis superkontinuumo generacijos režimas.

Padidinus žadinančiojo impulso energiją ( $15 \mu\text{J}$ ) matyti, kad dar labiau išplinta spektras aplink nešantįjį dažnį, o taip pat ir nelyginių harmonikų spektrai. Kadangi sklidimo metu pasiekiami dideli intensyvumai (keli  $\text{TW}/\text{cm}^2$ ), impulsas dar smarkiau spaudžiasi laike ir ši spūda lemia nelyginių harmonikų spektrinį išplitimą dėl vykstančios kryžminės fazės

moduliacijos. Rezultatas - spektrinis diapazonas tarp harmonikų smailių užsipildo gerokai stipresniu bei intensyvesniu superkontinuumo signalu. Užregistruotame spektre nematyti intensyvių moduliacijų, o taip pat, išryškėja 7-osios harmonikos smailė, esanti UV spektrinėje srityje ties 343 nm. Sugeneruotas superkontinuumas apima 250-3000 nm diapazoną, o jo registravimą ilgabangėje srityje riboja tik naudojamų prietaisų parametrai.

17 pav. išskirta 3-iosios – 7-osios harmonikų apimama spektrinė sritis. Matyti, kad plačiausi harmonikų spektrai 2 mm ilgio  $\text{CaF}_2$  kristale gaunami žadinant superkontinuumą didžiausios energijos impulsais. Eksperimentiškai 7-oji harmonika užregistruota tik 12,5-15  $\mu\text{J}$  žadinančiojo impulso energijų srityje, kadangi žadinant mažesnės energijos impulsais susigeneravusios 7-osios harmonikos intensyvumas yra per mažas jį patikimai registruoti.

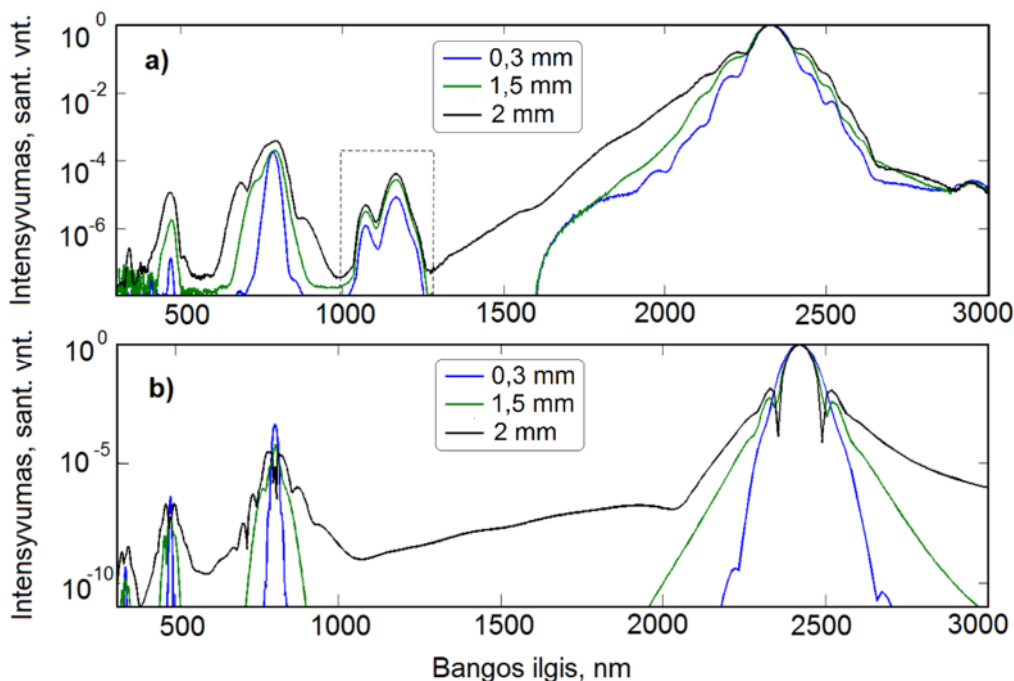


17. pav. Harmonikų, sugeneruotų žadinant superkontinuumą  $\text{CaF}_2$  kristale a) eksperimentiniai bei b) teoriškai sumodeliuoti spektrai, esant įvairioms žadinančiojo impulso energijoms.

Toliau (18 pav.) pateikti a) teorinės bei b) eksperimentinės superkontinuumo generacijos spektrai, kai didelės energijos impulsais superkontinuumas žadinamas įvairaus ilgio netiesinėje terpėje (0,3-2 mm).

Tiek teoriniu, tiek eksperimentiniu atveju matyti, kad didėjant impulso sklidimo keliui atitinkamai labiau plinta ir superkontinuumo spektras. Kai generuojant superkontinuumą impulsas nusklinda 0,3-1,5 mm, nespėja išsivystyti dideli intensyvumai, o tai lemia tik nedidelį susiformavusios laisvųjų elektronų plazmos tankį, kuris yra

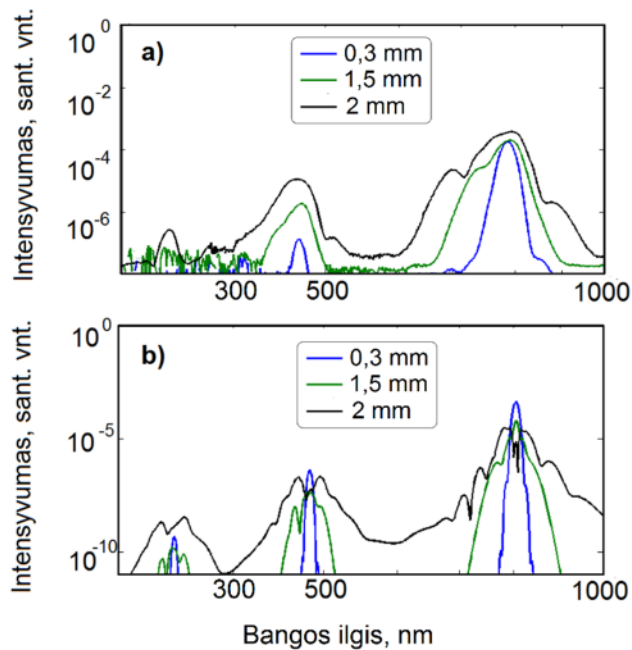
nepakankamas, kad vyktų žadinančiojo impulso spūda.  $\text{TW}/\text{cm}^2$  eilės intensyvumai išsivysto impulsui nusklidus  $\sim 2$  mm ir tik tada pasireiškia pakankamas plazmos indukuotas impulso trukmės trumpėjimas, kuris lemia smarkų spektrinį išplitimą ir superkontinuumo generaciją.



**18. pav. Superkontinuumo sugeneruoto  $\text{CaF}_2$  kristale a) eksperimentiniai bei b) teoriškai sumodeliuoti spektrai, esant įvairiems netiesinės terpės ilgiams.**

19 pav. išskirta 3-iosios – 7-osios harmonikų apimama spektrinė sritis. Matyti, kad plačiausi harmonikų spektrai gaunami žadinant superkontinuumą ilgoje terpėje. Nors teoriškai 7-oji harmonika turėtų generuotis impulsui nusklidus ir 0,3-0,5 mm, tačiau tokiu atveju jos intensyvumas yra per daug mažas, kad ją būtų galima patikimai registruoti (kaip ir esant mažai žadinančiojo impulso energijai).

Taigi, maža žadinančiojo impulso energija (žr. 16 pav.) arba trumpas netiesinės terpės ilgis (žr. 18 pav.) turi tą pačią įtaką superkontinuumo (ir harmonikų) generacijos efektyvumui mažėjimui, o norint sugeneruoti intensyvią bei plataus spektro superkontinuumą, reikia galingų impulsų ir pakankamai ilgos netiesinės terpės.

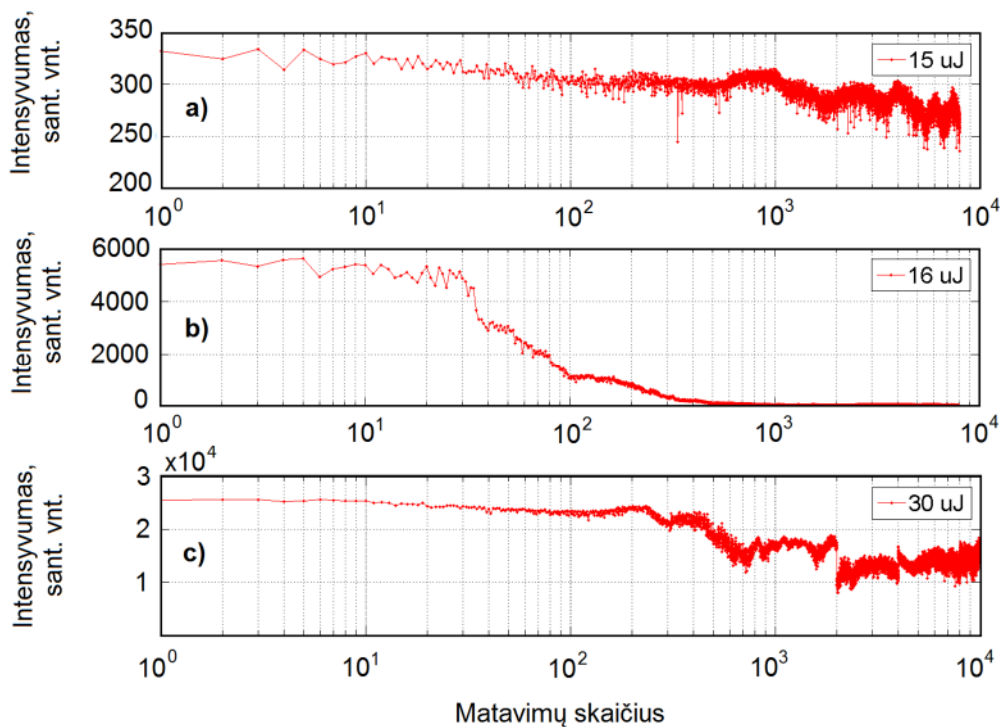


**19. pav. Harmonikų, sugeneruotų žadinant superkontinuumą CaF<sub>2</sub> kristale a) eksperimentiniai bei b) teoriškai sumodeliuoti spektrai, esant įvairiems netiesinės terpės ilgiams.**

Toliau pateikiami lazerio sukkelto optinio pažeidimo matavimų rezultatai, esant skirtingoms žadinančiojo impulso energijoms, ir tokioms pat eksperimento sąlygomis. Visais atvejais bandinys veikiamas skirtingų energijų impulsų sekomis ir registruojamas superkontinuumo signalas VIS-IR spektrinėje srityje. Reikia pabrėžti, kad šio eksperimento sąlygomis esantis lazerio impulso energijos tankis ( $0,27 \text{ J/cm}^2$ ) yra 8,5 karto mažesnis nei slenkstinis CaF<sub>2</sub> kristalo pažeidimo energijos tankis  $F_{paž}$ , todėl priekinis paviršius nėra pažeidžiamas.

20 pav. a) matyti detektoriaus užfiksuotas spinduliuotės intensyvumas atliekant 8000 matavimų, kai žadinančiojo impulso energija yra 15  $\mu\text{J}$ . Kaip ir tikėtasi, paveikus bandinį vienu ar keliais impulsais, joks optinis pažeidimas neišsivysto. Plačiame spektriniame diapazone detektoriaus užfiksuotas spinduliuotės intensyvumas beveik nekinta ir po kelių šimtų impulsų, nepaisant tam tikrų signalo fliktuacijų. Ties šia žadinančiojo impulso energija, tikslaus lazerio impulsų kiekio reikalingo optiškai pažeisti kristalą, neįmanoma nustatyti, bet laikoma, kad kristalas išlieka optiškai nepažeistas paveikus ne mažiau kaip 10000 lazerio impulsų.





**20. pav. Superkontinuumo sugeneruoto  $\text{CaF}_2$  kristale signalo amplitudės ilgalaikiai matavimo rezultatai plačiame spektriniame diapazone, esant įvairioms žadinančiojo impulso energijoms: a) 15  $\mu$ J, b) 16  $\mu$ J ir c) 30  $\mu$ J.**

Visgi, po tam tikros ekspozicijos trukmės kai impulso energija didesnė, kristale indukuojami pažeidimai. 20 pav. b) pavaizduota kaip keičiasi sugeneruoto superkontinuumo signalo intensyvumas per 8000 lazerio šuvių, žadinant impulsais kurių energija 16  $\mu$ J. Matyti, kad signalas akivaizdžiai silpsta paveikus  $\sim 35$  impulsais, o tai reiškia, jog prasideda kristalo galinio paviršiaus pažeidimas ir superkontinuumo generacija tampa nebeefektyvi dėl pakitusių kristalo optinių savybių. Peržengus 200-300 impulsų ribą superkontinuumo signalo intensyvumas tampa nykstamai mažas, o pažeidimas - negrįžtamas. Žadinant superkontinuumą impulsais kurių energija 17-24  $\mu$ J (paveiksle nepavaizduota), pažeidimo slenkstis taip pat aiškiai apibrėžtas. Galioja tie patys dėsniniai ypatumai kaip ir 16  $\mu$ J energijos atveju ir pažeidimas vystosi po 30-40 lazerio impulsų.

Žadinant superkontinuumą 30  $\mu$ J energijos impulsais (20 pav. c)), matyti kitokie pažeidimo dėsniniai ypatumai. Atlikus 8000 matavimų pastebėta, jog pažeidimui reikiamas impulsų kiekis nėra toks akivaizdus kaip žadinant superkontinuumą 16-24  $\mu$ J energijos impulsais. Šiuo atveju pažeidimas vystosi lėtai, ir signalui nykstamai sumažėti prireikia daugiau impulsų.

Toks pažeidimo dinamikos pokytis gali būti sąlygotas didelės energijos impulso sklidimo metu besiformuojančio tūrinio kristalo pažeidimo. Nedaug viršijus 15  $\mu\text{J}$  energiją, pažaida vyksta kristalo galiniame paviršiuje, tačiau viršijus dvigubai, keičiasi pažaidos vieta.

Taigi, žadinant superkontinuumą impulsais, kurių energija yra 15  $\mu\text{J}$ , pavyksta optiškai nepažeisti kristalo, tačiau nustatyta, kad generuojama itin arti pažaidos slenksčio. Žadinant superkontinuumą impulsais, kurių energija 16-24  $\mu\text{J}$ , pažeidimas išsivysto po 30-40 lazerio impulsų. Žadinant superkontinuumą 30  $\mu\text{J}$  lazerio impulsais, matyti, kad optinio pažeidimo vieta kinta, ir kristalas pažeidžiamas ne momentiška paviršuje, o ilgai vystosi jo tūrinis pažeidimas.

## V. IŠVADOS

Ištirta superkontinuumo generacija  $\text{CaF}_2$  kristale, žadinant 170 fs trukmės, 2,4  $\mu\text{m}$  bangos ilgio impulsais. Nustatyta, kad pasirinkus optimalias eksperimento sąlygas, galima sužadinti 250-3000 nm apimantį superkontinuumą  $\text{CaF}_2$  kristale, išvengiant optinio terpės pažeidimo.

Nustatyta, kad kristale sklindant nedidelės energijos lazerio impulsams, generuojamos tik 3-ioji, 5-oji ir 7-oji pagrindinio dažnio harmonikos dėl kubinio netiesinio terpės atsako bei Kerr'o netiesiškumo, esant dideliame faziniam nederinimui. Padidinus žadinančiojo impulso energiją, pasikeičia netiesinės sąveikos mechanizmas. Žadinančiojo impulso spūda įvyksta dėl laisvųjų elektronų plazmos poveikio, o ne dėl grupinių greičių dispersijos ir fazinės moduliacijos sąveikos, todėl vyksta esmingas nelyginių harmonikų spektrinis išplitimas dėl vykstančios kryžminės fazės moduliacijos.

Nustatyta, kad keliolika-keliasdešimt procentų viršijus 15  $\mu\text{J}$  žadinančiojo impulso energiją, generuojant superkontinuumą pažaida išsivysto po 30-40 impulsų. Žadinant superkontinuumą 30  $\mu\text{J}$  lazerio impulsais, pažeidimui reikiamas impulsų kiekis tampa neapibrėžtas, kadangi kinta optinio pažeidimo vieta, ir kristalas pažeidžiamas ne momentiška paviršuje, o ilgai vystosi jo tūrinis pažeidimas.

## VI. LITERATŪROS SĄRAŠAS

- [1] R. R. Alfano, S. L. Shapiro, Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 584–587 (1970).
- [2] R. L. Fork, C. V. Shank, C. Hirlimann, R. Yen, W. J. Tomlinson, Femtosecond white-light continuum pulses, *Opt. Lett.* **8**, 1-3 (1983).
- [3] A. Brodeur, S. L. Chin, Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 637-650 (1999).
- [4] J. M. Dudley, G. Genty, Supercontinuum light, *Phys. Today* **66**, 29-34 (2013).
- [5] K. D. Moll, A. L. Gaeta, Role of dispersion in multiple-collapse dynamics, *Opt. Lett.* **29**, 995–997 (2004).
- [6] M. Kolesik, E. M. Wright, J. V. Moloney, Interpretation of the spectrally resolved far field of femtosecond pulses propagating in bulk nonlinear dispersive media, *Opt. Express* **13**, 10729–10741 (2005).
- [7] M. A. Porras, A. Parola, P. Di Trapani, Nonlinear unbalanced o waves: nonsolitary, conical light bullets in nonlinear dissipative media, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 1406 (2005).
- [8] A. V. Mitrofanov, A. A. Voronin, D. A. Sidorov-Biryukov, A. Pugžlys, E. A. Stepanov, G. Andriukaitis, T. Flöry, S. Ališauskas, A. B. Fedotov, A. Baltuška, A. M. Zheltikov, Mid-infrared laser filaments in the atmosphere, *Sci. Rep.* **5**, 8368 (2015).
- [9] A. V. Mitrofanov, A. A. Voronin, S. I. Mitryukovskiy, D. A. Sidorov-Biryukov, A. Pugžlys G. Andriukaitis, T. Flöry, E. A. Stepanov, A. B. Fedotov, A. Baltuška, A. M. Zheltikov, Mid-infrared-to-mid-ultraviolet supercontinuum enhanced by third-to-fifteenth odd harmonics, *Opt. Lett.* **40**, 2068–2071 (2015).
- [10] A. Dubietis, *Netiesinė optika, Vilniaus universitetas* (2011).
- [11] A. Jarnac, G. Tamošauskas, D. Majus, A. Houard, A. Mysyrowicz, A. Couairon, A. Dubietis, The whole life cycle of femtosecond ultraviolet filaments in water, *Phys. Rev. A* **89**, 033809 (2014).

- [12] R.Y. Chiao, E. Garmire, C.H. Townes, Self-trapping of optical beams, *Phys. Rev. Lett.* **13**, 479 (1964).
- [13] V.I. Talanov, Self-focusing of wave beams in nonlinear media, *JETP Lett.-USSR* **2**, 138 (1965).
- [14] P.L. Kelley, Self-focusing of optical beams, *Phys. Rev. Lett.* **15**, 1005 (1965).
- [15] R.W. Boyd, S.G. Lukishova, Y.R. Shen, Self-focusing: Past and Present, *Springer* (2009).
- [16] A. Dubietis, E. Gaižauskas, G. Tamošauskas, P. Di Trapani, Light Filaments without Self-Channeling, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 253903 (2004).
- [17] K.D. Moll, A.L. Gaeta, Role of dispersion in multiple-collapse dynamics, *Opt. Lett.* **29**, 995 (2004).
- [18] Y. Silberberg, Collapse of optical pulses, *Opt. Lett.* **15**, 1282 (1990).
- [19] D. Faccio, A. Couairon, P. Di Trapani, Conical Waves, Filaments and Nonlinear Filamentation Optics, *Arcane* (2007).
- [20] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, M. D. Perry, Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics, *Phys. Rev. B* **53**, 1746-1761 (1996).
- [21] W. Lee Smith, P. Liu, N. Bloembergen, Superloadening 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**, 2396-2403 (1977)
- [22] Couairon, A. Mysyrowicz, Femtosecond filamentation in transparent media, *Phys. Rep.* **441**, 47-189 (2007).
- [23] V. Jukna, J. Galinis, G. Tamošauskas, D. Majus, A. Dubietis, Infrared extension of femtosecond supercontinuum generated by filamentation in solid state media, *Appl. Phys. B* **116**, 477-483 (2014).
- [24] J. Darginavičius, D. Majus, V. Jukna, N. Garejev, G. Valiulis, A. Couairon, A. Dubietis, Ultrabroadband supercontinuum and third-harmonic generation in bulk solids with two optical-cycle carrier-envelope phase-stable pulses at 2 μm, *Opt. Express* **21**, 25210-25220 (2013).

- [25] M. Bradler, P. Baum, E. Riedle, Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- $\mu\text{J}$  pump pulses, *Appl. Phys. B* **97**, 561–574 (2009).
- [26] D. Faccio, A. Averchi, A. Lotti, M. Kolesik, J. B. Moloney, A. Couairon, P. Di Trapani, Generation and control of extreme blueshifted continuum peaks in optical Kerr media, *Phys. Rev. A* **78**, 033825-1 - 033825-6 (2008).
- [27] A. Couairon, V. Jukna, J. Darginavičius, D. Majus, N. Garejev, et al., Filamentation and Pulse Self-compression in the Anomalous Dispersion Region of Glasses. Andre D. Bandrauk; Emmanuel Lorin; Jerome V. Moloney. Laser Filamentation, *Springer International Publishing*, 147-165 (2016).
- [28] D. Faccio, M. Porras, A. Dubietis, F. Bragheri, A. Couairon, and P. Di Trapani, Conical emission, pulse splitting and X-wave parametric amplification in nonlinear dynamics of ultrashort light pulses, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 193901 (2006).
- [29] D. Faccio, A. Matijosius, A. Dubietis, R. Piskarskas, A. Varanavičius, E. Gaižauskas, A. Piskarskas, A. Couairon, P. Di Trapani, Near and far-field evolution of laser pulse filaments in Kerr media, *Phys. Rev. E* **72**, 037601 (2005).
- [30] D. Faccio, A. Averchi, A. Lotti, P. Di Trapani, A. Couairon, D. Papazoglou, S. Tzortzakis, Ultrashort laser pulse filamentation from spontaneous X-wave formation in air, *Opt. Express* **16**, 1565 (2008).
- [31] D. Faccio, M. A. Porras, A. Dubietis, G. Tamošauskas, E. Kučinskas, A. Couairon, P. Di Trapani, Angular and chromatic dispersion in Kerr-driven conical emission. *Opt. Commun.* **265**, 672–677 (2006).
- [32] Algirdas Petras Stabinis, Gintaras Valiulis, Ultratrumpųjų šviesos impulsų netiesinė optika, *Vilniaus Universitetas* (2008).
- [33] F. Silva, D.R. 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).
- [34] N. Garejev, I. Gražulevičiūtė, D. Majus, G. Tamošauskas, V. Jukna, A. Couairon, A. Dubietis, Third- and fifth-harmonic generation in transparent solids with few-optical-cycle midinfrared pulses, *Phys. Rev. A* **89**, 033846 (2014).

[35] V. Roppo, M. Centini, C. Sibilìa, M. Bertolotti, D. de Ceglia, M. Scalora, N. Akozbek, M. J. Bloemer, J. W. Haus, O. G. Kosareva, 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).

[36] M. J. Webber, Handbook of Optical Materials, *CRC Press LLC* (2003).

[37] T. Q. Jia, H. X. Chen, M. Huang, F. L. Zhao, X. X. Li, S. Z. Xu, H. Y. Sun, D. H. Feng, C. B. Li, X. F. Wang, R. X. Li, Z. Z. Xu, X. K. He, H. Kuroda, Ultraviolet-infrared femtosecond laser-induced damage in fused silica and CaF<sub>2</sub> crystals, *Phys. Rev. B* **73**, 054105 (2006).

## VII. SANTRAUKA

Milda Veličkė

### Nelyginėmis harmonikomis praturtinto superkontinuumo generacija $\text{CaF}_2$ kristale

Skaidrioje terpėje sklindant galingiems ultratrumpiesiems lazerio impulsams, dėl įvairių netiesinių efektų tarpusavio sąveikos, pradinio impulso forma smarkiai pasikeičia. Impulso spektro transformacija pasireiškia kaip unikalus netiesinės optikos reiškinys – superkontinuumo generacija. Pagrindinis bruožas, lemiantis įvairias superkontinuumo panaudojimo sritis, yra jo aukštas laikinis ir erdvinis koherentiškumas bei galimybė derinti ar kitaip keisti jo spektrines charakteristikas. Vienas svarbiausių ultratrumpiais impulsais generuojamo superkontinuumo pritaikymų yra optinio parametrinio stiprinimo sistemose, kuriose superkontinuumas naudojamas kaip užkrato signalas. Visgi, femtosekundinių šviesos pluoštų fokusavimosi dinamika skaidriose dielektrinėse terpėse anomaliosios dispersijos srityje, yra mažai tirtas reiškinys. Šio darbo tikslas yra ištirti femtosekundiniais lazerio impulsais žadinamo superkontinuumo spektro plėtros ir generacijos dėsningumus  $\text{CaF}_2$  kristale anomaliosios dispersijos srityje, bei surasti sąlygas superkontinuumo generavimui ultravioletinėje - vidurinėje infraraudonojoje spektro srityje optiškai nepažeidžiant netiesinės terpės. Žadinant superkontinuumą  $\text{CaF}_2$  kristale 170 fs trukmės, 2,4  $\mu\text{m}$  bangos ilgio impulsais ir pasirinkus optimalias eksperimento sąlygas, įmanoma sugeneruoti superkontinuumą apimančią 250-3000 nm spektrinį diapazoną, išvengiant optinio terpės pažeidimo. Nustatyta, kad kristale sklindant nedidelės energijos lazerio impulsams, generuojamos nelyginės 3-ioji, 5-oji ir 7-oji harmonikos. Esant didelės energijos lazerio impulsams vyksta jų laikinė spūda, kuri kartu lemia esmingą nelyginių harmonikų spektrinį išplitimą dėl vykstančios kryžminės fazės moduliacijos. Nustatyta, kad spūda vyksta ne dėl grupinių greičių dispersijos bei fazinės moduliacijos sąveikos, o dėl susiformavusios laisvųjų elektronų plazmos poveikio. Nustatyta, kad keliolika-keliasdešimt procentų viršijus 15  $\mu\text{J}$  žadinančiojo impulso energiją, generuojant superkontinuumą kristalo pažaida išsivysto po 30-40 lazerio impulsų. Žadinant superkontinuumą 30  $\mu\text{J}$  lazerio impulsais, pažeidimui reikiamas impulsų kiekis tampa neapibrėžtas, kadangi kinta optinio pažeidimo vieta, ir kristalas pažeidžiamas ne momentiška paviršuje, o ilgai vystosi jo tūrinis pažeidimas.



## VIII. SUMMARY

**Milda Veličkė**

### **Odd-harmonics enhanced supercontinuum generation in CaF<sub>2</sub> crystal**

The propagation of high intensity ultrashort laser pulses in transparent media results in a distinct transformation of the initial pulse due to the interplay of various nonlinear processes. Strong spectral broadening manifests itself as a white light continuum, also known as supercontinuum, generation. The most important feature that employs supercontinuum in various fields of application is its high spatial and temporal coherence and the possibility to modify its spectral characteristics. One of the main applications of supercontinuum is directed to the development of optical parametric amplifiers, where it serves as a seed signal. However, the focusing dynamics of femtosecond pulses in transparent dielectric media in anomalous dispersion region, is still poorly investigated topic. The aim of this study was to investigate femtosecond supercontinuum generation in CaF<sub>2</sub> crystal and determine exact conditions allowing to achieve spectral broadening in the ultraviolet – mid-infrared spectral region without the optical damage of the nonlinear medium. It was shown that a broadband supercontinuum, spanning more than 4 octaves, can be generated in CaF<sub>2</sub> crystal using 170 fs, 2,4 μm laser pulses with no optical damage observed. It was also demonstrated, that with low energy pulses the output spectrum only consists of 3<sup>rd</sup>, 5<sup>th</sup> and 7<sup>th</sup> odd harmonics. However, using more energetic pulses the transition from Kerr-driven to plasma-driven filamentation regime is observed. Plasma-driven filamentation leads to temporal compression of the driving pulse which induces spectral superbroadening around the carrier wavelength and large scale spectral broadening of the individual harmonics spectra. It was determined that exceeding 15 μJ pump pulse energy results in the optical damage of the output face of the crystal after 30-40 laser shots; while at higher input energy the optical damage develops in the volume.

Šio darbo rezultatų pagrindu yra parašytas mokslinis straipsnis - N. Garejev, V. Jukna, G. Tamošauskas, M. Veličkė, R. Šuminas, A. Couairon, A. Dubietis, Odd harmonics-enhanced supercontinuum in bulk solid-state dielectric media, *Opt. Express*, pateikta redakcijai.

Kitos mokslinės publikacijos:

Straipsniai:

1. I. Gražulevičiūtė, M. Skeivytė, E. Keblytė, J. Galinis, G. Tamošauskas, A. Dubietis, Supercontinuum generation in YAG and sapphire with picosecond laser pulses, *Lith. J. Phys.* **55**, 110–116 (2015)

Pranešimai:

1. G. Tamošauskas, J. Galinis, I. Gražulevičiūtė, E. Keblytė, M. Skeivytė, V. Jukna, A. Dubietis, Filamentation and supercontinuum generation with picosecond laser pulses in YAG crystal, *41-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija* (2015)
2. M. Skeivytė, I. Gražulevičiūtė, J. Galinis, G. Tamošauskas, V. Jukna, A. Dubietis, Supercontinuum generation in solid-state dielectric media with picosecond laser pulses, *Open Readings 59th International Conference for Students of Physics and Natural Sciences* (2015)
3. M. Skeivytė, I. Gražulevičiūtė, J. Galinis, G. Tamošauskas, V. Jukna, A. Dubietis, Supercontinuum generation in solid-state dielectric media with picosecond laser pulses, *Naujametė fizikos konferencija LT $\phi$*  (2015)