VILNIAUS UNIVERSITETAS FIZIKOS FAKULTETAS KVANTINĖS ELEKTRONIKOS KATEDRA

Rosvaldas Šuminas

SUPERKONTINUUMO SPEKTRO VALDYMAS PASITELKIANT PAKOPINĮ KVADRATINĮ NETIESIŠKUMĄ

Magistrantūros studijų baigiamas
is darbas

(studijų programa – LAZERINĖ FIZIKA IR OPTINĖS TECHNOLOGIJOS)

Studentas	Rosvaldas Šuminas
Darbo vadovas	prof. habil. dr. (HP) Audrius Dubietis
Recenzentas	doc. dr. Aidas Matijošius
Katedros vedėjas	prof. habil. dr. Valdas Sirutkaitis

Turinys

1	Įvadas			2	
2	Teorinis įvadas			4	
	2.1 Elektroninio netiesiškumo prigimtis			4	
	2.2 Šviesos impulsų ir pluoštų saviveika			6	
		2.2.1	Netiesinio Kero lūžio rodiklio prigimtis	6	
		2.2.2	Šviesos pluoštų fokusavimasis	7	
		2.2.3	Šviesos impulsų fazės moduliavimasis	8	
2.3 Superkontinuumo generacija			xontinuumo generacija	10	
		2.3.1	Normaliosios grupinių greičių dispersijos atvejis	12	
		2.3.2	Anomaliosios grupinių greičių dispersijos atvejis	13	
	2.4	Kvadra	atinio netiesiškumo sąlygojami reiškiniai	14	
		2.4.1	Antrosios harmonikos generacija	14	
		2.4.2	Netiesinis pakopinis lūžio rodiklis	16	
3	Darbo	rezultat	tai ir jų aptarimas	19	
3.1 Netiesinio pakopinio lūžio rodiklio įtakos įvertinimas			inio pakopinio lūžio rodiklio įtakos įvertinimas	19	
3.2 Superkontinuumo generacijos spektrinės dinamikos bei		Superl	kontinuumo generacijos spektrinės dinamikos bei laikinių savybių tyrimas	21	
		3.2.1	Eksperimento schema	21	
		3.2.2	Spektrinės dinamikos tyrimas žadinant paprastosios poliarizacijos spin-		
			duliuote	23	
		3.2.3	${\rm Antrosios\ harmonikos\ generacijos\ itaka\ superkontinuumo\ generacijos\ spekt-}$		
			rinei evoliucijai	28	
		3.2.4	Superkontinuumo generacijos slenkstinė energija žadinant paprastosios		
			bei nepaprastosios poliarizacijos spinduliuote	29	
		3.2.5	Superkontinuumo impulsų laikinių parametrų tyrimas	30	
4	Išvados		32		
5	Santrauka			33	
6	Summary			34	
7	7 Publikacijos			35	
8	Pranešimai konferencijose				
Lit	Literatūros sąrašas				

1 Įvadas

Superkontinuumo, dažnai vadinamo baltos šviesos kontinuumu, generacija yra vienas iš įspūdingiausių netiesinės optikos reiškinių, kurio metu, intensyviam ultratrumpajam lazerio impulsui sąveikaujant su skaidria dielektrine terpe, stebimas erdviškai ir laikiškai koherentinės labai plataus dažnių spektro spinduliuotės atsiradimas. Dėl šių savybių superkontinuumas yra plačiai naudojamas spektroskopijoje [1], mikroskopijoje [2], metrologijoje [3] bei kaip užkrato signalas optiniuose parametriniuose stiprintuvuose [4] ir faziškai moduliuotų šviesos impulsų parametriniuose stiprintuvuose [5].

Superkontinuumo generacija kietakūnėse dielektrinėse terpėse yra glaudžiai susijusi su šviesos gijų formavimusi ir stebima dėl daugelio netiesinių bei tiesinių reiškinių, tokių kaip impulsų fazės moduliavimosi, šviesos pluoštų fokusavimosi, daugiafotonės sugerties, keturbangio dažnių maišymo, smūginių bangų formavimosi, difrakcijos ir dispersijos tarpusavio saveikos. Itin didelę itaką turi terpės grupinių greičių dispersijos ženklas, lemiantis visiškai skirtingas superkontinuumo generacijos metu besiformuojančio bangų paketo erdvines, laikines bei spektrines savybes. Kai žadinančiojo impulso nešantysis dažnis pakliūva į terpės anomaliosios grupinių greičių dispersijos sritį, dėl priešingo fazės moduliavimosi bei grupinių greičių dispersijos poveikio fokusavimasis vyksta ne tik erdvėje, tačiau ir laike (impulso spūda) [6]. Tai lemia šviesos kulkų erdvėlaikinių darinių, pasižyminčių subdifrakcinių bei subdispersinių sklidimu netiesinėje terpėje [7], gaubtinės nešlio fazės stabilumu [8] bei savaimine centrinės smailės rekonstrukcija [9] - formavimasi bei itin plataus simetriškai plintančio, siekiančio net kelias oktavas superkontinuumo generacija [10]. Tuo tarpu normaliosios grupinių greičių dispersijos srityje stebimas impulso skilimas į du subimpulsus [11, 12], asimetrinis spektro plitimas į aukštesniųjų dažnių pusę [13,14], kūginių X-bangų [15] bei, esant didelėms galioms, palyginti trumpų, pasižyminčių daugybe fokusavimosi ciklų, šviesos gijų formavimasis [6].

Visgi, iki šiol didžioji dauguma tyrimų buvo atliekami tik centrosimetrinėse arba izotropinėse terpėse, kuriose superkontinuumo generacijos valdymo galimybės yra labai ribotos. Kita vertus, terpėse, pasižyminčiose kvadratiniu netiesiškumu, esant faziniam nederinimui, galima pakopinė antrosios harmonikos generacija, kurios metu vyksta nuolatiniai energijos mainai tarp pagrindinio dažnio bei antrosios harmonikos spinduliuotės. Šio proceso metu pagrindinio dažnio spinduliuotė patiria fazės poslinkį, kuris imituoja Kero netiesiškumą dėl savojo netiesinio lūžio rodiklio bei gali būti aprašomas pasitelkiant pakopinį netiesinį lūžio rodiklį [16–18]. Kadangi pakopinės antrosios harmonikos generacijos sąlygos gali būti lengvai kontroliuojamos keičiant fazinį nederinimą, tai suteikia unikalią galimybę valdyti terpės efektinį netiesinį lūžio rodiklį bei tuo pačiu superkontinuumo spektrinę dinamiką. Ši tyrimų sritis jau sulaukė nemažo mokslininkų susidomėjimo - pademonstruotas pluošto fokusavimasis bei defokusavimasis keičiant fazinį nederinimą beta bario borato (β -BBO) kristale [19], pirmojo femtosekundinio superkontinuumo generacija kalio divandenilio fosfato (KDP) kristale [20], itin plataus superkontinuumo generacija ličio niobato (LN) kristale [21], laikinių solitonų generacija, esant neigiamam efektiniam netiesiniam lūžio rodikliui [22, 23], kūginės spinduliuotės bei pikosekundinio superkontinuumo erdvinių bei spektrinių savybių valdymas [24, 25]. Be to, žinoma, jog fazinio nederinimo pokytis kvadratinio netiesiškumo terpėse gali būti panaudotas ultratrumpųjų impulsų fronto statėjimui kontroliuoti [26, 27]. Nepaisant to, femtosekundinio superkontinuumo valdymo galimybės kvadratiniu netiesiškumu pasižyminčiose terpėse kol kas vis dar tėra menkai ištirtos, o detalesni tyrimai atlikti tik anomaliosios grupinių greičių dispersijos srityje [28]. Šių tyrimų metu pademonstruota bene du kartus sumažėjusi slenkstinė superkontinuumo generacijai reikalinga energija, savaiminė impulsų spūda iki kelių kartų bei šviesos kulkų formavimasis, tačiau tik ribotos spektro kontrolės galimybės. Kita vertus, normaliosios grupinių greičių dispersijos srityje, kurioje analogiški tyrimai nėra atlikti, fazinis nederinimas gali įtakoti impulso skilimo dinamiką, o tuo pačiu ir įgalinti superkontinuumo spektrinių savybių valdymą.

Taigi, šio darbo pagrindinis tikslas yra pademonstruoti, jog kvadratiniu netiesiškumu pasižyminčiose terpėse superkontinuumą žadinant impulsais, kurių nešantysis dažnis patenka į medžiagos normaliosios grupinių greičių dispersijos sritį, galima nesudėtinga šviesos saviveikos dinamikos ir jos lemiamo spektro plėtros kontrolė.

2 Teorinis įvadas

2.1 Elektroninio netiesiškumo prigimtis

Elektromagnetinei spinduliuotei sklindant skaidrioje dielektrinėje terpėje, kurios bendras krūvis yra neutralus, jos vidinis krūvių pasiskirstymas yra sutrikdomas [29]. Dielektriką sudarančių atomų elektronų debesėliai veikiami elektromagnetinio lauko pasislenka branduolių atžvilgiu – atsiranda dipoliai, o kartu ir dipolinis momentas $\vec{\mu}(t)$, kintantis elektrinio lauko dažniu:

$$\vec{\mu}(t) = q\vec{x}(t),\tag{1}$$

čia $q - kr \bar{u} vis$, $\vec{x}(t) - atstumas tarp dipolio kr \bar{u} vių$.

Tokiu atveju indukuotas poliarizuotumas (medžiagos tūrio vieneto dipolinis momentas) bus lygus:

$$\vec{P}(t) = N < \vec{\mu}(t) >, \tag{2}$$

čia N – dipolių skaičius tūrio vienete, $\langle \vec{\mu}(t) \rangle$ - suvidurkinti visų dipolių dipoliniai momentai.

Akivaizdu, jog remiantis priežastingumo principu poliarizuotumas turi būti ir medžiagą veikiančio elektrinio lauko funkcija. Tiesinėje optikoje šis sąryšis yra tiesinis elektrinio lauko stiprio atžvilgiu ir gali būti išreiškiamas tokiu pavidalu:

$$\vec{P}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}(t), \qquad (3)$$

čia ε_0 – vakuumo dielektrinė skvarba, $\chi^{(1)}$ – medžiagos tiesinis optinis jautris, $\vec{E}(t)$ – laike greitai kintantis elektrinis laukas.

Visgi, siekiant aprašyti netiesinės optikos reiškinius tenka atsižvelgti į elektroninį netiesiškumą, kurio prigimtis gali būti aiškinama nagrinėjant vieno atomo atsaką į elektromagnetinį lauką. Laikant, kad atomas turi tik vieną rezonansinį dažnį ir kad visi optiniai dažniai yra daug mažesni už jį, netiesiniai, taip kaip ir tiesiniai reiškiniai paprasčiausiai gali būti aprašomi taikant Lorenco atomo modeli, kuriame elektronas yra laikomas harmoniniu osciliatoriumi [30]. Elektrono, judančio pastoviame branduolio sukurtame lauke, efektinė potencinė energija pateikiama 1 pav. Elektronui judant silpname išoriniame elektriniame lauke, elektronas potencinėje duobėje juda taško r = p aplinkoje, kur p – taškas, kuriame efektinė potencinė energija yra minimali. Šiuo atveju efektinę potencinės energijos funkciją galima skleisti Teiloro eilute ir apsiriboti skleidiniu iki antros eilės narių. Nuokrypis nuo taško r = p tokiu atveju nėra didelis, tokio osciliatoriaus svyravimai artimi harmoniniams, o medžiagos poliarizuotumas aprašomas (3) išraiška. Esant pakankamai dideliam elektrinio lauko stipriui, elektrono svyravimai apie tašką r = p nebegali būti laikomi mažais ir tokiu atveju efektinės potencinės energijos funkcijos skleidinyje reikia įskaityti ir aukštesnius skleidimo Teiloro eilute narius. Tokiu atveju gauname anharmoninius osciliatoriaus svyravimus, o poliarizacinis atsakas gali būti išreiškiamas pasinaudojant trikdiniu artiniu [31].

Laikant, jog netiesinė poliarizuotumo dalis maža, medžiaga skaidri, o atsakas yra momen-



1 pav. Elektrono efektinė potencinė energija

tinis ir skleidžiant poliarizuotumą elektrinio lauko stiprio laipsnių eilute, galima gauti tokio pavidalo skleidinį:

$$\vec{P}(t) = \varepsilon_0[\chi^{(1)}\vec{E}(t) + \chi^{(2)}\vec{E}^2(t) + \chi^{(3)}\vec{E}^3(t) + \dots] \equiv \vec{P}^{(1)}(t) + \vec{P}^{(2)}(t) + \vec{P}^{(3)}(t) + \dots$$
(4)

čia $\chi^{(2)}$ ir $\chi^{(3)}$ – atitinkamai antros ir trečios eilės netiesiniai optiniai jautriai, vadinami atitinkamai kvadratiniu bei kubiniu dielektriniu jautriu. Bendru atveju $\chi^{(1)}$ yra antrojo rango tenzorius, $\chi^{(2)}$ – trečiojo ir t.t. Pirmasis narys $\vec{P}^{(1)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}(t)$ nusako tiesinėms terpėms būdingus reiškinius, tokius kaip medžiagos dispersija bei sugertis, o antrasis narys $\vec{P}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E}^2(t)$ nusako reiškinius, kurie vyksta kvadratiniu netiesiškumu pasižyminčiose terpėse (tokius kaip antrosios harmonikos, skirtuminio, suminio dažnio generacija ir t.t.). Narys, proporcingas trečiajam elektrinio lauko laipsniui $\vec{P}^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E}^3(t)$ yra nelygus nuliui visose medžiagose ir lemia tokių reiškinių, kaip priverstinės Ramano sklaidos, keturbangės parametrinės sąveikos ar šviesos pluoštų ir impulsų saviveikos atsiradimą. Akcentuotina, kad skirtingos eilės optinių jautrių dydžiai stipriai skiriasi [32], tad norint stebėti aukštesnės eilės netiesinius reiškinius yra reikalingi itin stiprūs elektriniai laukai.

Pagrindinė priežastis, dėl kurios poliarizuotumas yra neatsiejamas nuo netiesinės optikos reiškinių aprašymo yra ta, jog laike kintanti poliarizacija yra naujų elektromagnetinių bangų šaltinis. Bangos lygtis netiesinėje terpėje yra išreiškiama taip:

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P_{NT}}}{\partial t^2},\tag{5}$$

čia $n - l\bar{u}$ žio rodiklis, c -šviesos greitis vakuume, $\bigtriangledown^2 -$ Laplaso operatorius, o $\vec{P_{NT}}$ – netiesinė poliarizuotumo dalis. Šioje lygtyje esantis narys $\frac{\partial^2 \vec{P_{NT}}}{\partial t^2} \neq 0$ parodo, jog krūviai, terpėje judantys su pagreičiu, remiantis Larmoro elektromagnetizmo teorema, generuoja elektromagnetinę spinduliuotę [33].

2.2 Šviesos impulsų ir pluoštų saviveika

2.2.1 Netiesinio Kero lūžio rodiklio prigimtis

Vienas iš svarbiausių kubinio netiesiškumo sąlygotų reiškinių - papildomo medžiagos lūžio rodiklio komponento, kuris priklauso nuo terpėje sklindančios spinduliuotės intensyvumo, atsiradimas. Šis reiškinys yra itin svarbus ne tik ultratrumpųjų impulsų generacijai, kurioje naudojama Kero lęšio modų sinchronizacija, tačiau ir superkontinuumo generacijai. Taigi, dėl šios priežasties tikslinga panagrinėti fizikinę šio reiškinio prigimtį.

Svarbu paminėti, jog (4) lygtis buvo gauta esant monochromatiniam išoriniam laukui, o ultratrumpųjų impulsų, turinčių baigtinį dažnių spektro plotį, atveju bangos nebegalima laikyti monochromatine. Kita vertus, siekiant kokybiškai paaiškinti netiesinio lūžio rodiklio atsiradimą, galima į tai neatsižvelgti ir nagrinėti kvazimonochromatinės bangos sklidimą optinėje terpėje. Be to, bendru atveju netiesinis terpės atsakas nėra momentinis. Visgi, dominuojant elektroniniam netiesiškumui, netiesinio atsako nusistovėjimo trukmė τ_n yra daug mažesnė už šviesos impulso trukmę τ , tad tokiu atveju impulso gaubtinė kinta pakankamai lėtai ir atsaką galima laikyti momentiniu.

Tariame, jog skaidria terpe sklinda kvazimonochromatinė banga, t.y. banga, kurios kompleksinė amplitudė per optinio virpesio periodą pakinta labai nežymiai, ir, kurios elektrinio lauko stipris aprašomas tokiu pavidalu:

$$\vec{E}(t,\vec{r}) = \frac{1}{2}A(t)e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} + k.j.,$$
(6)

čia A(t) - kompleksinė bangos amplitudė, t - laikas, $\boldsymbol{\omega}$ - centrinis nešantysis dažnis, \vec{k} – jį atitinkantis bangos vektorius, \vec{r} – padėties vektorius, k.j. – kompleksiškai jungtinis dydis. Įstačius šią išraišką į (4) lygties kubinio poliarizuotumo narį $\vec{P}^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E}^3(t)$ galima gauti vieną iš kubinio poliarizuotumo narių, kurio dažnis sutaps su išorinio elektromagnetinio lauko dažniu $\boldsymbol{\omega}$:

$$\vec{P}^{(3)}(t,\vec{r},\omega) = \frac{3\varepsilon_0}{8}\chi^{(3)}|A|^2Ae^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} + k.j.$$
(7)

Siekiant dar labiau supaprastinti nagrinėjimą galima teigti, jog medžiaga yra izotropinė, ir vietoje vektorinių bei tenzorinių dydžių naudoti skaliarinius. Tokiu atveju, remiantis tuo, jog elektrinio lauko indukcija $D = \varepsilon_0 E + P^{(1)} + P^{(3)} = \varepsilon_0 \varepsilon E$, ir įsistačius (7) bei $P^{(1)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E$ išraiškas galima gauti, jog dielektrinė skvarba ε yra priklausoma nuo bangos kompleksinės amplitudės kvadrato:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^{(t)} + \frac{3}{4} \boldsymbol{\chi}^{(3)}(\boldsymbol{\omega}) |A|^2, \qquad (8)$$

čia $\boldsymbol{\varepsilon}^{(t)} = 1 + \boldsymbol{\chi}^{(1)}$ – tiesinė dielektrinės skvarbos dalis. Akivaizdu, jog dėl dielektrinės skvarbos bei lūžio rodiklio sąryšio $n^2 = \boldsymbol{\varepsilon}$, medžiagos lūžio rodiklis taip pat tampa kompleksinės amplitudės kvadrato funkcija. Tuomet, atmetant menamas tiesinės dielektrinės skvarbos bei kubinio netiesiškumo dalis, kurios aprašo tiesinę bei dvifotonę sugertį, galima lūžio rodiklį išreikšti tokiu

pavidalu:

$$n = n_0 + \frac{1}{2}n_2|A|^2 = n_0 + n_2^{(I)}I,$$
(9)

čia $n_0 = \sqrt{\varepsilon^{(t)}}, n_2 = \frac{3}{4n_0} \chi^{(3)}, n_2^{(I)} = \frac{3\chi^{(3)}}{(4n_0^2 c \varepsilon_0)}$, o intensyvumas $I = \frac{1}{2} c n_0 \varepsilon_0 |A|^2$. Taigi, matyti, jog dėl elektroninio netiesiškumo atsiranda papildomas medžiagos lūžio rodiklio komponentas $n_2^{(I)}I$ ir medžiagos lūžio rodiklis tampa priklausomas nuo šviesos bangos intensyvumo [31]. Šis reiškiny, dažnai vadinamas optiniu Kero efektu, nulemia daugybę intensyvios lazerio spinduliuotės saviveikos reiškinių, tokių, kaip pluošto fokusavimasis, ultratrumpųjų šviesos impulsų fazės moduliavimasis, kurie kartu lemia baltos šviesos kontinuumo generaciją [33].

2.2.2 Šviesos pluoštų fokusavimasis

Šviesos pluoštų fokusavimasis yra procesas, kurio metu intensyvus lazerio pluoštas sąveikaudamas su terpe joje indukuoja lūžio rodiklio priedą $n_2^{(I)}I > 0$ ir ima fokusuotis [34]. Gauso pluoštas pasižymi didesniu intensyvumu centrinėje pluošto dalyje ir daug mažesniu intensyvumu periferinėse pluošto dalyse, tad dėl skirtingo erdvinio pluošto intensyvumo pasiskirstymo skersai sklidimo ašies atsiranda atitinkama terpės lūžio rodiklio moduliacija. Taigi, pluošto fazinis frontas yra iškreipiamas ir, esant $n_2^{(I)}I > 0$, terpė ima veikti tarsi glaudžiamasis lęšis, pluoštas ima fokusuotis. Šis procesas yra pavaizduotas 2 pav. Kitu atveju, esant $n_2^{(I)}I < 0$, pluoštas ima defokusuotis.



2 pav. Šviesos pluošto bangos fronto iškraipymai, nulemiantys fokusavimąsi. Žalia linija pažymėtas pradinio impulso erdvinis intensyvumo pasiskirstymas, punktyrine - pluošto fazinis frontas.

Bendriausiu atveju, skaitmeniškai sprendžiant netiesinę Šrėdingerio lygtį, gali būti parodyta, jog nuolatinės veikos lazerio Gauso pluoštui atstumas z_{sf} nuo medžiagos paviršiaus iki židinio, kuriame pluoštas kolapsuoja lygus [35]:

$$z_{sf} = \frac{0,367kr_0^2}{\left[\left(\sqrt{\frac{P}{P_{kr} - 0,852}}\right)^2 - 0,0219\right]^{\frac{1}{2}}},$$
(10)

čia $k = \frac{\omega_0 n_0}{c}$ - bangos skaičius, ω_0 – centrinis nešantysis dažnis, n_0 - lūžio rodiklis, c - šviesos greitis, r_0 – pluošto spindulys ant terpės paviršiaus, P - krintančio pluošto galia, P_{kr} - kritinė galia.

Kritinė galia P_{kr} vadinamas dydis lygus pluošto galiai, kuriai esant fokusavimasis tiksliai kompensuoja pluošto difrakcinę skėstį. Iš esmės tai reikštų, jog pluoštas gali sklisti nesiplėsdamas ir nesifokusuodamas, tačiau realybėje tokios pusiausvyros pasiekti beveik neįmanoma dėl triukšminės pluošto moduliacijos ar kitų netiesinės optikos reiškinių. Kritinės galios P_{kr} analitinė išraiška gali būti nesunkiai gaunama pasinaudojant geometriniais samprotavimais, Ferma principu bei difrakcinės skėsties savybėmis [33]:

$$P_{kr} = \frac{(0,61)^2 \pi \lambda_0^2}{8n_0 n_2^{(I)}} \approx \frac{\lambda_0^2}{8n_0 n_2^{(I)}},\tag{11}$$

čia λ_0 – pluošto centrinis bangos ilgis vakuume, $n_2^{(I)}$ - netiesinis lūžio rodiklis.

Impulsinės lazerių veikos atveju, esant nanosekundinės trukmės impulsams, tokių impulsinių šviesos pluoštų fokusavimąsi galima gan gerai paaiškinti klasikiniu judančio židinio modeliu [36], kuriame skirtingo intensyvumo laikiniai pjūviai fokusuojasi skirtingu atstumu nuo terpės paviršiaus pagal (10) išraišką.

Galima išskirti du impulsinio fokusavimosi tipus. Toks fokusavimasis, kai šviesos impulso trukmė yra daug didesnė nei terpės kubinio atsako nusistovėjimo trukmė, yra vadinamas kvazinuostoviuoju. Tokiu atveju netiesinis terpės atsakas gali būti laikomas momentiniu, o židinio padėtis adiabatiškai seka impulso kitimą laike. Ultratrumpųjų impulsų atveju, jei impulso trukmė yra mažesnė arba palyginama su terpės atsako trukme, netiesinis atsakas nebegali būti laikomas momentiniu. Šiuo atveju, priekinio impulso fronto sukuriamas lūžio rodiklio pokytis Δn kinta lėčiau nei impulso intensyvumas laike, tad galinis frontas jaučia padidėjusią lūžio rodiklio pokyčio Δn įtaką. Tokio tipo fokusavimasis vadinamas nenuostoviuoju [31,37].

2.2.3 Šviesos impulsų fazės moduliavimasis

Vienas iš pagrindinių procesų, nulemiančių superkontinuumo generaciją, yra impulsų fazės moduliavimasis. Šis procesas, kaip ir šviesos fokusavimasis, atsiranda dėl netiesinio lūžio rodiklio poveikio ir yra laikinis šviesos pluoštų fokusavimosi analogas. Šio proceso metu impulso spektras yra papildomas naujais dažnių komponentais ir išplinta daugybę kartų. Paprasčiausias būdas aprašyti šį reiškinį yra pasinaudojant netiesine Šrėdingerio lygtimi, kurioje neatsižvelgiama į šviesos pluošto fokusavimąsi, bei supaprastinimui naudojamas lėtai kintančių amplitudžių metodas, kuriame laikoma, jog amplitudė A kinta nežymiai bangos ilgio atstumu [31]:

$$i\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{g}{2}\frac{\partial^2 A}{\partial \tau^2} - \beta |A|^2 A = 0, \qquad (12)$$

čia g - grupinių greičių dispersijos koeficientas $g = \frac{d^2k_0}{d\omega_0^2}, \beta = \frac{3\chi^{(3)}k_0}{8n_0^2} = \frac{n_2^{(l)}c\epsilon_0k_0}{2}$ - netiesiškumo koeficientas. Be to, naudojama koordinačių sistema, judanti žadinančiojo impulso grupinių greičių $u_0 = \frac{d\omega_0}{dk_0}, \tau = t - \frac{z}{u_0}$. Atmetus grupinių greičių dispersiją (g = 0), t.y. teigiant, jog impulso

laikinė gaubtinė nekinta, nesunku įsitikinti, jog (12) lygties sprendinys yra tokio pavidalo:

$$A(t,z) = A_0(t)e^{-\beta|A_0|^2 z},$$
(13)

čia $A_0(t) = a_0(t)e^{i\phi_0(t)}$ - impulso pradinė amplitudė, kai z = 0. Šį sprendinį galima užrašyti tokiu pavidalu $A = ae^{i\phi}$, tuomet:

$$a(t,z) = a_0(t),$$
 (14)

$$\phi(t,z) = \phi_0(t) - \beta |A_0(t)|^2 z.$$
(15)

Iš pirmosios lygties matyti, jog impulso gaubtinė nekinta. Antroji lygtis parodo, jog atsiranda netiesinis fazės pokytis, proporcingas sklidimo nuotoliu
izbei impulso pradinės amplitudės kvadratu
i $|A_0(t)|^2$:

$$\partial \phi(t,z) = -\beta |A_0(t)|^2 z. \tag{16}$$

Pasinaudojus β išraiška bei žinant, jog $n_2^{(I)} = \frac{n_2}{c\varepsilon_0 n_0}$, $k_0 = \frac{\omega_0 n_0}{c}$, bei tuo, jog $\frac{1}{2}n_2|A_0(t)|^2 = n_2^{(I)}I_0(t)$, matyti, jog fazės pokytis lygus:

$$\partial \phi(t,z) = -\frac{\omega_0 z}{c} n_2^I I_0(t). \tag{17}$$

Momentinis dažnis gali būti išreiškiamas kaip fazės laikinė išvestinė, tad nešančiojo dažnio pokytis:

$$\partial \omega(t,z) = \frac{\partial \phi}{\partial t} = -\frac{\omega_0 z}{c} n_2^I \frac{\partial I_0(t)}{\partial t}.$$
(18)

Matyti, jog impulso fazės moduliacija lemia impulso nešančiojo dažnio moduliaciją. Impulso laikinė gaubtinė nepakinta, o impulso spektro plotis padidėja, spektras yra papildomas naujais dažnio komponentais.

3 pav. pavaizduoti Gauso formos impulso, kurio intensyvumas $I(t) = I_0(0)e^{\frac{-t^2}{t_0}}$, fazės pokytis, dažnių spektras bei dažnio moduliacija momentinio netiesinio atsako terpėje. Galima išskirti porą vien tik dėl fazės moduliavimosi išplitusio spektro ypatumų. Visų pirma, dažnių poslinkis yra simetriškas žadinančiojo impulso dažnio atžvilgiu. Taip yra todėl, kad žadinantysis impulsas yra Gauso formos, t.y. simetriškas, be to, nagrinėjama sąveika momentinio atsako terpėje (pvz. terpėje, kurioje dominuoja elektroninis netiesiškumas). Be to, spektre atsiranda kvaziperiodinės osciliacijos (3 pav. b)), kurios gali būti nesunkiai paaiškinamos. Kadangi terpės netiesinis atsakas yra momentinis, fazės poslinkis taip pat kaip ir žadinantysis impulsas įgauna Gauso formą (3 pav. a)). Kiekvienam šios kreivės taškui, išskyrus linkio taškus, galima rasti kitą tokią pačią $\frac{\partial \phi}{\partial t}$ vertę turintį, tačiau priešingo ženklo, tašką. Kadangi $\frac{\partial \phi}{\partial t} = -\omega$, šie du taškai indukuos to paties dažnio, tačiau skirtingos fazės bangas, kurios interferuos konstruktyviai, jei jų fazių skirtumas yra $\Delta \phi = 2\pi$ kartotinis, arba destruktyviai, jei jų fazių skirtumas yra nelyginis $\Delta \phi = \pi$ kartotinis. Linkio taškuose išvestinės $\frac{\partial \phi}{\partial t}$ vertė didžiausia, tad natūralu, jog būtent tie taškai lemia labiausiai nuo žadinančiojo impulso dažnio nutolusius maksimumus $\omega_{max} = \left| \frac{\partial \phi}{\partial t} \right|_{max}$. poslinkį į žemesniųjų dažnių pusę, o galinis frontas - už anti-Stokso dažnių poslinkį t.y. poslinkį į aukštesniųjų dažnių pusę (3 pav. c)).



3 pav. Gauso formos šviesos impulso a) fazės pokytis, b) dažnių spektras bei c) dažnio nuokrypis momentinio atsako netiesinėje terpėje [37]

Ultratrumpųjų impulsų atveju impulso galiniame fronte fazės kitimo sparta yra didesnė nei priekiniame, tad spektras plinta asimetriškai ir dominuoja spektro plitimas į aukštesniųjų dažnių pusę. Pagrindinė to priežastis - nuo intensyvumo priklausančio papildomo grupinio greičio pokyčio atsiradimas, kuris, esant $n_2^{(I)} > 0$, lemia grupinio greičio mažėjimą didėjant intensyvumui. Taigi, impulso viršūnė ima sklisti lėčiau nei periferinės dalys ir galinis frontas ima statėti – formuojasi smūginė banga. Tai nulemia stiprią Stokso-anti-Stokso asimetriją, kurioje dominuoja anti-Stokso dažnių poslinkis [31,37].

2.3 Superkontinuumo generacija

Baltos šviesos kontinuumo (arba superkontinuumo) generacija yra netiesinėje terpėje sklindančio galingo ultratrumpojo impulso (<10 ps) dažnių spektro išplitimas daugybę kartų, apimant visą regimąjį bei dalį ultravioletinio bei infraraudonojo spektrinio diapazono. Baltos šviesos kontinuumas pirmą kartą buvo stebėtas 1970 m. Alfano ir Šapiro fokusuojant galingus pikosekundinius impulsus į stiklo bandinį [38]. Skirtingai nuo kitų baltos šviesos šaltinių (pvz. halogeninės lemputės), superkontinuumo spinduliuotė yra intensyvi bei koherentinė (dažnių komponentai tarpusavyje yra susieti fazių sąryšiais, o pati spinduliuotė sklinda impulso ir pluošto pavidalu).

Femtosekundinio superkontinuumo generacija skaidriose terpėse yra glaudžiai susijusi su šviesos gijų formavimosi procesu, kurio metu spektras išplinta dėl daugybės reiškinių (tokių kaip fazės moduliavimasis, pluošto fokusavimasis, difrakcija, daugiafotonė sugertis, smūginių bangų formavimasis) tarpusavio sąveikos [39]. Taigi, nagrinėjant baltos šviesos kontinuumą, jo spektro forma ir ypatumai negali būti paaiškinti vien tik fazės moduliavimosi reiškiniu.

Eksperimentiškai nustatyta, jog superkontinuumo generacijos slenkstinė galia $\approx 10\%$ tikslumu sutampa su kritinė pluošto fokusavimosi galia P_{kr} , aprašoma (11) išraiška [13,40,41]. Dėl fokusavimosi smarkiai padidėjus intensyvumui, kartu sustiprinamas ir fazės moduliavimosi reiškinys, tad nenuostabu, jog superkontinuumo generacija yra inicijuojama pluošto fokusavimosi. Pluošto katastrofiškas fokusavimasis yra sustabdomas įvairių fizikinių defokusavimą sukeliančių reiškinių. Pagrindinis mechanizmas, stabdantis pluošto fokusavimąsi, yra daugiafotonė sugertis – vienalaikė keleto ar daugiau fotonų sugertis skaidrioje terpėje, pasireiškianti arti netiesinio židinio, kur bangų paketo intensyvumas yra itin didelis. Dielektrinėje terpėje, remiantis juostiniu energijos lygmenų modeliu, šį procesą galima įsivaizduoti kaip elektronų sužadinimą iš valentinės į laidumo juostą, kurioje jie tampa kvazilaisvi. Laisvieji elektronai, taikant Drudės modelį (CGS vienetų sistemoje), sukelia neigiamą lūžio rodiklio pokytį [42]:

$$\Delta n_e = -\frac{2\pi e^2 N_e}{n_0 m_e (\omega_0^2 + \mathbf{v}^2)},$$
(19)

čia N_e – laisvųjų elektronų tankis, ν – elektronų susidūrimų dažnis, ω_0 – žadinančiojo impulso centrinis dažnis.

Tokiu būdu, taikant artinį $\omega_0^2 \gg v^2$, optinio Kero efekto sukeltas teigiamas lūžio rodiklio pokytis yra kompensuojamas laisvųjų elektronų sukelto neigiamo lūžio rodiklio pokyčio, kai yra tenkinama tokia salyga:

$$n_2^{(I)}I = \frac{2\pi e^2 N_e}{n_0 m_e \omega_0^2}.$$
(20)

Be to, daugiafotonė sugertis nulemia ne tik pluošto defokusavimąsi, bet ir energijos nuostolius impulso dalyje, kurioje $P > P_{kr}$.

Itin svarbus parametras femtosekundinio superkontinuumo generacijai yra medžiagos draustinės juostos tarpas. Bordeur ir Chin pastebėjo, kad plačiausio spektro superkontinuumas (turintis didžiausią anti-Stokso dažnių poslinkį), generuojamas didelės draustinės energijos tarpą turinčiose medžiagose [43]. Tai galima paaiškinti remiantis tuo, jog medžiagose su mažu draustinės energijos tarpu laisvieji elektronai yra kuriami žemos eilės netiesinės sugerties, tad kritinis elektronų tankis $N_{e,kr}$ yra pasiekiamas, esant didesniam pluošto skersmeniui ir mažesniam intensyvumui. Dėl šios priežasties įgyjamas tik nedidelis fazės poslinkis ir medžiagose, kuriose draustinės energijos tarpas mažesnis už slenkstinį, superkontinuumo generacija nevyksta. Medžiagose, pasižyminčiose plačia draustinės energijos juosta, dominuoja aukštesniųjų eilių daugiafotonė sugertis, kuriai reikalingas daug didesnis intensyvumas, tad pluoštas sufokusuojamas iki mažesnio skersmens, o įgyjamas fazės poslinkis – didelis. Tolesni tyrimai parodė, jog superkontinuumas gali būti generuojamas medžiagose, kurių draustinės energijos tarpo E_g santykis su žadinančiojo impulso fotono energija $h\mathbf{v}$ yra $\frac{E_g}{h\mathbf{v}} \geq 3$ [44].

Visgi, superkontinuumo generacijai be visų jau aptartų reiškinių nemažą įtaką daro terpės grupinių greičių dispersija. Taigi, tolesniuose dviejuose skyreliuose bus aptariami superkontinuumo generacijos ypatumai bei apžvelgiami eksperimentai normaliosios (ji lemia didesnio bangos ilgio komponentų greitesnį sklidimą mažesniųjų atžvilgiu) bei anomaliosios (ji lemia mažesniųjų bangos ilgio komponentų greitesnį sklidimą didesniųjų atžvilgiu) grupinių greičių dispersijos srityse.

2.3.1 Normaliosios grupinių greičių dispersijos atvejis

Kai žadinančiojo impulso bangos ilgis yra normaliosios grupinių greičių dispersijos (GGD > 0) srityje, yra stebimas smarkus spektro plitimas į mėlynąją bangos ilgių pusę [4, 13, 14, 45]. Eksperimentiniai bei skaitmeninio modeliavimo rezultatai parodė, jog vykstant įvairių tiesinių bei netiesinių reiškinių (pluošto fokusavimosi, fazės moduliavimosi, daugiafotonės sugerties, difrakcijos) sąveikai, galiniame impulso fronte formuojasi smūginė banga ir intensyvus pradinis impulsas, sklindantis netiesinėje terpėje, yra smarkiai iškraipomas – skyla į du subimpulsus, pavaizduotus 4 pav. ištisine linija [11, 12, 46–48]. Šio proceso metu atsiradęs priekinis subimpulsas nulemia raudonąjį dažnių poslinkį, o galinis – mėlynąjį. Smūginės bangos susiformavimas didesnio intensyvumo galiniame subimpulse lemia didelį dažnio moduliacijos šuolį $-\frac{\partial \phi}{\partial t}$, kuris 4 pav. pažymėtas punktyrine linija. Kadangi dažnio moduliacijos dydis lemia superkontinuumo spektro plotį, vyksta smarkus spektro išplitimas į mėlynąją pusę.



4 pav. Superkontinuumo laikinė struktūra (ištisinė linija) bei dažnio moduliacija (punktyrinė linija) [12]

Visgi, esant tam tikroms sąlygoms, galima stebėti didelį baltos šviesos kontinuumo spektro plitimą ne tik į aukštesniųjų dažnių pusę, tačiau ir į žemesniųjų [45,49–51]. Mažinant pluošto skaitinę apertūrą, t.y. vietoje aštraus fokusavimo naudojant švelnų, galima smarkiai padidinti raudonąjį dažnio poslinkį. Šiuo atveju impulsas taip pat skyla į du subimpulsus – priekinį, kuris yra paveikiamas fokusavimosi sąlygų, bei galinį, kuriam poveikis yra minimalus (5 pav.). Galinio subimpulso intensyvumas greitai pasiekia maksimumą, kuris visais fokusavimosi atvejais yra tas pats ir ima staigiai mažėti dėl daugiafotonės sugerties ir plazmos formavimosi. Tuo tarpu priekinio subimpulso intensyvumas, dėl infraraudonojoje srityje esančio grupinių greičių dispersijos nulio artumos, mažėja lėtai ir tolygiai, tad didėja netiesinės sąveikos ilgis ir stebimas tolygus spektro plitimas į žemesniųjų dažnių pusę [51]. Be to, yra žinoma, jog esant švelniam fokusavimui ne tik sumažėja tikimybė pažeisti medžiagą, tačiau pastebimas ir žymus slenkstinės superkontinuumo generacijai reikalingos impulso energijos sumažėjimas [52].

Jei pluošto galia tebeviršija kritinę, pluoštas po kurio laiko ima pakartotinai fokusuotis ir įvyksta pakartotinas impulso skilimas, pavaizduotas 5 pav. ties z = 7 mm. Priekinis ir galinis antrinio skilimo subimpulsai lemia antrinio superkontinuumo, kuris interferuoja su pirmojo impulso skilimo suformuotu superkontinuumu, generaciją. Taigi, esant pakankamai didelėms



5 pav. Skaitmeninis superkontinuumo laikinės impulso evoliucijos modeliavimas Al₂O₃ kristale, fokusuojant f = 200 mm židinio nuotolio lęšiu ir žadinant E = 1, 1 µJ energijos, t = 120 fs trukmės, $\lambda = 800$ nm bangos ilgio impulsais [51]

impulso energijoms, superkontinuumo spektre yra matoma periodinė spektro moduliacija [45, 51]. Svarbu pastebėti, jog lyginant su anomaliosios grupinių greičių dispersijos atveju, šviesos gijos, besiformuojančios terpėse su normaliąja grupinių greičių dispersija, pasižymi trumpesniu ilgiu bei daug didesniu fokusavimosi ciklų skaičiumi [6].

2.3.2 Anomaliosios grupinių greičių dispersijos atvejis

Priešingai nei normaliosios grupinių greičių dispersijos atveju, anomaliosios grupinių greičių dispersijos srityje fazės moduliavimosi sąlygojama dažninė moduliacija yra priešingo ženklo grupinių greičių dispersijos sąlygojamai dažninei moduliacijai, tad impulsas ima spaustis [6]. Kitaip tariant, fokusavimasis vyksta ne tik erdvėje, tačiau ir laike. Be to, kitaip nei normaliosios grupinių greičių dispersijos atveju, nėra stebimas Gauso formos impulsų skilimas į du subimpulsus [53].

Superkontinuumas, generuojamas anomaliosios grupinių greičių dispersijos srityje, pasižymi itin plačiu simetriniu spektru, besidriekiančiu net per kelias oktavas ir smarkiai išplintančiu į aukštesniųjų dažnių sritį [10]. Be to, mėlynojoje spektro srityje, dažnai yra stebimas intensyvus maksimumas, būdingas tik žadinančiajai spinduliuotei esant anomaliosios dispersijos srityje [54–59]. Susiformavusio spektro ypatumai gali būti paaiškinami skaitmeninio modeliavimo rezultatais [54, 56, 59]. Dėl anomaliojoje grupinių greičių dispersijos srityje vykstančio impulso laikinio fokusavimosi bei smūginės bangos formavimosi, galiniame fronte pasiekiamas itin didelis intensyvumo pokytis, kuris nulemia stiprų plitimą į mėlynąją pusę. Ryškaus maksimumo aukštesniųjų dažnių srityje atsiradimas siejamas su išaugusia dispersija aukštųjų dažnių srityje, kur yra tenkinama efektinio tribangio maišymosi fazinio sinchronizmo sąlyga [59].

Be to, anomaliojoje grupinių greičių dispersijos srityje, galimas šviesos kulkų - laike ir erdvėje silpnai lokalizuotų impulsinių pluoštų - formavimasis [6, 7, 60]. Pademonstruota, jog šie erdvėlaikiniai dariniai yra polichromatiniai Beselio pluoštai, pasižymintys subdifrakciniu bei subdispersiniu sklidimu netiesinėje terpėje [7], gaubtinės nešlio fazės stabilumu [8] bei savaimine centrinės smailės rekonstrukcija [9].

2.4 Kvadratinio netiesiškumo sąlygojami reiškiniai

2.4.1 Antrosios harmonikos generacija

Antrosios harmonikos generacija - vienas paprasčiausių ir efektyviausių netiesinės optikos reiškinių, kuris pirmą kartą buvo stebėtas jau netiesinės optikos aušroje. Šis reiškinys lemia dvigubo dažnio spinduliuotės atsiradimą netiesinėje terpėje ir energinių lygmenų diagramoje gali būti pavaizduotas kaip vienalaikė dviejų dažnio $\boldsymbol{\omega}$ fotonų sugertis į virtualų lygmenį, išsspinduliuojant vieną $2\boldsymbol{\omega}$ dažnio fotoną (6 pav.).



6 pav. Energijos lygmenų diagrama, vaizduojanti antrosios harmonikos generaciją. Juoda brūkšninė linija žymi virtualiuosius lygmenis, užtušuoti stačiakampiai - laidumo ir valentinę juostas, E_g - draustinės juostos tarpas.

Antrosios harmonikos generacija yra lemiama kvadratinio poliarizuotumo nario $\vec{P}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E}^2(t)$, kuris, kaip matyti iš bangos lygties (5), yra naujų elektromagnetinių bangų šaltinis, tad ir dvigubo dažnio spinduliuotės atsiradimo priežastis. Svarbu paminėti, jog antrosios harmonikos generacija, kaip ir visi kvadratinio poliarizuotumo komponento sąlygojami reiškiniai, galima tik necentrosimetrinėse terpėse, kuriose $\chi^{(2)}$ kaip ir, beje, $\chi^{(3)}$, nėra lygūs nuliui. Tuo tarpu centrosimetrinėse bei izotropinėse terpėse galimi tik kubinio bei aukštesnių nelyginių poliarizuotumo eilių sąlygoti procesai.

Išauginta daugybė anizotropinių (dvejopu lūžiu pasižyminčių) kristalų, leidžiančių efektyviai realizuoti ne tik antrosios harmonikos generaciją, tačiau ir kitus kvadratinio poliarizuotumo komponento sąlygojamus reiškinius (parametrinį stiprinimą, suminio dažnio generaciją). Vienas iš dažniausiai naudojamų kristalų yra β -BBO, pasižymintis aukštu pažeidimo slenksčiu, dideliu efektiniu netiesiškumu bei plačiame dažnių diapazone realizuojamu faziniu sinchronizmu [61].

Antrosios harmonikos bei kaupinimo bangų amplitudžių kitimą aprašo vadinamosios surištųjų bangų amplitudžių lygtys, kurios šiai sąveikai yra tokio pavidalo [31]:

$$\frac{\partial A_1}{\partial z} = -i\sigma_1 A_1^* A_2 e^{-i\Delta kz},
\frac{\partial A_2}{\partial z} = -i\sigma_2 A_1^2 e^{i\Delta kz},$$
(21)

čia $\Delta k = k_2 - 2k_1$ - bangos vektorių nederinimas arba fazinio nederinimo parametras, kur $k_i = \frac{\omega_i n(\omega_i)}{c}, i = 1, 2$. A_1 - kaupinimo bangos amplitudė, A_2 - antrosios harmonikos amplitudė, σ_1 ir σ_2 - netiesinio ryšio koeficientai. Šiose lygtyse nėra atsižvelgiama į difrakciją, dispersiją ar diafragminį apertūrinį reiškinį.

Fazinio nederinimo parametras Δk yra itin svarbus dydis nagrinėjant netiesinės optikos reiškinius. Sąlyga $\Delta k = 0$ yra vadinama fazinio sinchronizmo sąlyga ir tik ją patenkinus galima efektyvi naujų dažnių spinduliuotės generacija. Fizikinė šios sąlygos atsiradimo priežastis tokia: konstruktyvi interferencija tarp poliarizuotumo bangos ir jos kuriamo elektromagnetinio lauko gali vykti tik tuo atveju, jei jų faziniai greičiai sutampa. Tokiu atveju, kiekviename taške netiesinio poliarizuotumo komponento kuriamo elektromagnetinio lauko fazės sutaps. Izotropinėse terpėse šios sąlygos patenkinti neįmanoma, nes medžiagos savo skaidrumo srityje pasižymi normalia dispersija. Kita vertus, anizotropiniuose kristaluose dėl dvejopo lūžio ši sąlyga gali būti nesunkiai patenkinama, nes paprastosios (o) ir nepaprastosios (e) bangų lūžio rodikliai skiriasi, o pastarosios dar ir priklauso nuo sklidimo krypties kristalo optinės ašies atžvilgiu.

Paprasčiausiu atveju, kai antrosios harmonikos amplitudė tokia maža ($|A_2| \ll |A_1|$), kad nėra kaupinimo nuskurdinimo, antrosios harmonikos intensyvumas gali būti aprašomas [62]:

$$I_2(z) = \frac{(\omega_2 \chi^{(2)} I_1 z)^2}{8\varepsilon_0 c^3 n_2 n_1^2} sinc^2 \frac{\Delta k z}{2}.$$
(22)

Matyti, kad jei yra tenkinama fazinio sinchronizmo sąlyga $\Delta k = 0$, narys $sinc^2 \frac{\Delta kz}{2} \rightarrow 1$, tad antrosios harmonikos amplitudė nuo z didėja tiesiškai, o intensyvumas $I_2(z)$ - kvadratiškai. Ta-čiau, jei $\Delta k \neq 0$ intensyvumas kinta priklausomai nuo nario $\left(\frac{\sin\left(\frac{\Delta kz}{2}\right)}{\Delta k}\right)^2$. Įvedus dydį $L_{koh} = \frac{\pi}{|\Delta k|}$, vadinamą koherentiškumo ilgiu, kuriame vyksta koherentinis antrosios harmonikos spinduliuotė saugimas, matyti, jog kai tenkinama fazinio sinchronizmo sąlyga, sąveikos ilgis yra be galo ilgas, o visa kaupinimo spinduliuotė yra paverčiama dvigubo dažnio spinduliuote. Kita vertus, jeigu fazinio nederinimo parametras $\Delta k \neq 0$, sklidimo metu antrosios harmonikos signalo amplitudė osciliuoja periodu, lygiu $2L_{koh}$, o osciliacijų dažnis didėja didėjant fazinio nederinimo parametrui (7 pav.). Kitaip tariant, vyksta nuolatiniai energijos mainai tarp kaupinimo bei generuojamos antrosios harmonikos spinduliuotės. Akivaizdu, kad realiose terpėse viskas yra ganėtinai sudėtingiau. Terpės yra anizotropinės, jose gali pasireikšti tiesinė ar aukštesnių eilių sugertis. Be to, naudojami impulsiniai pluoštai, tad pluoštas dažniausiai negali būti laikomas plokščia banga, o impulsas - monochromatiniu. Dėl šių reiškinių atsiranda papildomas netiesinės sąveikos ilgio apribojimas dėl diafragminio apertūrinio reiškinio, grupinių greičių nederinimo bei dispersijos.



7 pav. Antrosios harmonikos intensyvumo priklausomybė nuo sklidimo atstumo, esant patenkintai fazinio sinchronizmo sąlygai $\Delta k = 0$ ir dviem skirtingiems $\Delta k \neq 0$ atvejams, neatsižvelgiant į kaupinimo nuskurdinimą

2.4.2 Netiesinis pakopinis lūžio rodiklis

Dažniausiai trijų bangų sąveikos medžiagose su $\chi^{(2)}$ metu yra siekiama, kad fazinio nederinimo parametras Δk būtų lygus nuliui, t.y. būtų tenkinama fazinio sinchronizmo sąlyga. Visgi, sąveika, kurios metu $\Delta k \neq 0$, o bangos periodiškai keičiasi energija, fizikiniu požiūriu taip pat labai įdomi. Jau netiesinės optikos vystymosi pradžioje buvo pastebėta, jog esant bangos vektorių nederinimui, pagrindinio dažnio banga patiria fazės poslinkį [63]. Šis fazės poslinkis gali būti interpretuojamas kaip atsirandantis dėl efektinio trečios eilės netiesiškumo, kurio savybės šiek tiek skiriasi nuo tradicinio $\chi^{(3)}$ netiesiškumo. Visgi, tik gerokai vėliau, KTP kristale Z skenavimo būdu išmatavus netiesinio lūžio rodiklio pokytį (nulemtą šio fazės pokyčio), šis reiškinys susilaukė didesnio susidomėjimo [17]. Akivaizdu, jog kvadratinis-pakopinis netiesiškumas gali turėti didelę įtaką superkontinuumo generacijai necentrosimetrinėse anizotropinėse terpėse, tad būtina šį reiškinį trumpai aptarti.

Sprendžiant antrosios harmonikos generacijos surištųjų bangų amplitudžių lygtis (21), atveju, kai $\Delta k \neq 0$, o kaupinimo banga nėra nuskurdinama ($|A_1| = |A_{10}|$, kur $|A_{10}|$ - pradinė kritusios spinduliuotės amplitudė), galima pademonstruoti, jog pagrindinio dažnio spinduliuotė, praėjusi kristalą, kurio ilgis L, patiria fazės poslinkį, lygų [17]:

$$\Delta \Phi^{NT} = \frac{\Delta kL}{2} \left(1 - \sqrt{\left[1 + \left(\frac{2\Gamma}{\Delta k}\right)^2 \right]} \right), \tag{23}$$

čia L - kristalo ilgis, $\Gamma = \frac{\omega d_{eff} |A_{10}|}{c \sqrt{n_{2\omega} n_{\omega}}}$ - stiprinimo inkrementas. Kai fazinio nederinimo paramet-

ras yra pakankamai didelis ($|\Delta k| \gg |\Gamma|$), fazės pokytis gali būti išreiškiamas kiek paprastesniu pavidalu:

$$\Delta \Phi^{NT} = -\frac{\Gamma^2 L^2}{\Delta k L}.$$
(24)

Prisiminus, jog optinis Kero efektas yra aprašomas $n = n_0 + n_2 I$ išraiška, kur $n_2 I$ - netiesinis lūžio rodiklio pokytis, o n_2 - netiesinis Kero lūžio rodiklis, analogiškai galima aprašyti ir netiesinį pakopinį lūžio rodiklį. Pasinaudojus tuo, jog tokiu atveju fazių skirtumas gali būti išreiškiamas $\Delta \Phi^{NT} = \frac{2\pi L}{\lambda} n_2^{(pak)} I$, gauname:

$$n_2^{(pak)} = -\frac{4\pi}{c\varepsilon_0\lambda} \frac{d_{eff}^2}{n_{2\omega}n_{\omega}^2} \frac{1}{\Delta k}.$$
(25)

Taigi, matyti, jog pakopinės antrosios harmonikos generacijos metu atsiradęs fazės poslinkis lemia nuo intensyvumo priklausančio netiesinio lūžio rodiklio pokyčio atsiradimą. Šio fazės poslinkio prigimtis gali būti nesunkiai suprantama paprasčiausiu I tipo sąveikos ($oo \rightarrow e$ arba $ee \rightarrow o$) netiesiniame kristale atveju. Visas procesas pavaizduotas 8 pav. Raudona linija



8 pav. Pakopinio netiesinio lūžio rodiklio prigimtis. Raudona linija pažymėtas antrosios harmonikos santykinis intensyvumas, rodyklės žemyn ir aukštyn žymi atitinkamai pagrindinio dažnio spinduliuotės virsmą į dvigubo dažnio spinduliuotę bei dvigubo dažnio spinduliuotės virsmą atgal į pagrindinio dažnio spinduliuotę, v_1 , v_2 - pagrindinės ir antrosios harmonikos bangų faziniai greičiai.

pažymėtas antrosios harmonikos spinduliuotės santykinio intensyvumo kitimas nuo sklidimo atstumo (nurodyto koherentiškumo ilgio vienetais), rodyklėmis žemyn ir aukštyn - atitinkamai pagrindinio dažnio spinduliuotės virsmas į dvigubo dažnio spinduliuotę bei dvigubo dažnio spinduliuotės virsmas atgal į pagrindinio dažnio spinduliuotę. Matyti, jog po vieno koherentiškumo ilgio prasideda pagrindinio dažnio spinduliuotės regeneracija, kuri po dviejų koherentiškumo ilgių jau būna pilnai įvykusi, o toliau - procesas kartojasi. Kadangi nėra tenkinama fazinio sinchronizmo sąlyga, antrosios harmonikos bangos bei pagrindinio dažnio spinduliuotės faziniai greičiai skiriasi. Taigi, šiam procesui kartojantis daugybę kartų, pagrindinio dažnio bangos efektinis fazinis greitis bus mažesnis arba didesnis (priklausomai nuo Δk ženklo) nei bangos, kuri nepatiria regeneracijos (pvz. skaidrioje terpėje, kurioje nevyksta jokie netiesiniai reiškiniai). Kitaip tariant pagrindinio dažnio banga patirs fazės poslinkį $\Delta \Phi^{NT}$, kurio įtaka gali būti aprašoma pasinaudojant netiesiniu pakopiniu lūžio rodikliu $n_2^{(pak)}$.

Visgi, svarbu pastebėti, jog šiam procesui didelę įtaką turi grupinių greičių nederinimas. Nusklidus tam tikrą atstumą, vadinamą grupinių greičių nederinimo ilgiu L_{GGN} , dėl skirtingų antrosios harmonikos bei kaupinimo bangos grupinių greičių, vienas impulsas atsilieka kito atžvilgiu per impulso trukmę. Tai lemia ne tik mažesnio fazės pokyčio, tačiau ir laikinių fazės iškraipymų atsiradimą. Taigi, norint efektyviai išnaudoti pakopinius procesus, siekiama, jog pilnas regeneracinis ciklas vyktų atstumais mažesniais nei L_{GGN} . Ši sąlyga gali būti patenkinama, kai fazinis nederinimas $|\Delta k| > \frac{4\pi}{L_{GGN}}$ [64]. Įvertinus grupinių greičių nederinimo ilgį šiame darbe aprašytomis sąlygomis (žr. 3.2.1 skyrelį) matyti, jog faziniai iškraipymai pasireiškia tik kai $|\Delta k| < 28 \text{ mm}^{-1}$, tad yra svarbūs tik prie itin mažų fazinio nederinimo parametro verčių.

2.3 skyrelyje buvo minėta, jog superkontinuumo generacijos procesas glaudžiai susijęs su kritine fokusavimosi galia P_{kr} , kuri atvirkščiai proporcinga netiesiniam lūžio rodikliui. Terpėse, pasižyminčiose kvadratiniu netiesiškumu, vykstant pakopinei antrosiosios harmonikos generacijai, be visoms terpėms būdingo netiesinio Kero lūžio rodiklio reikia įskaityti ir netiesinį pakopinį lūžio rodiklį, kuris gali būti lengvai kontroliuojamas keičiant fazinį nederinimą. Tai suteikia unikalią galimybę eksperimentiškai nesudėtingu būdu valdyti terpės efektinį (bendrą) netiesinį lūžio rodiklį, o tuo pačiu ir šviesos saviveikos dinamiką bei jos lemiamą spektro plėtrą.

3 Darbo rezultatai ir jų aptarimas

3.1 Netiesinio pakopinio lūžio rodiklio įtakos įvertinimas

Šiame darbe buvo teoriškai įvertintas netiesinis pakopinis lūžio rodiklis keičiant kampą tarp kristalo optinės ašies ir kaupinimo pluošto bei jo įtaka bendram (efektiniam) netiesiniam lūžio rodikliui:

$$n_2^{(eff)} = n_2^{(I)} + n_2^{(pak)}, (26)$$

čia $n_2^{(I)}$ - netiesinis Kero lūžio rodiklis
, $n_2^{(pak)}$ - netiesinis pakopinis lūžio rodiklis.

Kadangi tiriama pakopinių procesų įtaka I tipo netiesinės sąveikos metu neigiamame vienašiame β -BBO kristale, antrosios harmonikos fazinio sinchronizmo sąlyga gali būti išreiškiama tokiu pavidalu:

$$n_e(2\omega,\theta) = n_o(\omega),\tag{27}$$

čia $n_e(2\omega, \theta)$ - nepaprastosios dažnio 2ω bangos lūžio rodiklis, $n_o(\omega)$ - paprastosios dažnio ω bangos lūžio rodiklis. Lūžio rodikliams nustatyti buvo panaudotos Selmajerio lygtys su atitinkamais Selmajerio koeficientais [65]. Akivaizdu, jog žinant Selmajerio lygtis, galima nesunkiai nustatyti antrosios harmonikos fazinio sinchronizmo kampą θ bei fazinio nederinimo parametrą $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega}$. Fazinio sinchronizmo kampas lygus $\theta_{\rm pm} = 29, 2^{\circ}$, o fazinio nederinimo parametro priklausomybė nuo kampo, kurį su optine ašimi sudaro krintanti spinduliuotė, pavaizduota 9 pav. a).

Netiesinis Kero lūžio rodiklis gali būti nesunkiai įvertinamas [66]:

$$n_2^{(I)} = \frac{3c_{11}}{(4n_0^2 c\varepsilon_0)},\tag{28}$$

čia c_{11} - kubinio netiesiškumo koeficientas (000 \rightarrow o sąveikos atveju svarbus tik šis matricinis elementas). Svarbu paminėti, jog šis koeficientas yra ne tik priklausomas nuo bangos ilgio, tačiau jį įvertinant dažnai nebūdavo atsižvelgiama į pakopinių reiškinių įtaką. Dėl šios priežasties skaičiavimams buvo naudojama nuo bangos ilgio nepriklausanti Milerio delta $\Delta_{1111} = 52, 8 \cdot 10^{-24} \text{ m}^2/\text{V}^2$ [66] bei Milerio taisyklė [67,68], kuri leidžia nustatyti netiesinį koeficientą reikiamam bangos ilgiui. Tokiu būdu buvo gauta, jog $\lambda = 0,8 \ \mu\text{m}$ bangos ilgio spinduliuotei netiesinis Kero lūžio rodiklis $n_2^{(I)} = 5, 15 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}.$

Pakopinio netiesinio lūžio rodiklio įvertinimui buvo pasinaudota (25) išraiška, kuri galioja, kai $\Delta kL \gg 2\pi$. Antrosios harmonikos generacijos atveju I tipo sąveikai neigiamame vienašiame 3m klasės kristale efektinis netiesiškumas gali būti aprašomas [66]:

$$d_{eff}^{ooe} = d_{31}sin(\theta + \rho) - d_{22}cos(\theta + \rho)sin(3\phi),$$

$$\tag{29}$$

či
a $d_{31}=0,04~{\rm pm/V},\,d_{22}=-2,2~{\rm pm/V}$ - kvadratinio netiesiškumo koeficientai [68],
 θ - kampas,

kurį pluoštas sudaro su optine ašimi, ϕ - azimutinis kampas ir ρ - anizotropijos kampas. Anizotropijos kampas įvertinamas pasinaudojus $\rho = \arctan\left[\tan(\theta)\frac{n_o^2}{n_e^2}\right]$ išraiška [66]. Svarbu paminėti, jog eksperimentinės d_{31} , d_{22} koeficientų vertės žadinančiosios spinduliuotės bangos ilgiui taip pat nėra žinomos. Dėl šios priežasties šie koeficientai, kaip ir pirmuoju atveju, pakoreguoti taikant Milerio taisyklę. Apskaičiuoti kvadratiniai bei kubiniai netiesiškumo koeficientai pateikiami 1 lentelėje.

Taigi, tokiu būdu gauta pakopinio netiesinio lūžio rodiklio priklausomybė nuo pluošto kampo su kristalo optine ašimi θ pavaizduota 9 pav. b) taškine raudona linija. Kartu pavaizduota Kero netiesinio lūžio rodiklio (mėlyna taškinė-brūkšninė linija) bei efektinio (suminio) netiesinio lūžio rodiklio (žalia ištisinė linija) priklausomybės nuo kampo θ .



9 pav. a) β -BBO fazinio nederinimo parametro ir b) netiesinio lūžio rodiklio priklausomybės nuo pluošto kampo θ kristalo optinės ašies atžvilgiu. Žalia ištisinė linija žymi efektinį, raudona taškinė - pakopinį, mėlyna brūkšninė–taškinė - Kero netiesinius lūžio rodiklius. Romėniškais skaitmenimis bei skirtingais atspalviais pažymėtos keturios skirtingos sritys: fokusavimosi (I,IV), defokusavimosi (II) bei efektyvios antrosios harmonikos generacijos (III), kur pakopinė aproksimacija nebegalioja.

Gauta netiesinio lūžio rodiklio priklausomybė gali būti suskirstyta į keturias sritis. Esant teigiamam faziniam nederinimui galimas pluošto fokusavimasis bei defokusavimasis. Srityje, pažymėtoje I, vyksta pluošto fokusavimasis, nes netiesinis efektinis lūžio rodiklis, nors ir mažesnis nei Kero netiesinis lūžio rodiklis, yra teigiamas. II srityje neigiamas netiesinio pakopinio lūžio rodiklio indėlis atsveria teigiamą Kero netiesinio lūžio rodiklio indėlį ir netiesinis efektinis lūžio rodiklis tampa neigiamu, tad pluoštas ima defokusuotis ir superkontinuumo generacija negalima. Šių sričių riba - nulinio fokusavimosi taškas ($\theta_{zf} = 25, 9^{\circ}$), kuriame Kero netiesinis lūžio rodiklis yra lygus netiesiniam pakopiniam lūžio rodikliui, o efektinis netiesinis lūžio rodiklis lygus nuliui. III srityje vyksta efektyvi antrosios harmonikos generacija, fazinio nederinimo parametras tampa itin mažas ($\Delta kL \ll 2\pi$) ir pakopinė aproksimacija nebegalioja. Esant neigiamam fazinio nederinimo parametrui, IV srityje, analogiškai I sričiai, vyksta pluošto fokusavimasis, tačiau suminis netiesinis lūžio rodiklis viršija Kero netiesinio lūžio rodiklio vertę, tad galima superkontinuumo generacija, esant daug mažesnėms žadinančiojo impulso energijoms.

3.2 Superkontinuumo generacijos spektrinės dinamikos bei laikinių savybių tyrimas

Šiame darbe buvo tiriama superkontinuumo generacijos spektrinė dinamika bei jos laikinės savybės β -BBO kristale normaliosios grupinių greičių dispersijos srityje. Šio tyrimo tikslas – pademonstruoti superkontinuumo spektro valdymą pasitelkiant konkuruojančius Kero ir pakopinį kvadratinį netiesiškumus, kurių įtaka keičiama keičiant fazinio nederinimo parametrą.

3.2.1 Eksperimento schema

Tyrimų metu naudota eksperimentinė schema yra pateikiama 10 pav. Superkontinuumo žadinimui buvo naudojama Ti:safyro lazerinė sistema *(Spitfire PRO, Newport-Spectra Physics)*, generuojanti 95 fs impulso trukmės, 800 nm centrinio bangos ilgio, 500 Hz pasikartojimo dažnio spinduliuotę. Pagrindiniai eksperimentiškai išmatuoti pradinio bangų paketo parametrai pateikiami 10 pav. intarpuose a)-c).



10 pav. Superkontinuumo generacijos spektrinės dinamikos tyrimo, pluoštų matavimo bei impulsų charakterizavimo eksperimentinė schema, kur V₁-V₅ - veidrodžiai, L₁-L₇ - lęšiai, D - diafragma, GF - gradientinis filtras, BBO - 4,85 mm storio β -BBO kristalas, P - poliarizatorius, Fb - šviesolaidis. Intarpuose pavaizduotas a) pradinis pluoštas, b) impulso trukmė bei c) jo spektras.

Pluoštas veidrodžiais V₁-V₂ buvo nukreipiamas ir f = 125 mm židinio nuotolio lęšiu L₃ švelniai fokusuojamas į 25 μm skersmens dėmę (pusės intensyvumo aukštyje) netiesinio kristalo priekiniame paviršiuje. Tyrimui buvo pasirinktas β -BBO netiesinis kristalas, kurio pagrindiniai parametrai pateikiami 1 lentelėje. Teorinė kristalo grupinių greičių dispersijos kreivė pavaizduota 11 pav. Matyti, jog superkontinuumo žadinimui naudojamos spinduliuotės bangos ilgis patenka į terpės normaliosios grupinių greičių dispersijos (+75,1 fs²/mm) sritį. Dvi pusbanginės plokštelės bei poliarizaciją analizuojantis elementas P suteikė galimybę valdyti ne tik impulso energiją, tačiau ir pradinio pluošto poliarizaciją. Depoliarizacinis narys tesudarė 0,4% visos spinduliuotės energijos, tad buvo praktiškai nereikšmingas. Siekiant sušvelninti fokusavimo są-lygas, pluoštas prieš lęšį L₃ buvo sumažinamas 2,25 karto, pasinaudojant glaudžiamuoju bei sklaidomuoju lęšiais L₁ bei L₂, kurių židinio nuotoliai atitinkamai f = 225 mm ir f = -100 mm.



11 pav. β -BBO kristalo grupinių greičių dispersijos kreivė

Spektrinės dinamikos tyrimų metu pluoštas buvo kolimuojamas f = 50 mm židinio nuotolio lęšiu L₄ ir fokusuojamas f = 50 mm židinio nuotolio lęšiu L₅ į ant poslinkio staliuko, naudojamo kompensuoti pluošto poslinkį, atsirandantį dėl kristalo posūkio kampo, įmontuotą šviesolaidį Fb. Spektrų registravimui buvo naudojamasi laboratorijoje sukonstruotu prizminiu spektrometru, gebančiu registruoti spinduliuotę 300 - 1100 nm srityje, apribotoje naudojamo silicio fotodiodo spektrinio jautrio. Veidrodžiu V₃, pasižyminčiu didelio atspindžio koeficientu (R = 0,94) kaupinimo bangos ilgiui, buvo nufiltruojama dalis itin intensyvios kaupinimo spinduliuotės. Atlikus matavimus buvo atsižvelgiama į veidrodžio V₃ pralaidumo koeficientą, detektoriaus jautrį bei vidinių spektrometro optinių elementų pralaidumą bei atspindį skirtingoms spektrinėms komponentėms. Visa sistema buvo pilnai automatizuota ir valdoma MATLAB programinėje aplinkoje.

Pluoštų registravimui netiesiniame židinyje bei kristalo išėjimo plokštumoje buvo panaudota dviejų lęšių, pažymėtų L₅, atvaizduojanti sistema, susidedanti iš achromatinio bei įprastinio (BK7) lęšių, kurių židinio nuotoliai atitinkamai f = 75 mm bei f = 150 mm. Vaizdo registravimui buvo pasitelkta CCD kamera Cohu 6612-3000, kurios matricos elemento dydis lygus 9,9 μm . Atvaizduojančios sistemos didinimas kito, priklausomai nuo atstumo tarp lęšių sistemos L₅ ir CCD kameros, intervale nuo 4,15 iki 5,25 kartų, tad skyra siekė 1,9-2,4 μm . Siekiant išvengti soties, buvo naudojamas jau minėtas veidrodis V_3 bei gradientinis neutralus filtras GF. Svarbu atkreipti dėmesį, jog buvo atsižvelgta į atvaizdo plokštumos padėties kitimą priklausomai nuo medžiagos kiekio optiniame kelyje.

Superkontinuumo laikinių savybių tyrimo metu, siekiant išmatuoti ašinės superkontinuumo dalies, pasižyminčios nedidele skėstimi, savybes, kūginė spinduliuotės dalis buvo atkertama pasinaudojant diafragma D. Norint sumažinti dispersijos įtaką trukmių matavimo metu, pluoštas buvo kolimuojamas plonu ($\approx 1,5$ mm storio) FS lęšiu, kurio židinio nuotolis f = 50 mm. Pluoštas buvo nukreipiamas auksu dengtais veidrodžiais V₄-V₅ taip sumažinant galimą aukšto dažnio spektrinių komponentų įtaką. Impulso forma bei trukmė buvo išmatuota komerciniu dažninės skyros optinio strobavimo (FROG) prietaisu (*GRENOUILLE 8-20, Swamp-Optics*, *LLC*).

Tipas	Neig. vienašis
Skaidrumo sritis (nm)	189-3500 ^a
$E_g ({\rm eV})$	$6,2^{a}$
$n_2^{(I)} \; ({\rm cm}^2/{\rm W})$	$5,15\cdot 10^{-16}$
$c_{11} ({\rm m}^2/{\rm V}^2)$	$5,03 \cdot 10^{-22}$
$d_{22}, d_{31} \; (pm/V)$	-2,33, 0,042
L (mm)	4,85
θ, ϕ	$37,4^{\circ}, 90^{\circ}$

1 lentelė. Pagrindiniai eksperimente naudojamo β -BBO kristalo parametrai, kur ^a [66]

3.2.2 Spektrinės dinamikos tyrimas žadinant paprastosios poliarizacijos spinduliuote

Šioje darbo dalyje buvo išmatuota superkontinuumo generacijos spektrinė dinamika, keičiant kristalo pasukimo kampą ir tokiu būdu keičiant fazinio nederinimo parametrą Δk . 12 pav. a) pateikiami rezultatai gauti keičiant kampą θ tarp kristalo optinės ašies bei kaupinimo pluošto bei superkontinuumą žadinant E = 160 nJ energijos impulsais. Svarbu pastebėti, jog impulsų energija parinkta taip, jog būtų artima slenkstinei. 12 pav. b) pateikiami tam tikrų charakteringų kampų (12 pav. a) pažymėtų baltomis linijomis) spektriniai pjūviai. Siekiant išryškinti spektrines detales, visi duomenys pateikiami logaritminėje intensyvumo skalėje.

Matyti, jog spektrinėje dinamikoje gali būti išskiriamos dvi sritys, kurioje stebima dviejų ortogonalių poliarizacijų spinduliuotė. Srityje, pažymėtoje (I), matoma statmenosios žadinančiojo impulso atžvilgiu (nepaprastosios) poliarizacijos spinduliuotė, kurios atsiradimas sąlygojamas kvadratinio netiesiškumo. Tuo tarpu srityje, pažymėtoje (II), stebima lygiagrečiosios žadinančiojo impulso atžvilgiu (paprastosios) poliarizacijos spinduliuotės atsiradimas, kurios atsiradimo priežastis - superkontinuumo generacija dėl konkuruojančio kvadratinio bei kubinio netiesiškumų. Akivaizdu, jog skirtingos poliarizacijos spinduliuotės skiriasi ne tik savo kilme, tačiau ir savybėmis.



12 pav. a) Eksperimento metu generuojamos spinduliuotės spektrinė dinamika β -BBO kristale keičiant kampą θ tarp kristalo optinės ašies ir kaupinimo pluošto. Juoda ištisine linija pažymėtos spektrinės komponentės, kurioms galioja antrosios harmonikos (juoda punktyrinė linija) tikslaus fazinio sinchronizmo sąlyga. b) Spektriniai pjūviai prie trijų skirtingų charakteringų kampų θ , a) pav. pažymėtų baltomis linijomis. Visi grafikai pateikiami logaritminėje intensyvumo skalėje. Žadinančiojo impulso energija E = 160 nJ.

(II) srityje matomas superkontinuumas savo savybėmis gana panašus į izotropinėse terpėse stebimą baltos šviesos kontinuumą. Matyti asimetrinis spektro plitimas 500-950 nm spektriniame diapazone su dominuojančiu plitimu į mėlynąją bangos ilgių pusę. Be to, mažesniųjų bangos ilgių srityje spektras yra ganėtinai tolygus bei pakankamai intensyvus, tad galėtų būti panaudojamas tolimesniems taikymams spektroskopijoje [1] ar mikroskopijoje [2]. Šiuo atveju maksimalus spektro plitimas į mažesniųjų bei didesniųjų bangos ilgių sritį yra apribojamas mažos energijos sąlygojamo didelio netiesinio židinio atstumo, kuris viršija arba yra artimas turimo kristalo ilgiui.

Visgi, be šių savybių, būdingų įprastinėms izotropinėms terpėms, stebėta superkontinuumo spektrinė dinamika pasižymi unikaliomis tik anizotropinėms necentrosimetrinėms terpėms būdingomis savybėmis: spektrinių parametrų bei generacijos slenksčio valdymu, kuris įgyvendinamas eksperimentiškai itin paprastu būdu - keičiant kampą tarp kristalo optinės ašies bei kaupinimo pluošto.

Matyti, jog, esant neigiamam faziniam nederinimui ($\theta > \theta_{pm}$), spektro plitimas stebimas tik tam tikrame, šiuo atveju gana siaurame kampų intervale ($30^{\circ} < \theta < 42, 5^{\circ}$). Šio apribojimo priežastys - dvi. Žemesnioji riba ($\theta \approx 30^{\circ}$) atsiranda dėl kaupinimo nuskurdinimo, esant efektyviai antrosios harmonikos generacijai. Tuo tarpu viršutiniosios ribos ($\theta \approx 42, 5^{\circ}$) priežastis - efektinio netiesinio lūžio rodiklio mažėjimas (artėjimas prie Kero netiesinio lūžio rodiklio) didėjant kampui θ . Akivaizdu, jog tai lemia padidėjusią kritinę fokusavimosi galią, kuri galiausiai viršija smailinę žadinančiojo impulso galią.

Kita vertus, esant teigiamam faziniam nederinimui ($\theta < \theta_{pm}$), jokio žymaus spektrinio plitimo nepastebėta. Remiantis 9 pav. b) pateiktomis netiesinio lūžio rodiklio kreivėmis galima teigti, jog šioje srityje superkontinuumo generacija nėra stebima dėl dviejų priežasčių: defokusuojančios srities ($\theta_{zf} < \theta < \theta_{pm}$) arba per mažos superkontinuumo generacijai žadinančiojo impulso energijos ($\theta < \theta_{zf}$). Pastaruoju atveju pakopinis netiesinis lūžio rodiklis tampa neigiamas, tad efektinis netiesinis lūžio rodiklis sumažėja, o kritinė fokusavimosi galia P_{kr} smarkiai išauga. Taigi, reikalinga didesnė žadinančiojo impulso energija superkontinuumo generacijai pasiekti.

(I) srityje matoma generuojamų nepaprastosios poliarizacijos spinduliuotės spektrinių komponenčių dinamika. Esant neigiamam faziniam nederinimui, spektrinėje dinamikoje gali būti išskiriamos dvi sritys - antrosios harmonikos generacijos sritis bei spektrinių poslinkių sritis. Antrosios harmonikos generacijos srityje ($\theta \approx \theta_{pm}$) yra tenkinama tiksli fazinio sinchronizmo sąlyga, tad didelė dalis žadinančiojo impulso energijos perduodama antrajai harmonikai. Dėl šios priežasties kaupinimo banga yra nuskurdinima, o superkontinuumo generacija nevyksta. Kita vertus, tolstant nuo tikslaus fazinio sinchronizmo salvgos (didinant θ), galimas spektro plitimas bei, galiausiai, superkontinuumo generacija. Plintant spektrui, pasukus kristalą tam tikru kampu, atsiranda superkontinuumo spektro komponenčių, kurioms yra tenkinama tiksli kolinearaus fazinio sinchronizmo sąlyga. Tai lemia minėtų spektrinių poslinkių, kurių dydis priklauso nuo kampo θ , atsiradimą. 12 pav. a) juoda punktyrine linija pažymėta antrosios harmonikos tikslaus fazinio sinchronizmo kreivė juoda ištisine linija pažymėtoms superkontinuumo spektrinėms komponentėms. Matyti itin geras teorinių bei eksperimentinių rezultatų atitikimas. Kitose srityse fazinio sinchronizmo sąlyga nėra tenkinama jokioms (skaliarinėms ar vektorinėms) tribangėms saveikoms, tad matyti tik vis mažėjančio intensyvumo antroji harmonika, kuri yra generuojama esant tam tikram faziniam nederinimui.

Rezultatai, gauti padidinus žadinančiojo impulso energija iki 280 nJ, pateikiami 13 pav. a) bei b). Matyti, jog lyginant su rezultatais, gautais žadinant mažesnės energijos impulsais, gali būti išskiriami keli skirtumai. Visų pirma, esant neigiamam faziniam nederinimui $(\theta > \theta_{pm})$, spektro plitimas stebimas daug didesniame kampų intervale ($\theta > 30^{\circ}$). Be to, impulso energija yra pakankamai didelė, tad esant didesniems kampams θ efektinio netiesinio lūžio rodiklio mažėjimas nedaro didelės įtakos, o spektro forma, kai $\theta > 42,5^{\circ}$, praktiškai nekinta. Kitas svarbus aspektas - stebimas daug didesnis spektrinis išplitimas 420 - 1100 nm spektrinėje srityje, kur didesniųjų bangos ilgių sritis yra apribota naudoto spektrometro registravimo galimybių, o mažesniųjų bangos ilgių - medžiagos draustinės energijos tarpo. Lyginant su spektro plitimu, stebimu įprastinėse izotropinėse superkontinuumo generacijai naudojamose medžiagose [13], mėlynasis poslinkis yra mažesnis dėl mažesnio β -BBO kristalo draustinės energijos tarpo, kuris lemia žemesnės eilės daugiafotonės sugerties dominavima, stabdantį fokusavimasi. Stiprus plitimas į infraraudonąją sritį yra nulemtas švelnaus fokusavimosi bei gana didelės žadinančiojo impulso energijos salvgoto didelio netiesinės saveikos ilgio [51]. Išmatavus pluošto erdvinį intensyvumo pasiskirstymą netiesiniame židinyje (14 pav.) nustatyta, jog šviesos gija susiformuoja 1,7 mm atstumu nuo priekinio kristalo paviršiaus ir tėra 5,5 μm skersmens pusės intensyvumo aukštyje.



13 pav. a) Eksperimento metu generuojamos spinduliuotės spektrinė dinamika β -BBO kristale keičiant kampą θ tarp kristalo optinės ašies ir kaupinimo pluošto. Juoda ištisine linija pažymėtos spektrinės komponentės, kurioms galioja antrosios harmonikos tikslaus fazinio sinchronizmo sąlyga (juoda punktyrinė linija). b) Spektriniai pjūviai prie trijų skirtingų charakteringų kampų θ , a) pav. pažymėtų baltomis linijomis. Visi grafikai pateikiami logaritminėje intensyvumo skalėje. Žadinančiojo impulso energija E = 280 nJ.

(I) srityje stebimi tik minimalūs pokyčiai - efektyvios superkontinuumo generacijos nulemtas papildomų antrosios harmonikos spektrinių komponenčių atsiradimas didesniųjų kampų srityje. Svarbu pastebėti, jog mažesniųjų bangos ilgių sritis šiuo atveju yra apribojama spektrometro registravimo galimybių, tad galima antrosios harmonikos generacija, kai $\lambda < 300$ nm nėra matoma.



14 pav. Žadinančiojo pluošto erdvinis intensyvumo pasiskirstymas netiesiniame židinyje, kai žadinančiojo impulso energija E = 280 nJ. Ašiniai pjūviai pateikiami tiesinėje normuotoje intensyvumo skalėje, o pilnas erdvinis intensyvumo pasiskirtymas - logaritminėje.

Vizualūs pokyčiai stebimi keičiant kampą θ tarp kaupinimo pluošto bei optinės ašies, esant 280 nJ energijai, pateikiami 15 pav. Matyti, jog antroji harmonika bei superkontinuumo pluoštas dėl skirtingų poliarizacijų (bei tuo pačiu skirtingų lūžio rodiklių) sklinda skirtingais kampais. Galiausiai antroji harmonika UV srityje tampa akimi nematoma, o superkontinuumo pluoštas plintant spektrui keičia spalvą, kol galiausiai tampa baltas.



15 pav. a) Eksperimento metu generuojamos superkontinuumo spinduliuotės fotografijos, kai kampas θ lygus a) 34.5° b) 36° c) 37° d) 39.5° e) 42.6°

Dar padidinus žadinančiojo impulso energiją iki 406 nJ (16 pav.) spektre gali būti išskiriami du pagrindiniai skirtumai - spektrinių moduliacijų bei superkontinuumo generacijos teigiamo fazinio nederinimo srityje atsiradimas. Spektrinių moduliacijų atsiradimas gerai matomas 16 pav. b) ir gali būti paaiškinamas pakartotiniu impulsų skilimu, lemiančiu dviejų laike atskirtų impulsų porų, generuojančių superkontinuumą, susiformavimą. Superkontinuumo generacija teigiamo fazinio nederinimo srityje taip pat nėra netikėta. Kaip jau buvo minėta, pastaruoju atveju efektinis netiesinis lūžio rodiklis sumažėja, o kritinė fokusavimosi galia P_{kr} smarkiai išauga, tad superkontinuumo generacija galima tik esant didelei žadinančiojo impulso energijai.



16 pav. a) Eksperimento metu generuojamos spinduliuotės spektrinė dinamika β -BBO kristale keičiant kampą θ tarp kristalo optinės ašies ir kaupinimo pluošto. Juoda ištisine linija pažymėtos spektrinės komponentės, kurioms galioja antrosios harmonikos tikslaus fazinio sinchronizmo sąlyga (juoda punktyrinė linija). b) Spektriniai pjūviai prie trijų skirtingų charakteringų kampų θ , a) pav. pažymėtų baltomis linijomis. Visi grafikai pateikiami logaritminėje intensyvumo skalėje. Žadinančiojo impulso energija E = 406 nJ.

Siekiant išryškinti superkontinuumo spektro valdymo galimybę mažesniųjų bangos ilgių srityje bei apibendrinti rezultatus, 17 pav. pateikiama superkontinuumo ribinio bangos ilgio λ_r priklausomybė nuo kaupinimo impulso energijos ties skirtingais kampais θ . Ribinis bangos ilgis λ_r buvo nustatytas ieškant taško, kuriame superkontinuumo intensyvumas 10⁴ kartų mažesnis

nei maksimali intensyvumo vertė. Matyti, jog superkontinuumo mėlynojo krašto bangos ilgis, iš pradžių dėl impulsų fazės moduliavimosi iš lėto mažėjęs, prasidėjus superkontinumo generacijai nusistovi ties tam tikra verte, kuri nekinta didinant energiją. Be to, visais atvejais stebimas ryškus mėlynojo krašto poslinkis, kuris gali būti kontroliuojamas, keičiant kampą θ . Svarbu pažymėti, jog galiausiai, kai $\theta > 42,5^{\circ}$, superkontinuumo ribinis bangos ilgis nusistovi ties ta pačia verte $\lambda \approx 410$ nm ir praktiškai nebekinta (17 pav. nepavaizduota).



17 pav. Superkontinuumo ribinio bangos ilgio λ_r (aukštesniųjų dažnių srityje) priklausomybė nuo kaupinimo impulso energijos ties skirtingais kampais θ

3.2.3 Antrosios harmonikos generacijos įtaka superkontinuumo generacijos spektrinei evoliucijai

Ankstesniame skyrelyje pateikti rezultatai rodo, jog nepaisant to, kokios energijos impulsais žadinamas superkontinuumas (jei energija viršija slenkstinę), viena svarbi savybė išlieka nepakitusi - efektyvus spektro valdymas tam tikroje kampų srityje ($30^{\circ} < \theta < 42, 5^{\circ}$). Galima pastebėti, jog ši sritis išsiskiria tuo, jog kartu su superkontinuumu yra stebima ir antrosios harmonikos generacija, tad, be abejo, šie procesai yra susiję. Anksčiau buvo minėta, jog žemesnioji riba ($\theta \approx 30^{\circ}$) atsiranda dėl kaupinimo nuskurdinimo, esant efektyviai antrosios harmonikos generacijai, tačiau nėra akivaizdu kokia įtaką šis procesas turi didesniųjų kampų srityje, kurioje pasireiškia antrosios harmonikos generacija tam tikroms superkontinuumo spektrinėms komponentėms. Siekiant tai išsiaiškinti eksperimentų metu buvo nustatyta kaupinimo energijos dalies, atitenkančios antrosios harmonikos generacijai, priklausomybė nuo kampo θ , esant dviems skirtingoms impulsų energijoms (160 nJ bei 280 nJ). Rezultatai pateikiami 18 pav. a). Matyti, jog kai yra tenkinama tikslaus fazinio sinchronizmo sąlyga kaupinimo bangai ($\lambda = 800$ nm, $\theta = \theta_{nm}$), net 45% žadinančiojo impulso energijos konvertuojama į antrąją harmoniką, tad žadinančioji banga išties stipriai nuskurdinama ir superkontinuumo generacija negalima. Kita vertus, didesniųjų kampų srityje $(32^{\circ} < \theta < 40^{\circ})$, antrosios harmonikos generacijai atitenka tik mažiau nei 3% visos žadinančiojo impulso energijos.

Visgi, reikėtų atkreipti dėmesį į tai, jog šioje srityje antrosios harmonikos generacija galima tik dėl tam tikrų superkontinuumo spektrinių komponenčių, tad tikslinga būtų įvertinti, kokia energijos dalis atitenka šiai sričiai. 18 pav. b) matyti, jog superkontinuumo energijos dalis, atitenkanti 450-750 nm spektrinei sričiai, neviršija 2,5% ir yra palyginama su antrosios harmonikos energija šioje srityje. Taigi, galima daryti išvadą, jog nemaža dalis spinduliuotės šioje srityje panaudojama būtent antrosios harmonikos generacijai. Tai gali sąlygoti dviejų impulso skilimo produktų santykinio intensyvumo kitimą ar galinio impulso fronto statumo pokytį, kurie lemia spektro kitimą bei efektyvų jo valdymą šioje srityje.



18 pav. a) Eksperimentų metu nustatyta kaupinimo energijos dalies, atitenkančios antrosios harmonikos generacijai, priklausomybė nuo kampo θ tarp kristalo optinės ašies ir kaupinimo pluošto dviems skirtingoms kaupinimo energijoms E = 160 nJ bei E = 280 nJ. Intarpe pateikiamas padidintas vaizdas didesniųjų kampų diapazone. b) Superkontinuumo energijos dalis 450-750 nm spektrinėje srityje, kai žadinančiojo impulso energija E = 280 nJ.

3.2.4 Superkontinuumo generacijos slenkstinė energija žadinant paprastosios bei nepaprastosios poliarizacijos spinduliuote

Anksčiau atliktuose tyrimuose anomaliosios grupinių greičių dispersijos srityje didelis dėmesys buvo skiriamas ženkliam superkontinuumo generacijos slenksčio sumažėjimui neigiamo fazinio nederinimo srityje [28]. Dėl šios priežasties svarbu išnagrinėti superkontinuumo slenksčio sumažinimo galimybes taip pat ir normaliojoje grupinių greičių dispersijos srityje.

Pasinaudojant (11) išraiška ir neatsižvelgiant į pakopinių procesų įtaką, galima nesunkiai įvertinti kritinę fokusavimosi galią β -BBO kristale. Įsistačius žinomus parametrus gauta, jog kritinė fokusavimosi galia P_{kr} lygi 1,12 MW, kuri, atsižvelgus į naudojamo lazerinio impulso trukmę, atitinka 110 nJ slenkstinę energiją. Matyti, jog, remiantis 17 pav. pateiktais rezultatais, ši slenkstinė energija artima gautai žadinant paprastosios poliarizacijos spinduliuote, tad atrodytų, jog superkontinuumo generacijos slenkstis nėra sumažėjęs. Visgi, svarbu paminėti, jog slenkstinė superkontinuumo generacijai reikalinga galia visuomet viršys slenkstinę fokusavimosi galią. Be to, kaip jau buvo minėta, didelę įtaką superkontinuumo generacijos slenksčiui turi pradinio pluošto fokusavimo sąlygos, kurios šio eksperimento metu nebuvo parinktos taip, jog generacija būtų galima prie minimalios energijos. Dėl šių priežasčių buvo nuspręsta nustatyti superkontinuumo generacijos slenkstį nekeičiant pradinių eksperimento sąlygų, tačiau žadinančiosios bangos poliarizaciją pasukus 90 laipsnių. Rezultatai, gauti keičiant žadinančiojo impulso energiją bei registruojant spektrus, pateikiami 19 pav. Gauto superkontinuumo savybės bei forma nepriklauso nuo kampo θ (čia nepavaizduota), o slenkstinė energija siekia 240 nJ. Taigi, matyti, jog esant neigiamam faziniam nederinimui bei naudojant paprastosios poliarizacijos spinduliuotę, slenkstinė superkontinuumo generacijos energija sumažėja nuo 1,5 iki 2 kartų, lyginant su atveju, kuomet generacijai naudojama nepaprastosios poliarizacijos spinduliuotė. Šis rezultatas gali būti paaiškintas remiantis 9 pav. b) pateiktomis netiesinio lūžio rodiklio kreivėmis, kur matyti, jog netiesinis efektinis lūžio rodiklis neigiamo fazinio nederinimo srityje yra didesnis nei Kero netiesinis lūžio rodiklis.



19 pav. Superkontinuumo spektrai gauti žadinant keliomis skirtingomis kaupinimo energijomis bei esant nepaprastajai (e) poliarizacijai β -BBO kristale. Spektrai pateikiami logaritminėje intensyvumo skalėje.

3.2.5 Superkontinuumo impulsų laikinių parametrų tyrimas

Norint geriau suprasti anksčiau stebėtus reiškinius bei kokią įtaką jiems turi žadinančiojo impulso laikinė dinamika, paskutinėje šio darbo dalyje buvo atlikti dažninės skyros optinio strobavimo matavimai bei pritaikius standartinį FROG algoritmą [69] nustatyta impulsų forma, trukmė ir fazė. Pagrindiniai rezultatai, gauti prie skirtingų energijų bei kampų, pateikiami 20 pav.

Nustatyta, jog parinkus energijas, šiek tiek žemesnes nei slenkstinė superkontinuumo generacijos energija, stebimas impulso skilimas į du subimpulsus. Nepaisant to, jog impulsas skyla, spektrinis plitimas nėra stebimas. Tai gali būti paaiškinama tuo, jog esant šiek tiek žemesnei energijai nei slenkstinė, galinio subimpulso galinio fronto, atsakingo už plitimą į mėlynąją sritį, statumas nespėja pasiekti savo maksimalios vertės. Visgi, net ir šiame režime galima išskirti tam tikrus žadinančiojo impulso elgesio ypatumus. Visų pirma, impulsų skilimas stebimas, kai žadinančiojo impulso energija $\approx 10\%$ žemesnė nei slenkstinė superkontinuumo generacijos energija. Be to, matyti, jog impulso skilimas stebimas prie didžiausios energijos, kai $\theta = 24^{\circ}$, o prie mažiausios, kai $\theta = 37,5^{\circ}$. Tai tik dar labiau patvirtina, jog pakopiniai procesai daro didelę įtaką superkontinuumo generacijai ir priklausomai nuo fazinio nederinimo ženklo bei vertės gali palengvinti ar pasunkinti šio proceso vyksmą. Taip pat matyti, jog visais pateiktais atvejais susiformavę subimpulsai yra panašios trukmės. Nustatyta, jog 20 pav. b) atveju susiformuoja atitinkamai 43 fs (žalia punktyrinė linija) bei 97 fs (raudona punktyrinė linija) trukmės priekinis ir galinis subimpulsai. Analogiškai 20 d) bei f) atvejais stebimi atitinkamai 49 fs bei 108 fs ir 49 fs bei 81 fs trukmės subimpulsai. Impulsų trukmė nustatyta pusės intensyvumo aukštyje. Svarbu atkreipti dėmesį į tai, jog nustatant trukmes nebuvo atsižvelgta į papildomą dispersijos poveikį, kurį patiria impulsas sklindant netiesiniu kristalu bei plonu 1,5 mm storio kolimuojančiu lęšiu. Dėl šių priežasčių reali subimpulsų trukmė yra šiek tiek mažesnė nei nurodyta šiame darbe.

Visgi, siekiant pilnai paaiškinti superkontinuumo valdymą bei žadinančiojo impulso elgesį kvadratiniu netiesiškumu pasižyminčiose terpėse, reikalingi tolimesni eksperimentiniai tyrimai bei išsamus skaitmeninis modeliavimas.



20 pav. Standartiniu FROG algoritmu atstatyti FROG matavimų pėdsakai (I stulpelis) bei impulsų laikinis intensyvumo ir fazės pasiskirstymas (II stulpelis), kai a)-b) E = 406 nJ, $\theta =$ 24°, c)-d) E = 130 nJ, $\theta = 37,5^{\circ}$, e)-f) E = 160 nJ, $\theta = 42,6^{\circ}$. Mėlyna bei juoda ištisinėmis linijomis vaizduojami atitinkamai fazės ir intensyvumo laikiniai skirstiniai, raudona bei žalia punktyrinėmis linijomis - impulsų Gauso aproksimacijos. FROG pėdsakai bei impulsų laikinis pasiskirstymas pateikiami normuotoje vienetinėje intensyvumo skalėje.

4 Išvados

- 1. Nustatyta, jog necentrosimetrinėje anizotropinėje terpėje, esant faziniam nederinimui ir žadinant impulsais, kurių nešantysis dažnis pakliūva į terpės normaliosios grupinių greičių dispersijos sritį, gaunama skirtingos prigimties dviejų ortogonalių poliarizacijų spinduliuotė. Lygiagrečioje žadinančiojo impulso atžvilgiu poliarizacijoje stebima superkontinuumo generacija, kurios atsiradimas susijęs su konkuruojančių kvadratinių bei kubinių netiesiškumų sąveika, kuri gali būti nesunkiai valdoma, keičiant kampą tarp kristalo optinės ašies ir kaupinimo pluošto. Tuo tarpu statmenosios žadinančiojo impulso atžvilgiu poliarizacijos spinduliuotės atsiradimas yra nulemtas kvadratinio netiesiškumo ir gali būti derinamas priklausomai nuo antrosios harmonikos savaiminio kolinearaus fazinio sinchronizmo sąlygų patenkinimo.
- 2. Pastebėta, jog superkontinuumo generacijos valdymas, kai kampas tarp žadinančiojo pluošto bei kristalo optinės ašies yra $30^{\circ} < \theta < 42, 5^{\circ}$, gali būti susijęs su efektyvia antrosios harmonikos generacija šioje srityje, lemiančia dviejų impulso skilimo produktų elgsenos pokytį, kuris įvertintas dažninės skyros optinio strobavimo (FROG) metodu.
- 3. Esant neigiamam fazinio nederinimo parametrui ($\theta > \theta_{pm}$) bei žadinimui naudojant paprastosios poliarizacijos spinduliuotę, superkontinuumo generacijai reikalinga kelis kartus mažesnė impulso energija nei esant teigiamam faziniam nederinimui ($\theta < \theta_{pm}$) bei nuo 1,5 iki 2 kartų mažesnė energija lyginant su atveju, kuomet generacijai naudojama nepaprastosios poliarizacijos spinduliuotė. To priežastis - didesnis efektinis netiesinis lūžio rodiklis, kurio vertė padidėja dėl teigiamo netiesinio pakopinio lūžio rodiklio indėlio.

5 Santrauka

Rosvaldas Šuminas

SUPERKONTINUUMO SPEKTRO VALDYMAS PASITELKIANT PAKOPINĮ KVADRATINĮ NETIESIŠKUMĄ

Superkontinuumas - plačiu dažnių spektru, laikiniu bei erdviniu koherentiškumu pasižyminti spinduliuotė, atsirandanti dėl daugybės netiesinių bei tiesinių reiškinių (tokių kaip dispersija, fokusavimasis, fazės moduliavimasis, smūginių bangų formavimasis bei daugiafotonė sugertis) tarpusavio sąveikos intensyviam ultratratrumpajam impulsui sklindant skaidria dielektrine terpe.

Visgi, iki šiol dauguma tyrimų buvo atliekami kubinio netiesiškumo terpėse, kuriose superkontinuumo generacijos valdymo galimybės yra gana ribotos. Kita vertus, terpėse, pasižyminčiose kvadratiniu netiesiškumu, priklausomai nuo bangos vektorių nederinimo, galima efektinio netiesinio lūžio rodiklio kontrolė. Šiame darbe pademonstruota, jog tokiose terpėse superkontinuuma žadinant impulsais, kurių nešantysis dažnis patenka į terpės normaliosios grupinių greičių dispersijos sritį, galima ne tik plataus spektro superkontinuumo generacija, tačiau ir nesudėtinga šviesos saviveikos dinamikos ir jos lemiamo spektro plėtros kontrolė. Šių tyrimų metu parodyta, jog superkontinuumo spektro valdymas susijes ne tik su pakopinių procesų įtaka, lemiančia superkontinuumo generacijos slenksčio kitimą, tačiau ir su kitu lygiagrečiai vykstančiu procesu - efektyvia antrosios harmonikos generacija, kuri pakeičia superkontinuumo generacijos pobūdį. Be to, nustatyta, jog, lyginant su atveju, kuomet svarbus tik kubinis (Kero) netiesiškumas, pakopiniai procesai lemia žymų superkontinuumo generacijos slenksčio sumažėjimą. Galiausiai, dažninės skyros optinio strobavimo metodu patvirtinta, jog superkontinuumo generacija anizotropinėse necentrosimetrinėse terpėse taip pat lydima impulso skilimo į du subimpulsus, o skilimui reikalinga energija turi stiprią priklausomybę nuo kampo tarp žadinančiojo pluošto bei kristalo optinės ašies bei yra artima superkontinuumo generacijos energijai.

6 Summary

Rosvaldas Šuminas

CONTROL OF SUPERCONTINUUM SPECTRUM BY MEANS OF CASCADED QUADRATIC NONLINEARITY

Supercontinuum generation is a phenomenon that occurs when an intense ultrashort laser pulse propagates in a transparent dielectric medium and during which temporally and spatially coherent light with an ultrabroadband spectrum is observed. Supercontinuum generation occurs due to complex interplay between self-focusing, self-phase modulation, multi-photon absorbtion, shock formation and dispersion.

So far, supercontinuum generation was only investigated in isotropic materials, which do not afford sufficient control over the generated supercontinuum spectrum. On the other hand, materials possessing quadratic nonlinearity allow us to control the effective nonlinear refractive index by simply varying the phase mismatch parameter. In this work we demonstrate the generation of supercontinuum and the control of its spectral extent and generation threshold in an anisotropic non-centrosymmetric material with normal group velocity dispersion. It is shown that the supercontinuum generation threshold is highly dependent on the angle between the pump wave and the optical axis of the crystal and that the use of cascaded-quadratic nonlinearity offers a straightforward way of reducing the supercontinuum generation threshold. Furthermore, the tunability of the supercontinuum spectra is explained to occur due to the interplay between the cascaded quadratic nonlinearity and phase matched second harmonic generation. Finally, the measurements performed using the method of frequency resolved optical gating (FROG) were used to confirm that pulse-splitting occurs before the onset of supercontinuum generation.

7 Publikacijos

- K. Stankevičiūtė, I. Pipinytė, J. Vengelis, A. Marcinkevičiūtė, R. Šuminas, R. Grigonis, R. C. Eckardt, V. Sirutkaitis, Optical parametric oscillators synchronously pumped by fundamental and second harmonic radiation of femtosecond Yb:KGW laser, Proc. SPIE 8845, 884519 (2013).
- I. Gražulevičiūtė, R. Šuminas, G. Tamošauskas, A. Couairon, A. Dubietis, Carrier-envelope phase-stable spatiotemporal light bullets, Opt. Lett. 40(16), 3719-3722 (2015).
- R. Šuminas, G, Tamošauskas, G. Valiulis, A. Dubietis, Spatiotemporal light bullets and supercontinuum generation in β -BBO crystal with competing quadratic and cubic nonlinearities, Opt. Lett. 41(9), 2097-2100 (2016).
- N. Garejev, V. Jukna, G. Tamošauskas, M. Veličkė, R. Šuminas, A. Couairon, A. Dubietis, Odd harmonics-enhanced supercontinuum in bulk solid-state dielectric medium, Opt. Express, pateiktas redakcijai (2016).
- R. Šuminas, G. Tamošauskas, V. Jukna, A. Couairon, A. Dubietis, Control of supercontinuum generation by competing nonlinearities in BBO crystal, Laser Photon. Rev., rengiamas (2016).

8 Pranešimai konferencijose

- A. Marcinkevičiūtė, R. Šuminas, J. Vengelis, K. Stankevičiūtė, V. Sirutkaitis, Construction of synchronously pumped femtosecond optical parametric oscillator, Open Readings (2013).
- I. Pipinytė, K. Stankevičiūtė, J. Vengelis, A. Marcinkevičiūtė, R. Šuminas, R. Grigonis, V. Sirutkaitis, Sinchroniškai Yb:KGV lazerio pirmąja ir antrąja harmonika kaupinamų parametrinių šviesos generatorių konstravimas ir tyrimas, Fizinių ir technologijos mokslų tarpdalykiniai tyrimai (2014).
- I. Gražulevičiūtė, R. Šuminas, D. Majus, G. Tamošauskas, N. Garejev, V. Jukna, A. Couairon, D. Faccio, A. Dubietis, Carrier-envelope phase-stable spatiotemporal light bullets, Naujametė fizikos konferencija LTΦ (2015).
- I. Gražulevičiūtė, R. Šuminas, N. Garejev, G. Tamošauskas, A. Couairon, D. Faccio, A. Dubietis, Universalios erdvėlaikinės šviesos kulkos, Lietuvos Nacionalinė Fizikos Konferencija (2015).
- R. Šuminas, G. Tamošauskas, A. Dubietis, Superkontinuumo generacija BBO kristale pasitelkiant konkuruojančius kvadratinį ir kubinį netiesiškumus, Lietuvos Nacionalinė Fizikos Konferencija (2015).
- R. Šuminas, G. Tamošauskas, G. Valiulis, A. Dubietis, Three-dimensional self-focusing and control of supercontinuum generation in BBO crystal with competing quadratic and cubic nonlinearities, Open Readings (2016).

Literatūros sąrašas

- K. Lindfors, T. Kalkbrenner, P. Stoller, V. Sandoghdar, Detection and spectroscopy of gold nanoparticles using supercontinuum white light confocal microscopy, Phys. Rev. Lett. 93(3), 037401 (2004).
- [2] B. von Vacano, M. Motzkus, Time-resolved two color single-beam CARS employing supercontinuum and femtosecond pulse shaping, Opt. Commun. 264(2), 488–493 (2006).
- [3] T. Dennis, J. B. Schlager, K. A. Bertness, A novel solar simulator based on a supercontinuum laser for solar cell device and materials characterization, IEEE J. Photovolt. 4(4), 1119–1127 (2014).
- [4] M. K. Reed, M. K. Steiner-Shepard, M. S. Armas, D. K. Negus, Microjoule-energy ultrafast optical parametric amplifiers, J. Opt. Soc. Am. B 12(11), 2229–2236 (1995).
- [5] A. Dubietis, R. Butkus, A. Piskarskas, Trends in chirped pulse optical parametric amplification, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 12(2), 163–172 (2006).
- [6] M. Durand, A. Jarnac, A. Houard, Y. Liu, S. Grabielle, N. Forget, A. Durécu, A. Couairon, A. Mysyrowicz, Self-guided propagation of ultrashort laser pulses in the anomalous dispersion region of transparent solids: A new regime of filamentation, Phys. Rev. Lett. 110(11), 115003 (2013).
- [7] D. Majus, G. Tamošauskas, I. Gražulevičiūtė, N. Garejev, A. Lotti, A. Couairon, D. Faccio, A. Dubietis, Nature of Spatiotemporal Light Bullets in Bulk Kerr Media, Phys. Rev. Lett. 112(19), 193901 (2014).
- [8] I. Gražulevičiūtė, R. Šuminas, G. Tamošauskas, A. Couairon, A. Dubietis, Carrier-envelope phase-stable spatiotemporal light bullets, Opt. Lett. 40(16), 3719–3722 (2015).
- [9] I. Gražulevičiūtė, G. Tamošauskas, V. Jukna, A. Couairon, D. Faccio, A. Dubietis, Selfreconstructing spatiotemporal light bullets, Opt. Express 22(25), 30613–30622 (2014).
- [10] 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).
- [11] J. Ranka, R. Schirmer, A. Gaeta, Observation of Pulse Splitting in Nonlinear Dispersive Media, Phys. Rev. Lett. 77(18), 3783–3786 (1996).
- [12] A. Gaeta, Catastrophic Collapse of Ultrashort Pulses, Phys. Rev. Lett. 84(16), 3582–3585 (2000).
- [13] A. Brodeur, S. L. Chin, Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media, J. Opt. Soc. Am. B 16(4), 637–650 (1999).

- [14] W. Liu, S. Petit, A. Becker, N. Aközbek, C. M. Bowden, S. L. Chin, Intensity clamping of a femtosecond laser pulse in condensed matter, Opt. Commun. 202(1-3), 189–197 (2002).
- [15] A. Couairon, D. Faccio, P. Di Trapani, Conical Waves, Filaments and Nonlinear Filamentation Optics (Aracne, 2007).
- [16] M. Conforti, F. Baronio, Extreme high-intensity and ultrabroadband interactions in anisotropic β-BaB₂O₄ crystals, J. Opt. Soc. Am. B 30(4), 1041–1047 (2013).
- [17] R. Desalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, H. Vanherzeele, Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP, Opt. Lett. 17(1), 28–30 (1992).
- [18] G. I. Stegeman, Cascading: Nonlinear Phase Shifts, Quantum Semiclass. Opt. 9(2), 139– 153 (1999).
- [19] K. Krupa, F. Baronio, M. Conforti, S. Trillo, A. Tonello, V. Couderc, Zero focusing via competing nonlinearities in beta-barium-borate crystals, Opt. Lett. 39(4), 925–928 (2014).
- [20] N. K. M. N. Srinivas, S. S. Harsha, D. N. Rao, Femtosecond supercontinuum generation in a quadratic nonlinear medium (KDP), Opt. Express 13(9), 3224–3229 (2005).
- [21] B. Zhou, H. Guo, M. Bache, Energetic mid-IR femtosecond pulse generation by selfdefocusing soliton-induced dispersive waves in a bulk quadratic nonlinear crystal, Opt. Express 23(5), 6924–6936 (2015).
- [22] S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, K. Kuroda, Soliton compression of femtosecond pulses in quadratic media, J. Opt. Soc. Am. B 19(10), 2505–2510 (2002).
- [23] B. B. Zhou, A. Chong, F. W. Wise, M. Bache, Ultrafast and octave-spanning optical nonlinearities from strongly phase-mismatched quadratic interactions, Phys. Rev. Lett. 109(4), 2505–2510 (2012).
- [24] S. A. Ali, P. Bisht, A. Nautiyal, V. Shukla, K. Bindra, S. Oak, Conical emission in βbarium borate under femtosecond pumping with phase matching angles away from second harmonic generation, J. Opt. Soc. Am. B 27(9), 1751–1756 (2010).
- [25] K. Krupa, A. Labruyère, A. Tonello, B. M. Shalaby, V. Couderc, F. Baronio, A. B. Aceves, Polychromatic filament in quadratic media: spatial and spectral shaping of light in crystals, Optica 2(12), 1058–1064 (2015).
- [26] J. Moses, F. W. Wise, Controllable self-steepening of ultrashort pulses in quadratic nonlinear media, Phys. Rev. Lett. 97(7), 073903 (2006).
- [27] J. Moses, B. A. Malomed, F. W. Wise, Self-steepening of ultrashort optical pulses without self-phase-modulation, Phys. Rev. A 76(2), 021802 (2007).

- [28] R. Šuminas, G. Tamošauskas, G. Valiulis, A. Dubietis, Spatiotemporal light bullets and supercontinuum generation in β-bbo crystal with competing quadratic and cubic nonlinearities, Opt. Lett. 41(9), 2097–2100 (2016).
- [29] P. B. Banerjee, Nonlinear Optics (Marcel Dekker, Inc., New York, 2004).
- [30] R. W. Boyd, Nonlinear Optics 3rd Edition (Academic Press, Boston, 2008).
- [31] A. P. Stabinis, G. Valiulis, Ultratrumpųjų šviesos impulsų netiesinė optika (Leidykla TEV, Vilnius, 2008).
- [32] R. W. Boyd, Order-of-magnitude estimates of the nonlinear optical susceptibility, J. Mod. Opt. 46(3), 367–378 (1999).
- [33] A. Dubietis, *Netiesinė optika* (Vilniaus Universitetas, Vilnius, 2011).
- [34] P. L. Kelley, Self-focusing of optical beams, Phys. Rev. Lett. 15, 1005–1008 (1965).
- [35] J. Marburger, Relation between optical breakdown field and stokes spectral broadening, Opt. Commun. 14(1), 92–94 (1975).
- [36] N. Bloembergen, The influence of electron plasma formation on superbroadening in light filaments, Opt. Commun. 10(8), 285–288 (1973).
- [37] R. Alfano, The Supercontinuum Laser Source (Springer, New York, 2006).
- [38] R. R. Alfano, S. L. Shapiro, Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass, Phys. Rev. Lett. 24(11), 584–587 (1970).
- [39] A. Couairon, A. Mysyrowicz, Femtosecond filamentation in transparent media, Phys. Rep. 441(2-4), 47–189 (2007).
- [40] P. B. Corkum, C. Rolland, Femtosecond continua produced in gases, IEEE J. Quantum Electron. 25(12), 2634–2639 (1989).
- [41] F. A. Ilkov, L. S. Ilkova, S. L. Chin, Supercontinuum generation versus optical breakdown in CO₂ gas, Opt. Lett. 18(9), 681–683 (1993).
- [42] Y. P. Raizer, Breakdown and heating of gases under the influence of a laser beam, Sov. Phys. Usp. 8(5), 650–673 (1966).
- [43] A. Brodeur, S. Chin, Band-Gap Dependence of the Ultrafast White-Light Continuum, Phys. Rev. Lett. 80(20), 4406–4409 (1998).
- [44] C. Nagura, A. Suda, H. Kawano, M. Obara, K. Midorikawa, Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media, Appl. Opt. 41(18), 3735–3742 (2002).

- [45] M. Bradler, P. Baum, E. Riedle, Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub-μJ pump pulses, Appl. Phys. B 97(3), 561–574 (2009).
- [46] J. K. Ranka, A. L. Gaeta, Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultrashort pulses, Opt. Lett. 23(7), 534–536 (1998).
- [47] A. Zozulya, S. Diddams, Dynamics of self-focused femtosecond laser pulses in the near and far fields, Opt. Express 4(9), 336–343 (1999).
- [48] S. Minardi, A. Gopal, A. Couairon, G. Tamosauskas, R. Piskarskas, A. Dubietis, P. Di Trapani, Accurate retrieval of pulse-splitting dynamics of a femtosecond filament in water by time-resolved shadowgraphy, Opt. Lett. 34(19), 3020–3022 (2009).
- [49] O. Isaienko, E. Borguet, P. Vöhringer, High-repetition-rate near-infrared noncollinear ultrabroadband optical parametric amplification in KTiOPO₄, Opt. Lett. **35**(22), 3832–3834 (2010).
- [50] M. Ghotbi, V. Petrov, F. Noack, Broadly tunable, sub-30 fs near-infrared pulses from an optical parametric amplifier based on BiB₃O₆, Opt. Lett. **35**(13), 2139–2141 (2010).
- [51] V. Jukna, J. Galinis, G. Tamosauskas, D. Majus, A. Dubietis, Infrared extension of femtosecond supercontinuum generated by filamentation in solid-state media, Appl. Phys. B 116(2), 477–483 (2014).
- [52] J. B. Ashcom, R. R. Gattass, C. B. Schaffer, E. Mazur, Numerical aperture dependence of damage and supercontinuum generation from femtosecond laser pulses in bulk fused silica, J. Opt. Soc. Am. B 23(11), 2317–2322 (2006).
- [53] S. E. Schrauth, B. Shim, A. D. Slepkov, L. T. Vuong, A. L. Gaeta, N. Gavish, G. Fibich, Pulse splitting in the anomalous group-velocity-dispersion regime, Opt. Express 19(10), 9309–9314 (2011).
- [54] J. Liu, R. Li, Z. Xu, Few-cycle spatiotemporal soliton wave excited by filamentation of a femtosecond laser pulse in materials with anomalous dispersion, Phys. Rev. A 74(4), 043801 (2006).
- [55] 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(21), 25210– 25220 (2013).
- [56] E. O. Smetanina, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin, A. E. Dormidonov, V. P. Kandidov, Anti-Stokes wing of femtosecond laser filament supercontinuum in fused silica, Opt. Lett. 38(1), 16–18 (2013).

- [57] A. Saliminia, S. L. Chin, R. Vallée, Ultra-broad and coherent white light generation in silica glass by focused femtosecond pulses at 1.5 μ m, Opt. Express **13**(15), 5731–5738 (2005).
- [58] M. L. Naudeau, R. J. Law, T. S. Luk, T. R. Nelson, S. M. Cameron, J. V. Rudd, Observation of nonlinear optical phenomena in air and fused silica using a 100 GW, 1.54 μm source, Opt. Express 14(13), 6194–6200 (2006).
- [59] M. Durand, K. Lim, V. Jukna, E. McKee, M. Baudelet, A. Houard, M. Richardson, A. Mysyrowicz, A. Couairon, Blueshifted continuum peaks from filamentation in the anomalous dispersion regime, Phys. Rev. A 87(4), 043820 (2013).
- [60] 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(7), 1406–1413 (2005).
- [61] D. Nikogosyan, Beta barium borate (BBO), Appl. Phys. A 52(6), 359–368 (1991).
- [62] G. New, Introduction to nonlinear optics (Cambridge University Press, Cambridge, 2011).
- [63] L. A. Ostrovskii, Self-action of light in crystals, JETP Lett. (5), 272–275 (1967).
- [64] R. W. Boyd, S. G. Lukishova, Y. R. Shen, Self-focusing: Past and Present: Fundamentals and Prospects (Springer Science & Business Media, 2008).
- [65] D. Zhang, Y. Kong, J. Zhang, Optical parametric properties of 532-nm-pumped betabarium-borate near the infrared absorption edge, Opt. Commun. 184, 485–491 (2000).
- [66] M. Bache, H. Guo, B. Zhou, X. Zeng, The anisotropic Kerr nonlinear refractive index of the beta-barium borate nonlinear crystal, Opt. Mater. Express 3(3), 357–382 (2013).
- [67] R. C. Miller, Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals, Appl. Phys. Lett. 5, 17–19 (1964).
- [68] I. Shoji, H. Nakamura, K. Ohdaira, T. Kondo, R. Ito, T. Okamoto, K. Tatsuki, S. Kubota, Absolute measurement of second-order nonlinear-optical coefficients of β-BaB₂O₄ for visible to ultraviolet second-harmonic wavelengths, J. Opt. Soc. Am. B 16(4), 620–624 (1999).
- [69] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman, D. J. Kane, Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating, Rev. Sci. Instr. 68(9), 3277–3295 (1997).