

Vilniaus Universitetas
Fizikos Fakultetas
Lazerinių Tyrimų Centras

Paulius Razma

**ŠVIESOS IMPULSŲ VĒLINIMAS ŽADINIMO – ZONDAVIMO SPEKTROSKOPIJAI
NANOSEKUNDŽIŲ-MIKROSEKUNDŽIŲ LAIKŲ SRITYJE**

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Studijų programa – Lazerinė technologija

Studentas

Darbo vadovas

Centro direktorius

Paulius Razma

prof. dr. Mikas Vengris

prof. dr. Roaldas Gadonas

Vilnius 2018

Turinys

| | |
|---|----|
| Turinys | 2 |
| Įvadas | 3 |
| 1. Literatūros apžvalga | 5 |
| Žadinimo – zondavimo spektroskopija..... | 5 |
| Optinės vėlinimo linijos..... | 8 |
| ABCD matricos ir optiniai rezonatoriai..... | 10 |
| Pokelso efektas | 12 |
| Sinchronizacijos signalo vėlinimas..... | 14 |
| Merocianininiai dažai <i>il4etb</i> ir <i>il4cn</i> | 15 |
| 2. Eksperimentų metodika | 16 |
| Daugelio praėjimų vėlinimo linija | 16 |
| Zonduojančio impulso vėlinimas su dviejų lazerių sinchronizacija | 20 |
| 3. Teoriniai ir eksperimentiniai rezultatai | 23 |
| Daugelio praėjimų vėlinimo linijos rezultatai | 23 |
| Zonduojančio impulso vėlinimo su dviejų lazerių sinchronizacija rezultatai..... | 28 |
| 4. Rezultatų apibendrinimas ir išvados | 35 |
| Literatūros sąrašas | 36 |
| Santrauka | 38 |
| Summary | 39 |

Ivadas

Daug procesų gamtoje vyksta labai ypač greitai, pavyzdžiui molekulių virpesiai, fotonų sugertis ir emisija, cheminės reakcijos tarp atomų. Kai kurie procesai gali vykti pikosekundžių (10^{-12} s) ar net femtosekundžių (10^{-15} s) skalėje. Šių greitų procesų stebėjimas svarbus, siekiant suprasti medžiagų savybių dinamiką.

Norint tiksliai išmatuoti greitus procesus, eksperimento laikinė skyra turi būti trumpesnė už tiriamo proceso trukmę. Vienas pirmų laikinės priklausomybės matavimų buvo sustabdytos srovės [1] metodas, leidęs pasiekti milisekundžių skalės laikinę skyrą, tiriant chemines reakcijas tirpaluose. Matavimas buvo pagrįstas tirpalo įleidimu į kiuvetę trumpais laiko tarpais. Technologijoms vystantis atsiremta į elektronikos laikinės skyros ribojimą.

Trumpų impulsų lazerių atsiradimas [2] padėjo naują žingsnį medžiagų kinetikos tyrimuose. Buvo sugalvotas naujas kinetikos tyrimo metodas, pavadintas žadinimo – zondavimo spektroskopija. Metodo esmė – bandinio sužadinimas lazerio impulsu ir bandinio sugerties skirtumo stebėjimas su zonduojančiu impulsu skirtingais laiko momentais. Tokiu būdu laikinę skyrą apsprendžia ne detektoriaus sparta, o šviesos impulso trukmė.

Procesų, kurie įvyksta per femtosekundes, rezultatai kartais gali užtrukti gerokai ilgiau – iki mikrosekundžių, sekundžių ar net minučių. Mikrosekundinių procesų pavyzdžiai galėtų būti fluorescencija, nukleorūgščių reakcijų difuzija [3] arba tripletinės būsenos susiformavimas [4]. Procesus, kurių trukmės viršija mikrosekundę, gana paprastai leidžia registruoti elektronikos prietaisai, tačiau trukmių diapazonas tarp ~ 10 ns ir 1μ s yra keblus: atstumu vėlini femtosekundinius impulsus galima apie 10 ns (tai atitinka 3 metrus optinio kelio). Todėl zondavimui (arba žadinimui) reikia antro lazerinio šaltinio arba labai aukšto intensyvumo blykstės, kurią būtų galima naudoti kaip kvazinuolatinės šviesos šaltinį, arba būdo gerokai prailginti zonduojančio impulso optinį kelią. Tokios blykstės paprastai neveikia didesniu nei kelių dešimčių Hz dažniu. Praplečiant vėlinimo trukmių diapazoną optinė eksperimento schema tampa gerokai sudėtingesnė.

Šiame darbe tiriami du nauji būdai priartėti prie mikrosekundžių eilės impulso vėlinimo žadinimo – zondavimo eksperimentui – zonduojančio impulso vėlinimas rezonatoriuje bei femtosekundinio žadinančio lazerio sinchronizavimas su zonduojančiu fotoninių kristalų šviesolaidžio lazeriu, generuojančiu nanosekundinius superkontinuumo impulsus.

Darbo tikslas – palyginti minėtus du metodus vėlini zonduojantį impulsą žadinimo – zondavimo eksperimentui.

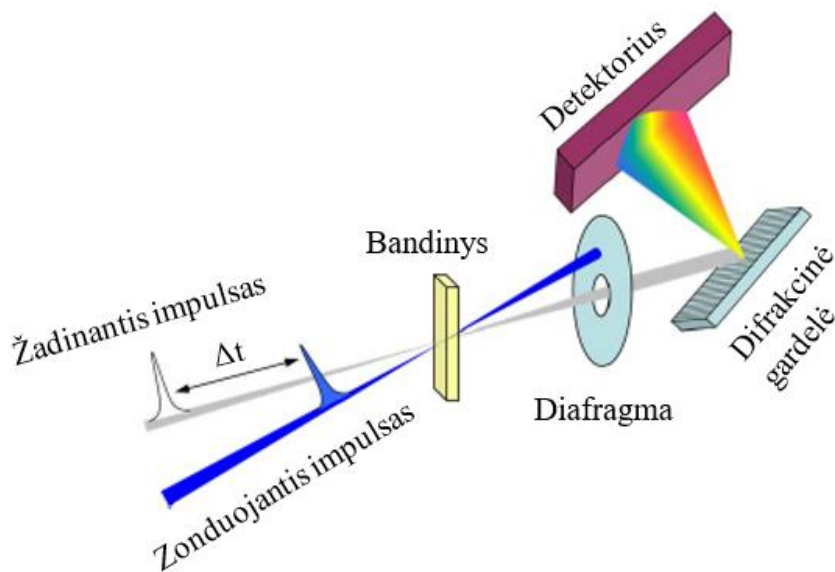
Darbo užduotys - sumodeliuoti ir surinkti rezonatorių, skirtą gauti optinį impulso vėlinimą. Surinktam rezonatoriui išmatuoti impulso slopimą bei impulso parametrų priklausomybę nuo vėlinimo. Su užlaikytu impulsu sugeneruoti kontinuumo spektrą ir įvertinti sistemos galimybes žadinimo – zondavimo eksperimentui atlikti. Taip pat darbo metu sinchronizuoti žadinantį femtosekundinį lazerį su zonduojančiu nanosekundiniu lazeriu ir įvertinti tokios sistemos tikslumą ir galimybes žadinimo – zondavimo eksperimentui atlikti su vėlinimo trukmėmis, artėjančiomis prie milisekundės eilės.

1. Literatūros apžvalga

Žadinimo – zondavimo spektroskopija

Žadinimo – zondavimo spektroskopija yra gana paprastas, tačiau unikalus matavimo metodas, skirtas ištirti sužadinto bandinio kinetiką su laikine skyra femtosekundžių eilėje.

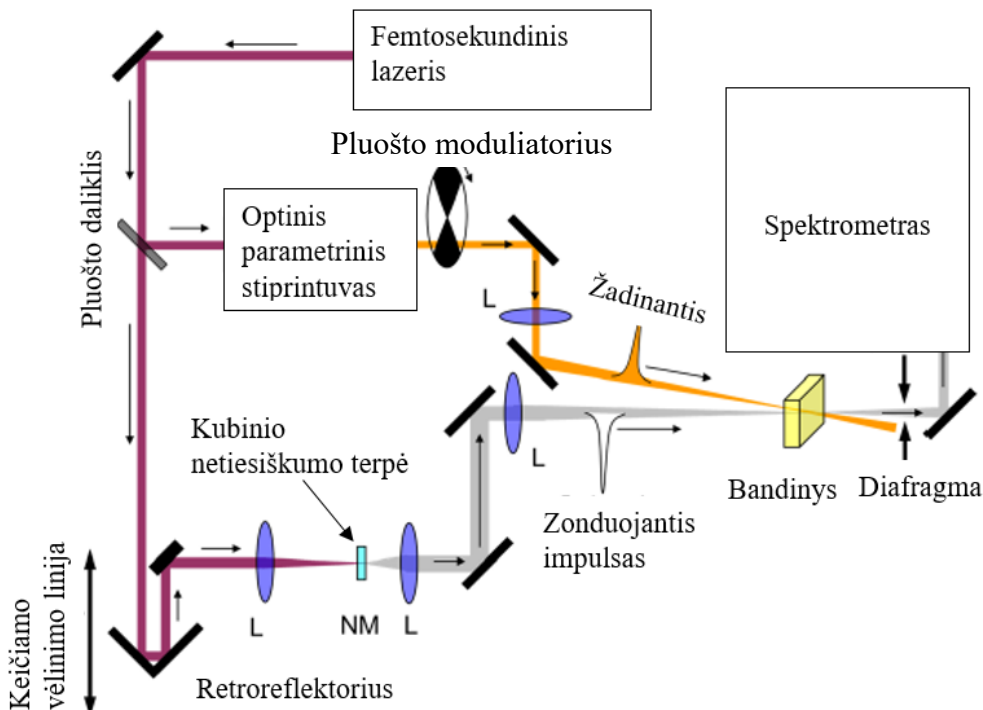
Matavimo metu bandinys yra sužadinamas trumpu lazerio impulsu, tuomet po tam tikro laiko tarpo bandinį pasiekia zonduojantis mažesnės galios ir plataus spektro impulsas. Spektrometru yra matuojama zonduojančio impulso sugertis bandinyje, nuosekliai keičiant laiko tarpą tarp žadinimo ir zondavimo impulsų. Bandinio sužadinimui reikalinga didesnė impulso energija, tuo tarpu zondavimui energiją stengiamasi turėti kuo mažesnę, siekiant išvengti zonduojančio impulso įtakos tiriamam bandiniui. Žadinantį ir zonduojantį impulsus pro bandinį leidžiant skirtingu kampu su apertūra galima blokuoti pirmąjį impulsą ir į spektrometrą įleisti tik antrąjį.



1 pav. Žadinimo – zondavimo matavimo idėja. Matuojama zondavimo impulso absorbcijos bandinyje spektro laikinė priklausomybė, keičiant vėlinimą tarp dviejų impulsų [5].

Matavimui atlikti naudojama schema pavaizduota 2 pav. Femtosekundinis lazeris (Ti-safyro, Yb:KGW) generuoja ~200 fs trukmės impulsą, kuris padalijamas į dvi atšakas. Vienoje jų impulsas keliauja į optinį parametrinį stiprintuvą, kuriame generuojamas bandinio sugeriamas bangos ilgis, tai bus žadinantis impulsas. Kitoje atšakoje impulsas keliauja per vėlinimo liniją ir lėšiu yra fokusuojamas į kubinio netiesiškumo terpę, kurioje dėl kelių netiesinių procesų generuojamas šviesos

kontinuumas – stiprus spektrinis impulso išplitimas artimoje UV, regimojoje ir artimoje IR srityje. Žadinantis impulsas yra pravedamas pro pluošto moduliatorių (besisukantis diskas su periodinėmis skylėmis), kurio tikslas yra suteikti galimybę išmatuoti ir sužadinto, ir nesužadinto bandinio sugerties spektrą.



2 pav. Principinė žadinimo – zondavimo schema, skirta matuoti sugerties skirtumui bandinyje (adaptuota pagal [5]).

2 pav. schema leidžia išmatuoti ir sužadinto, ir nesužadinto bandinio spektrus, taigi galima turėti sugerties skirtumą. Pagal Beer-Lambert dėsnį, intensyvumas už sužadinto bandinio bus:

$$I_{exc} = I_0 \cdot 10^{-A_{exc}} \quad (1)$$

Čia I_0 yra į bandinį krintančio impulso intensyvumas, o A_{exc} yra bandinio sugertis. Nesužadinto bandinio sugertis:

$$I_{noexc} = I_0 \cdot 10^{-A_{noexc}} \quad (2)$$

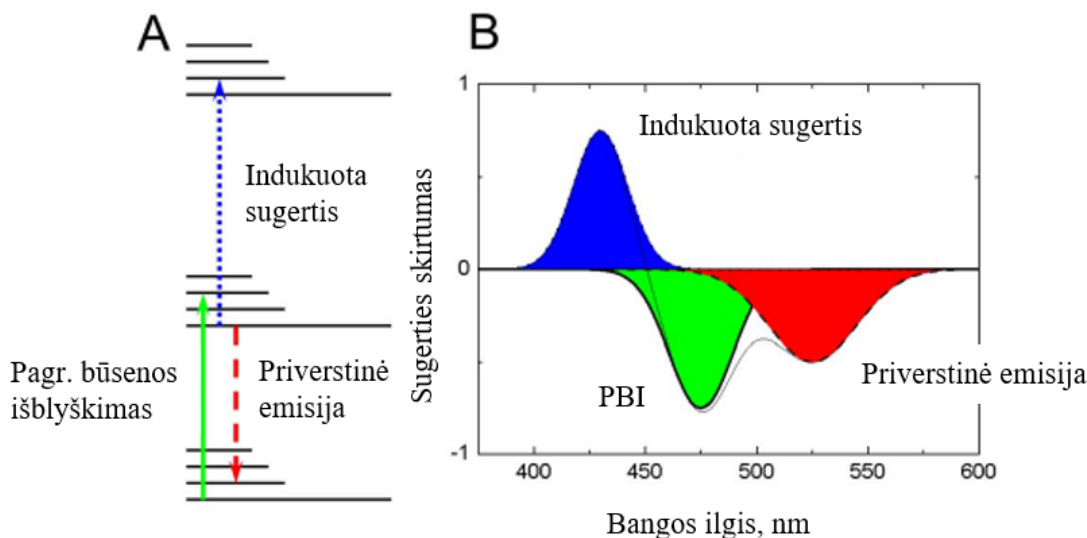
Sugerties skirtumą galima išreikšti padalinus (2) iš (1) ir pritaikius logaritmo funkciją:

$$\Delta A = A_{exc} - A_{noexc} = \lg \frac{I_{noexc}}{I_{exc}} \quad (3)$$

Iš (3) formulės matosi, kad norint gauti sugerties skirtumą nėra būtina matuoti į bandinį krintančio impulso intensyvumo. Intensyvumo spektrinį pasiskirstymą per visą zondavimo spektrą galima vienu metu matuoti su difrakciniu elementu ir detektorių matrica (CCD). Sugerties skirtumo

spektrinis pasiskirstymas ir yra žadinimo – zondavimo metu gaunamas signalas, matuojamas su skirtingais zondavimo impulso vėlinimo laikais.

Matavimo metu gautas sugerties skirtumo spektras susideda iš trijų pagrindinių dedamųjų. Viena iš jų – sumažėjęs nesužadintų molekulių skaičius bandinyje. Dėl to mažėja sugertis ties pagrindine molekulės būseną ir sugerties skirtumas toje srityje tampa neigiamas. Šios dedamosios spektrinė forma analogiška pagrindinės būsenos sugerties spektrui, o pati dedamoji vadinama pagrindinės būsenos išblyškimu.



3 pav. A - Schematinis energijos šuolių, atsakingų už sugerties skirtumo spektro dedamąsias (B), atvaizdavimas (adaptuota pagal [5]).

Kita žadinimo – zondavimo signalo dedamoji yra priklausoma nuo sužadintų molekulių energijos lygmenų. Zondavimo impulsas bandinyje gali sukelti priverstinę fotonų emisiją, iš sužadintų molekulių išnešdamas papildomą tokio paties bangos ilgio, poliarizacijos ir krypties fotoną kaip ir stimuliuojantis fotonas. Ši dedamoji sugerties skirtumo spektre irgi bus neigiama, kadangi sužadinto bandinio atveju spektrometrą pasieks papildomas skaičius fotonų iš sužadintų molekulių dėl priverstinės emisijos. Stimuliuotos emisijos spektro forma yra praktiškai identiška fluorescencijos spektrui. Taip pat pasireiškia ir Stokso poslinkis, lyginant su sugerties spektru. Jo priežastis yra molekulės ir aplinkos relaksacija į mažesnės energijos polygmenį sužadintoje būsenoje ir tikimybinis pasiskirstymas šuoliui į aukštesnį pagrindinės būsenos polygmenį.

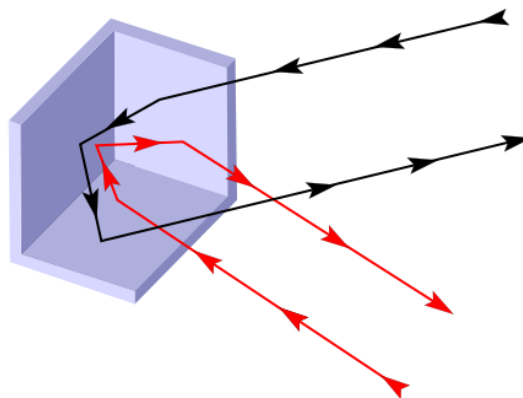
Trečia žadinimo – zondavimo signalo dedamoji yra indukuota sugertis, kurios priežastis yra sužadintų molekulių šuoliai į dar aukštesnes sužadintas būsenas, kuriuos sukelia zonduojantis impulsas. Šiuo atveju molekulės sugeria papildomą fotoną, taigi atsiranda papildoma sugertis sužadintos molekulės spektro atveju, o sugerties skirtumas yra teigiamas. Indukuota sugertis gali pasireikšti ne vien dėl sužadintos būsenos sugerties, bet ir, pavyzdžiui, dėl molekulės perėjimo į

tripletinę būseną, izomero susidarymo ar kitos priežasties, dėl kurios pasikeistų pagrindinės būsenos energija. Tipiškas sugerties skirtumo spektras su išskirtomis dedamosiomis ir pavyzdinė energijos šuolių, atsakingų už sugerties skirtumo spektrą, schema pavaizduota 3 pav. [5]

Laikinė skyra žadinimo - zondavimo eksperimento metu turi būti trumpesnė už tiriamo vykimo laiką. Laikinę skyrą apsprendžia ir žadinančio ir zonduojančio impulsų trukmės, o sąveika su medžiaga vyksta ne iš karto impulso trukmės atžvilgiu, kadangi impulsas turi savo laikinį intensyvumo pasiskirstymą (įprastai aproksimuojamą Gauso funkcija). Impulsų intensyvumo pasiskirstymas taip pat riboja ir minimalią trukmę, kurią galima išskirti po bandinio sužadavimo. Papildomas paklaidas įneša ir mechaninės vėlinimo linijos tikslumas.

Optinės vėlinimo linijos

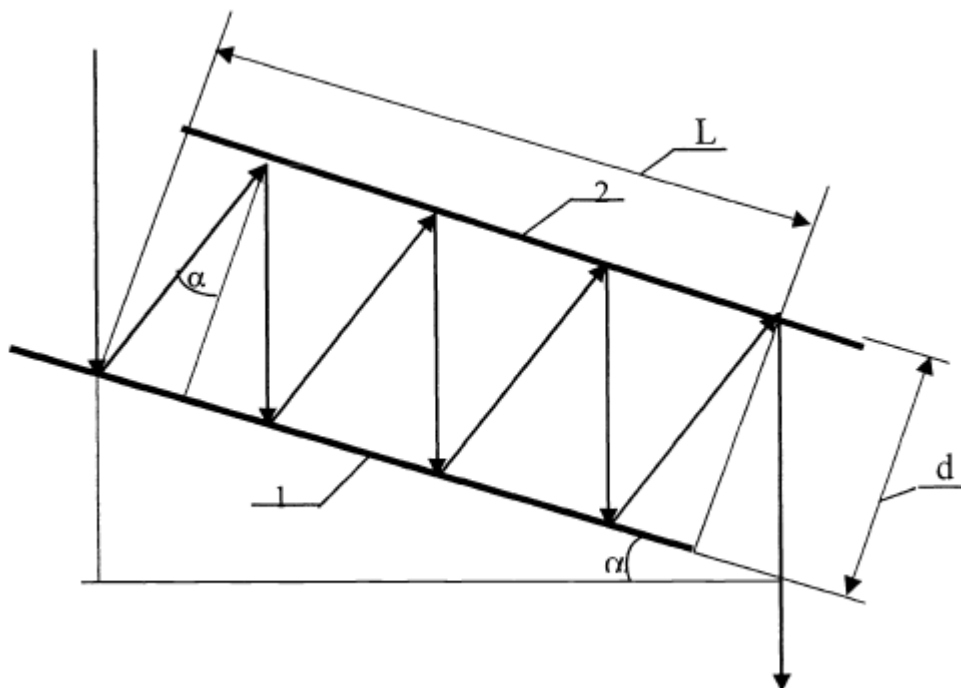
Norint užlaikyti šviesos impulsą pasirinkto atskaitos taško laike atžvilgiu, reikia sudaryti sąlygas užlaikomam impulsui nukeliauti didesnę kelią prieš pasiekiant tikslą. Paprasčiausias būdas tą pasiekti yra naudoti mechaninę vėlinimo liniją, susidedančią iš kampinio retroreflektoriaus ir tikslaus pozicionavimo staliuko. Retroreflektorius dėl savo geometrijos (4 pav.) pasižymi savybe atspindėti šviesą priešinga kryptimi nepriklausomai nuo įleidimo kampo, gali būti sudarytas iš trijų veidrodžių arba vientisa prizmė. Jeigu spindulys nėra įvedamas arti retroreflektoriaus centro, susidaro pastovus skersinis atspindžio poslinkis kritusio spindulio atžvilgiu, o tai labai paranku, jungiant vėlinimo liniją į bendrą sistemą.



4 pav. Principinė retroreflektoriaus schema. Skirtingais kampais kritusi šviesa grįžta atgal ta pačia kryptimi, tačiau paslinkta skersinėje koordinatėje.

Jeigu tokia vėlinimo linija pagaminama 1.5 metro ilgio, impulsui suvaikščiojus į abi puses galima gauti 10 ns maksimalų impulso vėlinimą, nekeičiant išeinančio impulso sklidimo krypties.

Optinį kelią taip pat galima keisti, naudojant dviejų veidrodžių bangolaidį (5 pav.), kuris pagrįstas dideliu atspindžių skaičiumi [6]. Ši skaičių galima varijuoti, keičiant spindulio įleidimo kampą į bangolaidį. Dėl to keičiasi išeinančio spindulio sklidimo kryptis ir keisti šiuos parametrus sudėtingiau, nei vėlinimo linijos ilgį su retroreflektoriumi. Dėl didelio atspindžių skaičiaus bangolaidis turi būti pagamintas iš aukšto atspindžio koeficiento veidrodžių (>99,9%).



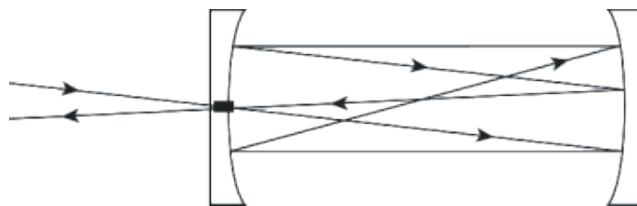
5 pav. Vėlinimo linijos su dviejų veidrodžių bangolaidžiu schema.[6]

Siekiant ilgo optinio kelio taip pat galima pasitelkti Herioto celės modelį [7]. Paprasčiausia Herioto celė susideda iš dviejų sferinių veidrodžių, viename iš jų yra skylė įvesti ir išvesti spindulį. Įvestas lazerio pluoštas keletą kartų suvaikšto tarp dviejų veidrodžių, išlikdamas ant rotacinio hiperboloideo paviršiaus. Sąlyga, kuri yra būtina, norint išvesti pluoštą iš Herioto celės atrodo taip [7]:

$$N\theta = 2M\pi \quad (4)$$

Čia M yra sveikas skaičius, θ – kampas tarp dviejų atspindžių radianais, o N – lyginis sveikas skaičius, apibrėžiantis apėjimų skaičių celėje. Taigi apėjimų skaičius, padaugintas iš kampo tarp atspindžių, turi būti 2π daugiklis. Apėjimų skaičių galima kontroliuoti, keičiant atstumą tarp veidrodžių. Pavyzdinė Herioto celės schema pavaizduota 6 pav.

Jeigu viename veidrodžių skylyje yra centre, atspindžių figūra sudaro liniją, todėl norint ilgesnio optinio kelio parankiau rinktis sferinį veidrodį su skyle toliau nuo centro, taip efektyviai išnaudojant didesnę veidrodžio paviršiaus plotą.



6 pav. Herioto celės principinė schema. Rodyklės nurodo pluošto sklidimo kryptį.

Norint išlaikyti modos diametrą, reikia į celę įleisti jos palaikomo pluošto parametrus, t.y. sąsmauka turi būti celės centre, o bangos frontas turi sutapti su sferinio veidrodžio atkartojamu frontu. Tai galima padaryti, lazerio pluoštą praleidžiant pro teleskopą, suderintą atitinkamam didinimui ir židinio nuotoliui. Tai reiškia, kad keičiant atstumą tarp veidrodžių ir norint išlaikyti tuos pačius pluošto parametrus reikia iš naujo suderinti teleskopą, o tai atlikti nėra paprasta. Jeigu greitas optinio kelio keitimas nėra aktualus, Herioto celės yra geras būdas pasiekti didelį optinį vėlinimą su dviem veidrodžiais.

ABCD matricos ir optiniai rezonatoriai

Prieš surenkant optinę sistemą dažnai yra paranku atlikti pluošto sklidimo modeliavimą, kuris suteikia galimybę optimizuoti sistemą bei išsirinkti reikiamus komponentus. Vadinamoji ABCD matrica leidžia aprašyti ir spindulio ir Gausinio pluošto sklidimą, tačiau skaičiavimų tikslumui svarbi paraksialinės aproksimacijos sąlyga – kampas θ tarp spindulio ir pasirinktos optinės ašies turi būti pakankamai mažas, kad $\sin \theta \sim \theta$. Tol, kol galioja paraksialinė aproksimacija, egzistuoja tiesinė skersinio nuokrypio r ir sklidimo kampo θ priklausomybė. Tokiu atveju galima aprašyti r ir θ pokytį už optinio elemento šia formule:

$$\begin{pmatrix} r' \\ \theta' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r \\ \theta \end{pmatrix} \quad (5)$$

$$A = \left. \frac{r'}{r} \right|_{\theta=0} \quad (6) \qquad B = \left. \frac{r'}{\theta} \right|_{r=0} \quad (7)$$

$$C = \left. \frac{\theta'}{r} \right|_{\theta=0} \quad (8) \qquad D = \left. \frac{\theta'}{\theta} \right|_{r=0} \quad (9)$$

Paprasčiausias optinis elementas – tuščia erdvė, aprašoma šia ABCD matrica:

$$M_1 = \begin{bmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (10)$$

Čia d yra atstumas, lygiagretus optinei ašiai, matrica rodo, kad sklidimo kampas nesikeičia, o skersinis nuokrypis keičiasi proporcingai kampui. Plonojo lęšio su židinio nuotoliu f ABCD matrica atrodo taip:

$$M_2 = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{bmatrix} \quad (11)$$

Iš matricos pavidalo galima spręsti, kad skersinis nuokrypis nepasikeičia, o sklidimo kampas θ pasikeičia proporcingai nuokrypiui. Veidrodžio su kreivumo radiusu R ABCD matrica (svarbu nepamiršti, kad yra apsuksama sklidimo kryptis):

$$M_3 = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{2}{R} & 1 \end{bmatrix} \quad (12)$$

Optinių elementų poveikis Gausiniam pluoštui gali būti skaičiuojamas, naudojant kompleksinį q parametą, kuriame yra informacija apie pluošto diametrą ir bangos fronto kreivumo radiusą:

$$\frac{1}{q} = -i \frac{\lambda}{\pi w^2} + \frac{1}{R} \quad (13)$$

Čia λ yra bangos ilgis, w – pluošto radiusas ir R – bangos fronto kreivumo radiusas. Optinio elemento poveikis Gausiniam pluoštui aprašomas taip:

$$q' = \frac{Aq + B}{Cq + D} \quad (14)$$

Iš (13) formulės galima išvesti bangos kreivumo fronto ir pluošto radiuso išraiškas:

$$R(z) = \operatorname{Re}(q(z)) = \frac{2B}{D-A} \quad (15)$$

$$w(z) = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \frac{1}{\operatorname{Im}\left(\frac{1}{q(z)}\right)}} = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \frac{2|B|}{\sqrt{4-(A+D)^2}}} \quad (16)$$

Optinis rezonatorius yra optinių elementų visuma, kurioje šviesa gali judėti uždaru ratu. Rezonatorius laikomas stabiliu, jeigu šviesos pluošto diametras po begalybės apėjimų neartėja į

begalybę. Rezonatoriaus stabilumo sąlygą galima įvertinti, pasinaudojant ABCD matricių formalizmu:

$$0 \leq \frac{A+D+2}{4} \leq 1 \quad (17)$$

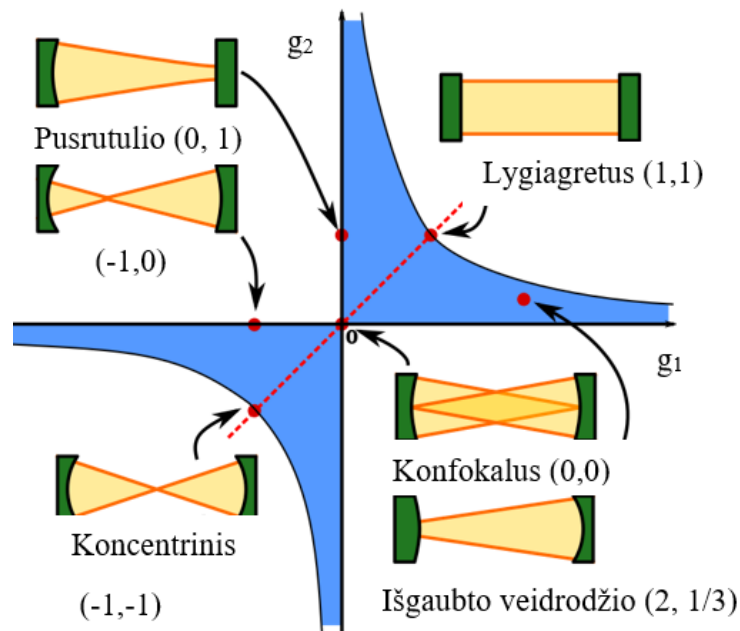
Stabilumo sąlygos panaudojimas paprasto dviejų veidrodžių rezonatoriaus atveju:

$$\frac{A+D+2}{4} = \left(1 - \frac{d}{R_1}\right) \left(1 - \frac{d}{R_2}\right) \quad (18)$$

Pažymėjus $1 - d/R_i = g_i$, gauname stabilumo sąlygą dviejų veidrodžių rezonatoriui [8]:

$$0 \leq g_1 g_2 \leq 1 \quad (19)$$

Tokio rezonatoriaus stabilumo zonos pavaizduotos 7 pav.:



7 pav. Dviejų veidrodžių rezonatoriaus stabilumo diagrama. Mėlyna spalva žymi stabilias rezonatoriaus konfigūracijas. (adaptuota pagal [9])

Pokelso efektas

Pokelso efektas yra tiesinis medžiagos atsakas į elektrinį lauką, kurio metu lūžio rodiklis keičiasi proporcingai elektriniam laukui. Efektas pasireiškia tik medžiagose, kurių gardelė nepasižymi centrine simetrija. Svarbiausios šio tipo medžiagos – kristalai ličio niobatas (LiNbO_3), ličio tantalatas (LiTaO_3), kalio II-deuterio fosfatas (KD*P), beta-bario boratas (BBO), kalio titano oksido fosfatas (KTP), kai kurie sudėtiniai puslaidininkiai (pvz. GaAs).

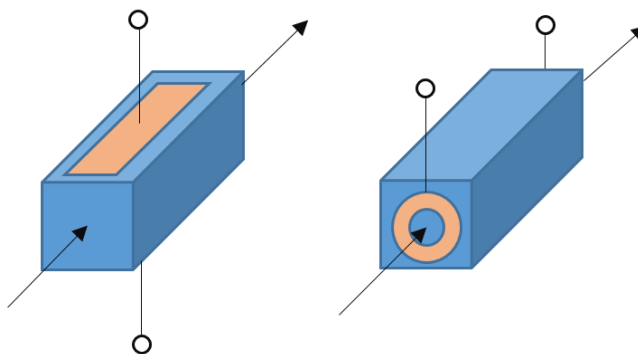
Pokelso efektą matematiškai galima paaiškinti kaip medžiagos lūžio rodiklio elipsoido, kuris aprašomas šia funkcija, deformaciją:

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 x^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_2 y^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_3 z^2 + 2\left(\frac{1}{n^2}\right)_4 xy + 2\left(\frac{1}{n^2}\right)_5 xz + 2\left(\frac{1}{n^2}\right)_6 yz = 1 \quad (20)$$

Elektrinis laukas gali keisti koeficientus pagal

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_i = \sum_{j=1}^3 r_{ij} E_j \quad (21)$$

Čia r_{ij} yra elektrooptinis tenzorius, i yra sveikas skaičius nuo 1 iki 6, atitinkantis (20) išraiškos komponentus. Pokelso efektu yra paremtos Pokelso celės, kurios gali būti naudojamos kaip moduluojama banginė plokštelė. Išoriniu elektriniu lauku galima sukurti dvejopą lūžį šviesos sklaidimo kryptimi, taip šviesai suteikiant skirtingą fazės poslinkį tarp ortogonalų poliarizacijos komponentų. Pokelso celėje išorinis elektrinis laukas sukuriamas, pridedant elektrodus prie priešingų viena kitai kristalo plokštumų, taigi yra dvi konfigūracijos: išilginė ir skersinė (8 pav.)



8 pav. Skersinė (kairėje) ir išilginė (dešinėje) šviesos sklaidimo kryptiniai Pokelso celės konfigūracijos.

Dvejopo lūžio Δn suteikiamas fazės užlaikymas yra aprašomas

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi\Delta n l}{\lambda} \quad (22)$$

Čia l – kristalo ilgis, λ – bangos ilgis. Jeigu į Pokelso celę, veikiamą išorinio elektrinio lauko, patenka tiesiškai poliarizuota šviesa, esant $\pi/2$ fazės pokyčiui praėjusi šviesa bus apskritimiškai poliarizuota. Jeigu fazės pokytis bus lygus π , tuomet šviesos poliarizacija bus pasukta 90 laipsnių. Įtampos, reikalingos pasiekti atitinkamam poliarizacijos pokyčiui, vadinamos ketvirčio bangos ir pusės bangos įtampomis. Naudojant išilginę konfigūraciją, elektrinis laukas lygus $E=V/l$, čia V – pridedama įtampa, o l – kristalo ilgis. KD*P atveju (21) formulėje r_{ij} yra elektrooptinis koeficientas r_{63} , LiNbO₃ ar BBO atveju – r_{22} [10]. Išilginės konfigūracijos būdu galima naudoti plačią apertūrą,

kadangi nuo jos nepriklauso reikalinga įtampa. Skersinės konfigūracijos atveju $E=V/d$, čia d – atstumas tarp elektrodų. Taigi pusės bangos įtampa auga proporcingai apertūros diametru ir mažėja proporcingai kristalo ilgiui. r_{63} koeficientas KD*P mažai priklauso nuo bangos ilgio, tačiau yra jautrus temperatūros pokyčiams. Ketvirčio bangos įtampa išilginei KD*P konfigūracijai 1060 nm spinduliutei yra apie 3200 voltų. BBO atveju r_{22} yra mažesnis už KD*P r_{63} elektrooptinį koeficientą, tačiau BBO yra naudingas dėl savo aukšto pažeidimo slenksčio. Ketvirčio bangos įtampa skersinei konfigūracijai, 1064 nm spinduliutei, naudojant 4x4 pločio bei aukščio, 20 mm ilgio kristalą, yra apie 4350 voltų [10]. Siekiant sumažinti reikalingą įtampą naudojama kristalų pora arba vienas ilgesnis kristalas. Visos šios medžiagos pasižymi nestipriu pjezoelektriniu efektu [11]. Po įtampos pokyčio akustinės bangos sklinda nuo kristalo kraštų į centrą. Išrenkant impulsus tai gali nebūti aktualu, kadangi garso bangos sklinda labai lėtai palyginus su šviesa ir kristalo centro gali nepasiekti iki impulso praėjimo. Už akustinės bangos kristalas deformuojasi, o tai keičia poliarizaciją.

Pagrindiniai Pokelso celės parametrai yra ketvirčio arba pusės bangos ilgio įtampa, pralaidumas ir kontrastas tam tikram bangos ilgiui bei spektrinė pralaidumo ir kontrasto priklausomybė. Pokelso celės kontrastas apibūdina, kokia dalis šviesos įgauna pasuktą poliarizaciją įjungtos įtampos atveju arba kokia dalis šviesos išlaiko poliarizaciją išjungtos įtampos atveju. Pavyzdžiui, jeigu celės kontrastas su įjungta pusės bangos įtampa yra 1000:1, tai nuostoliai praleidus impulsą pro idealų poliarizatorių bus viena tūkstantoji visos impulso energijos.

Siekiant dideliu pasikartojimo dažniu ir greitai užkelti įtampą nuo nulinės iki ketvirčio ar pusės bangos naudojamos specialios elektroninės schemos su keliais nuosekliai sujungtais griūtiniais tranzistoriais [12].

Sinchronizacijos signalo vėlinimas

Alternatyva optinio impulso dalinimui į du impulsus ir vieno iš jų vėlinimui kito atžvilgiu yra dviejų lazerių sinchronizavimas.

Aktyviai moduluojami impulsiniai lazeriai gali veikti pasikartojimo dažniu, kurį užduoda integruotas programuojamas skaitliukas, arba, jeigu yra stiprinamas pasyviai moduluojamo osciliatoriaus signalas, stiprintuvas gali prisirišti prie osciliatoriaus optinio signalo. Naudojant lazerio elektronikos išvedamą signalą galima prie lazerio pririšti išorinę sinchronizaciją palaikantį prietaisą, pavyzdžiui antrą lazerį arba išorinę Pokelso celę. Manipuliuojant sinchronizacijos signalu galima valdyti laiką tarp šių dviejų lazerių išsaunamų impulsų. Tokiems taikymams, kaip žadinimo zondavimo spektroskopija, nėra svarbu išlaikyti impulso parametrus tarp atskaitinio ir vėlinamo impulsų, todėl galima gana nesunkiai įgyvendinti optinę schemą. Zonduojančio impulso vėlinimas

iki 800 mikrosekundžių jau buvo įgyvendintas [13]. Darbui buvo pasirinktas femtosekundinis Ti:safyro lazeris, kuriuo generuotas kontinuumas bandinio zondavimui 450 – 750 nm intervale, tuo tarpu žadinimui panaudotas 6 ns trukmės 1064 arba 532 nm bangos ilgio impulsus generuojantis Nd:YAG lazeris. Sistemos laikinę skiriamąją gebą nulemia lazeris, kurio impulsas yra ilgesnės trukmės – šiuo atveju eksperimentui 6 ns laikinę skyrą suteikia žadinimo lazeris. Tiriant mikrosekundžių eilės kinetiką nebuvo galimybės pakeisti žadinimo bangos ilgį, kadangi 6 ns trukmės impulsų intensyvumo nepakanka parametrinio stiprintuvo kaupinimui. Dėl šio apribojimo reikėjo pasirinkti bandinius, kurie pasižymi gera sugertimi Nd:YAG lazerio generuojamų impulsų bangos ilgiui.

Merocianininiai dažai *il4etb* ir *il4cn*

Merocianininiai junginiai yra polimetininių dažų klasė, pasižyminti siaurais sugerties ir fluorescencijos spektrais. Polimetininės molekulės sudarytos iš anglies atomų grandinės su viengubomis ir dvigubomis jungtimis. Grandinės galuose yra dvi funkcinės grupės, sudarytos iš ciklinių ir neciklinių organinių junginių. Varijuojant grandinę ir funkcines grupes galima keisti tokių organinių junginių savybes [14].

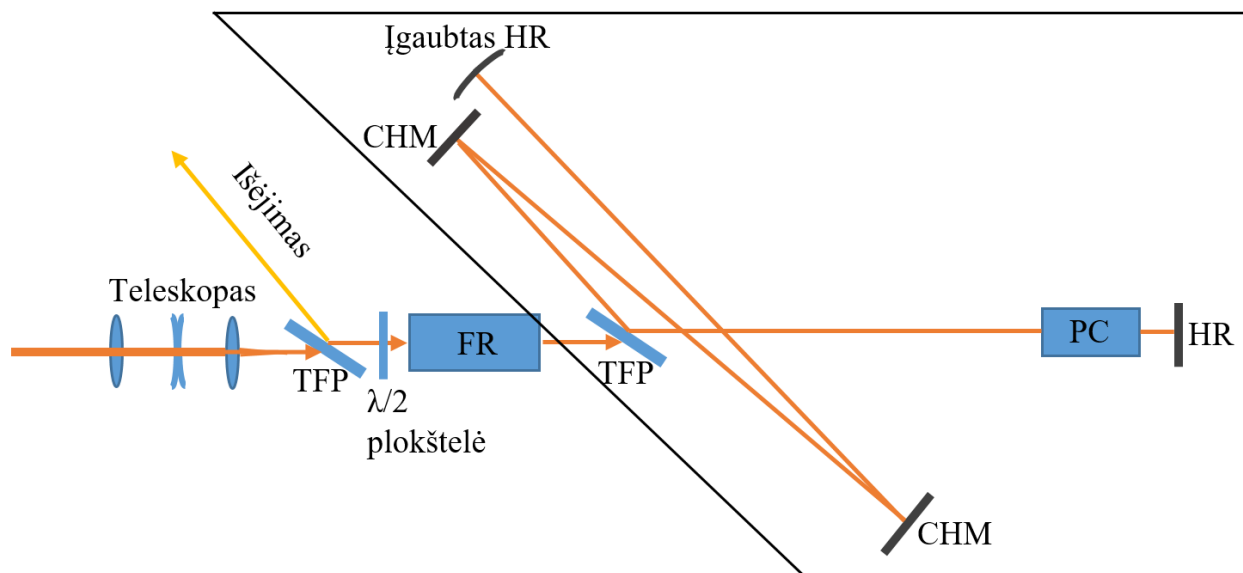
Merocianiniai išskirtiniai polimetilinių dažų klasėje, kadangi jų polimetininės grandinės galuose esančios grupės yra nevienodos, taigi jie pasižymi elektronine asimetrija. Grandinės galuose esančios funkcinės grupės per pačią grandinę gali dalinai keistis krūvininkais. Merocianininiai dažai naudojami, atliekant cheminę ir fizikinę analizę, kuriant naujo tipo vaistus, naujas medžiagas netiesinės optikos elementams, telekomunikacijose bei molekulinį loginių elementų prototipuose [14].

Atliekant mikrosekundžių eilės vėlinimo žadinimo – zondavimo eksperimentą buvo pasirinkta stebėti merocianininių dažų *il4etb* ir *il4cn* kinetiką. Dažai buvo susintetinti A. Iščenkos laboratorijoje Organinės Chemijos Institute, Kijeve (Ukraina). Donorinės funkcinės grupės dažuose buvo 10,10-dimetil-7,8,9,10-tetrahidro-6H[1,2- a]indolio (trump. – *il*), tuo tarpu elektronus priimančios grupės buvo malonitrilo (trump. – *cn*), arba 1,3-dietil-tiobarbituratinės (trump. - *etb*) rūgšties dariniai. Skaičius 4 dažų trumpinyje žymi konjuguotų grandinių, suskirstytų į metileno grupes, ilgį. Šie dažai buvo analizuojami D. Dementavičiaus magistrantūros baigiamajame darbe [15] ir pasirinkti šiam darbui dėl palankių sugerties juostų bei mikrosekundžių eilės izomerinės būsenos gyvavimo trukmės.

2. Eksperimentų metodika

Daugelio praėjimų vėlinimo linija

Šiame darbo metu buvo bandoma schema, skirta užlaikyti femtosekundinį šviesos impulsą, artėjant prie mikrosekundžių eilės su galimybe nesunkiai keisti vėlinimo trukmę. Norint impulsą užlaikyti 1 mikrosekunde, reikia optinį kelią prailginti iki 300 metrų, o tai laboratorijos sąlygomis yra nepraktiška gabaritų požiūriu. Be to, pluoštui sklindant tokį didelį atstumą jis smarkiai išplistų dėl difrakcijos. Siekiant išvengti šiuo problemų, impulsas norimam laikui buvo uždaromas rezonatoriuje. Šiam tikslui buvo surinkta 9 pav. pavaizduota sistema:



9 pav. Impulso vėlinimo schema. TFP – poliarizatorius, FR – Faradėjaus rotatorius, PC – Pokelso celė, CHM – čirpuotas veidrodis, HR – aukšto atspindžio veidrodis. Juodu kontūru apibrėžtas rezonatorius.

Sistema susideda iš rezonatoriaus su Pokelso cele ir Faradėjaus izoliatoriaus. Faradėjaus izoliatorius susideda iš dviejų poliarizatorių, pusės bangos ilgio plokštelės ir Faradėjaus rotatoriaus.

Faradėjaus rotatorius yra medžiaga (dažnai naudojami terbio-galio granatas TGG arba terbiu legiruotas boro silikatas), veikiama nuolatinio magnetinio lauko, kurio linijų kryptis sutampa su pluošto sklidimo kryptimi. Medžiagoje pasireiškia magneto-optinis efektas, kuris suka šviesos poliarizacijos plokštumą. Parinkus tinkamą medžiagą, magnetinio lauko stiprumą ir kristalo ilgį, galima Faradėjaus rotatoriumi 45 laipsnių kampu pasukti poliarizaciją tam tikram bangos ilgiui. Faradėjaus rotatorius nuo fazinės plokštelės skiriasi tuo, kad šviesai grįžtant atgal į rotatorių poliarizacijos sukimo kryptis išlieka ta pati. Tokiu būdu galima turėti skirtingą poliarizaciją

įeinančiam ir grįžtančiam pluoštui. Kartu naudojant 45 laipsnių poliarizacijos sukimui išstatytą pusės bangos fazinę plokštelę ir iš abiejų pusių pastačius poliarizatorius galima praleisti pluoštą į sistemą ir nukreipti grįžtantį pluoštą kitu keliu, kadangi poliarizatorius atspindi 90 laipsnių pasuktą poliarizaciją. Tokia optinių elementų kombinacija vadinama Faradėjaus izoliatoriumi.

Naudojamas rezonatorius savo optine konfiguracija labai panašus į regeneratyvinį stiprintuvą, tačiau šiuo atveju nėra aktyvios terpės ir impulsas nepatiria stiprinimo. Į rezonatorių įvestas impulsas, praeidamas pro įjungtą Pokelso celę, atsispindėdamas nuo galinio veidrodžio ir dar kartą praėjęs celę, įgauna 90 laipsnių poliarizacijos pokytį. Tuomet impulsas atsispindi nuo poliarizatoriaus, suvaikšto iki kito galinio veidrodžio, vėl atsispindi nuo poliarizatoriaus ir pasiekia Pokelso celę. Kol impulsas sklinda rezonatoriumi, elektrinis laukas ant celės išjungiamas ir poliarizacija nebekeičiama, tokiu būdu impulsas laikomas rezonatoriuje tol, kol vėl nebus įjungta įtampa. Valdant laiko tarpą tarp įtampos išjungimo ir įjungimo galima diskrečiais laiko tarpais vėlinti impulsą. Vėlinimo žingsnis priklausys nuo rezonatoriaus ilgio.

Į rezonatorių šalia Pokelso celės galima patalpinti papildomą ketvirčio bangos fazinę plokštelę. Tokiu atveju įėjusio impulso poliarizacija bus pasukta 90 laipsnių, kai Pokelso celės įtampa išjungta. Įjungus įtampą poliarizacija bus pasukama 180 laipsnių, o tai šiuo atveju analogiška poliarizacijos palaikymui.

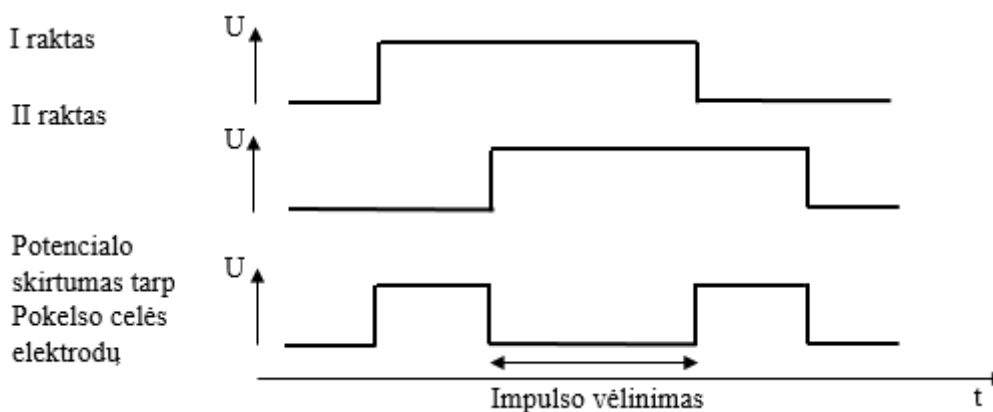
Šiam darbui buvo panaudotas įmonės „Eksma Optics“ gaminamas impulsų išrinktuvas „UP1“ kartu su jo valdymo įranga „Pmaster 4.0H“. Pokelso celės specifikacijos – 2.19 kV ketvirčio bangos įtampa, 99.27 % pralaidumas ir 1300:1 poliarizacijos kontrastas (be įtampos) 1030 nm bangos ilgiui. Pokelso celėje naudojami du 4x4x20mm BBO kristalai. Pokelso celės valdymo įranga gali moduliuoti įtampą iki 1 MHz dažniu, įtampos kilimo bei kritimo laikas – mažiau nei 7 ns. Aukštos įtampos impulso ant Pokelso celės trukmė gali būti keičiama nuo 0 iki 5000 ns. Impulsų išrinktuvą galima valdyti su „Eksma Optics“ suteikiama programine įranga.



10 pav. Impulsų išrinktuvas „UP1“ viršuje ir aukštos įtampos valdymo įranga „Pmaster 4.0H“ apačioje. [16]

Šio prietaiso veikimo dažnį galima išoriškai sinchronizuoti. Femtosekundinius impulsus generuoja ir stiprina įmonės „Šviesos Konversija“ lazeris „Pharos“. Impulsų išrinktuvas buvo sinchronizuotas su „Pharos“ regeneratyvinio stiprintuvo Pokelso celės įjungimo signalu.

Pokelso valdymo įranga turi du aukštos įtampos raktus – kiekvienas iš jų aukštą įtampą palaiko ne mažiau nei 120 ns dėl techninių apribojimų. Įjungus vieną raktą, Pokelso celėje susidaro potencialų skirtumas, įjungus abu raktus vienu metu šis skirtumas kompensuojasi. Dėl to galima įgyvendinti išskirtines poliarizacijos keitimo moduliacijas. 11 pav. pavaizduota aukštos įtampos generavimo raktuose kombinacija, kurios dėka vėlinimo linijoje galima impulsą laikyti be pusės bangos fazinės plokštelės.



11 pav. Principinė įtampos tarp Pokelso celės elektrodų moduliavimo schema. Laiko tarpas tarp potencialo skirtumo grubiai atitinka impulso užlaikymą rezonatoriuje.

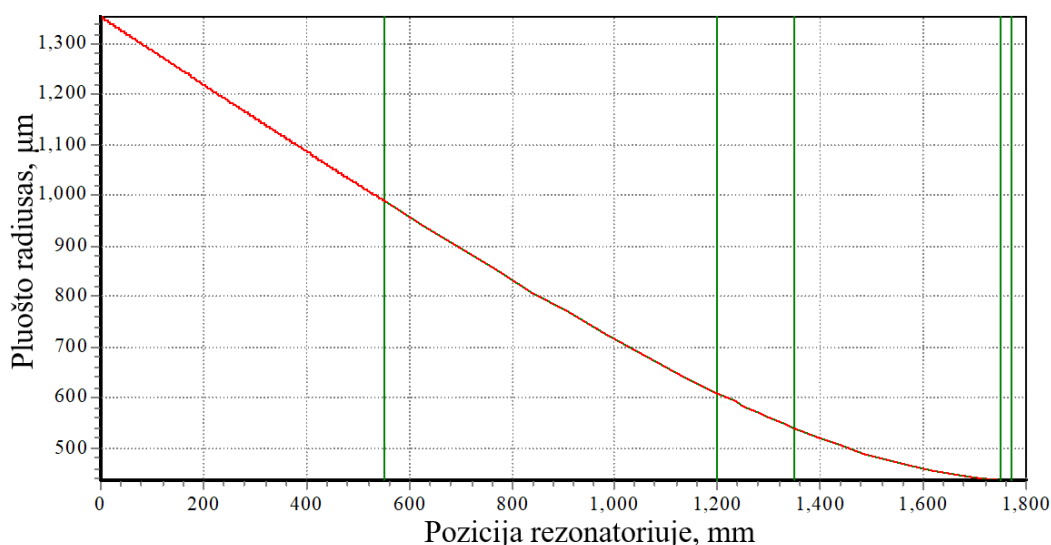
Kadangi impulsas vėlinimo metu daug kartų kerta 40 mm ilgio BBO kristalą, pasireiškia žymus impulso spektrinių komponentių išplitimas laike. Tai vadinama grupinių greičių dispersija ir aprašoma:

$$GDD(\lambda) = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{\partial^2 n(\lambda)}{\partial \lambda^2} \quad (23)$$

Beta – bario borato (BBO) grupinė greičių dispersija 1030 nm bangos ilgiui yra 45.7 fs²/mm. Tai reiškia, kad vienu rezonatoriaus apėjimu įnešama ~3650 fs² grupinė vėlinimo dispersija.

Grupinio vėlinimo dispersijos kompensavimui buvo panaudoti du čirpuoti veidrodžiai, kurie specifikuojami kaip turintys -900 fs² grupinę vėlinimo dispersiją ties 1030 nm. Jie sudaryti iš dviejų skirtingo lūžio rodiklio dielektrikų periodinės struktūros. Dielektrikų sluoksniai parenkami tokie, kad didesnio dažnio komponentės atsispindėtų nuo artimesnių paviršiui sluoksnių, tuo tarpu mažesnio dažnio komponentės – nuo gilesnių sluoksnių. Taip mėlynesnė spinduliuotės dalis nukeliauja trumpesnę optinį kelią, tai yra lygu neigiamai grupinių greičių dispersijai.

Rezonatoriui modeliuoti buvo pasinaudota ABCD matricų formalizmu paremta programa „Rezonator“. Sumodeliuotas 1,85m ilgio rezonatorius su vienu plokščiu galiniu veidrodžiu ir vienu 2m kreivumo radiuso įgaubtu veidrodžiu (12 pav.).



12 pav. Vėlinimo linijos rezonatoriaus modelio palaikomos stabilios modos radiuso priklausomybė nuo pozicijos rezonatoriuje. 0 mm simbolizuoja sferinį galinį veidrodį (žiūrėti 9 pav.), 1850 mm yra plokščio galinio veidrodžio už Pokelso celės pozicija. Pluošto radiusas išreikštas $1/e^2$ nuo maksimumo aukštyje.

Rezonatoriaus palaikomos modos radiusas w ties pokelso cele yra 0.45 mm ir 1.35 mm ties sferiniu veidrodžiu. Pokelso celės apertūros radiusas specifikuojamas lygus 1.75 mm, o idealus Gauso pluoštas, praėjęs pro $2w$ radiuso apertūrą, išlaiko 99.97% energijos. Teisingai užvedus pluoštą ant Pokelso celės galima tikėtis, jog nuostoliai dėl celės apertūros nepasireikš.

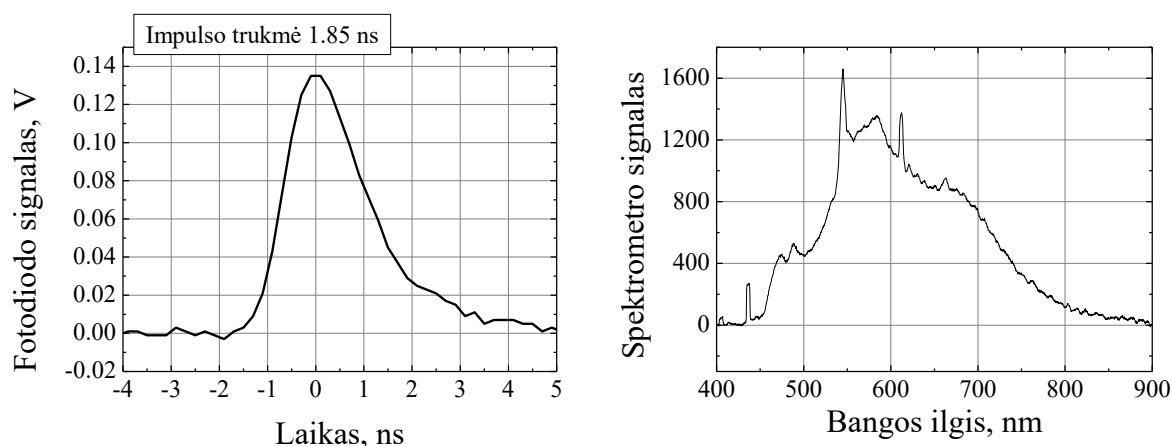
Pluošto radiuso pasiskirstymas rezonatoriuje reiškia, kad įvesti reikia kuo panašesnio diametro sąsmaukoje ir sąsmaukos pozicijos pluoštą. Pluošto įvedimui į rezonatorių panaudotas teleskopas, sudarytas iš -100, 50 ir -50 mm židinio nuotolio lęšių. Trijų lęšių sistema suteikia galimybę derinti pluošto skėstį ir diametrą, tačiau tokio teleskopo derinimas nėra trivialus.

Veidrodžiai, naudoti eksperimente, buvo padengti dielektrine danga, kuri paremta Brego difrakcija – nuo kiekvieno dangos sluoksnio sudaroma konstruktyvi interferencija atspindėtai šviesai ties tam tikru bangos ilgiu, tokie veidrodžiai dar vadinami aukšto atspindžio (angl. *High reflectance*) veidrodžiais. Šviesą praleidžianti optika padengta antirefleksine danga – sudaroma destruktvyvi interferencija tarp atspindžių nuo skirtingų paviršiaus sluoksnių.

Zonduojančio impulso vėlinimas su dviejų lazerių sinchronizacija

Atsižvelgus į sudėtingą daugelio praėjimų rezonatoriaus įgyvendinimą, šiame darbe buvo surinkta žadinimo – zondavimo sistema iš dviejų lazerių. Nuo [13] ir [15] darbuose aptartos sistemos ši skiriasi tuo, kad žadinimo impulsas yra femtosekundinis su galimybe derinti bandinio žadinimo bangos ilgį, o zondavimui naudojamas nanosekundinius šviesos kontinuumo impulsus generuojantis lazeris.

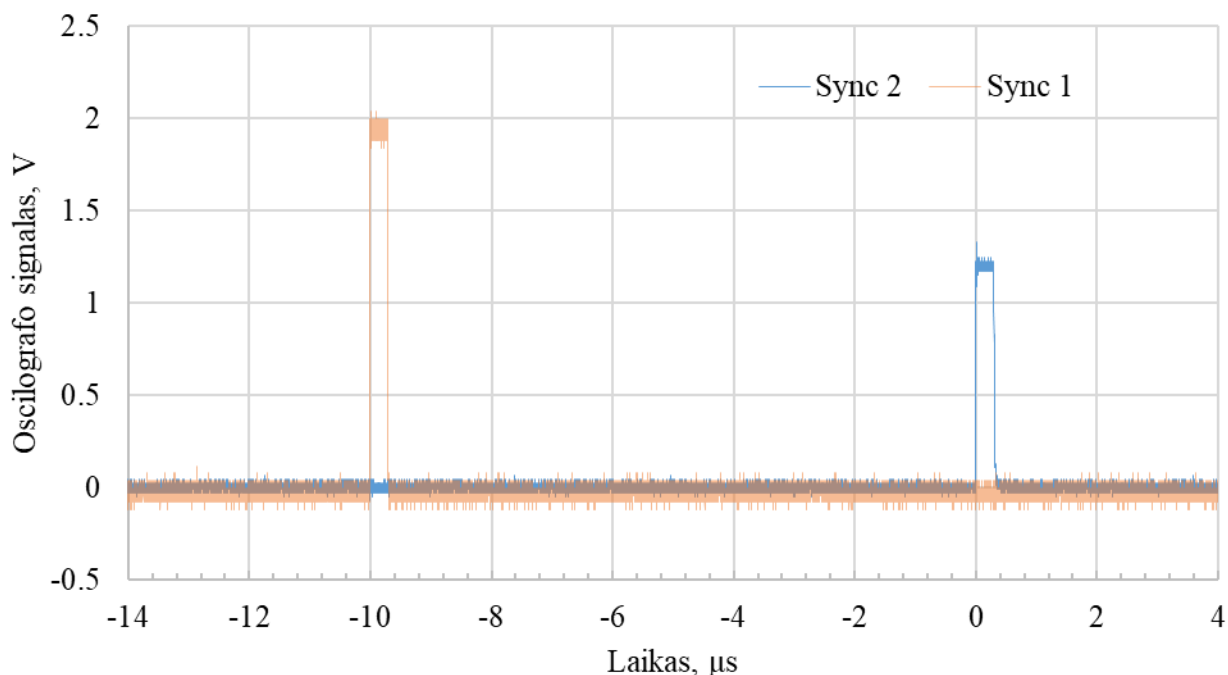
Ekperimentui buvo panaudotas „Šviesos Konversijos“ pagamintas femtosekundinis lazeris „Pharos“ su antros harmonikos modulių, generuojantis 515 nm ~200 fs trukmės žadinančius impulsus. Zondavimui dėl savo ekonomiškumo, galios stabilumo ir plataus kontinuumo spektro pasirinktas „NKT Photonics“ pagamintas „SuperK Compact“ fotoninių kristalų šviesolaidžio lazeris, generuojantis 2 ns trukmės baltos šviesos kontinuumo spektro impulsus. Gamintojas specifikuoja <+/- 1% išvadinės galios stabilumą matuojant 1 valandą. Taip pat buvo naudojama „Šviesos Konversijoje“ gaminama žadinimo – zondavimo sistema „Harpia“.



13 pav. Kairėje – greitu fotodiodu išmatuota „SuperK Compact“ impulso trukmė ties puse maksimumo, dešinėje – 350 – 1100 nm diapazone jautriu spektrometru užfiksuotas kontinuumo spektras.

„Pharos“ lazerio elektronikos modulis TEM (angl. *Timing Electronics Module*) suteikia galimybę išvesti skaitmeninį sinchronizacijos signalą, tačiau lazeris „SuperK Compact“ iššauna impulsą tik praėjus 20 mikrosekundžių nuo gauto signalo. Tai reiškia, kad užlaikant skaitmeninį „Pharos“ TEM generuojamą signalą minimali trukmė tarp žadinančio ir zonduojančio impulsų bus 20 μ s.

Šiems lazeriams sinchronizuoti buvo pasinaudota „De0 Nano“ programuojama loginių elementų masyvo (angl. *Field programmable gate array – FPGA*) plokštė. Naudojant „Altera Quartus II“ programinę įrangą buvo parašytas kodas, kuris pasinaudoja plokštės vidiniu laikrodžiu sinchronizacijos signalui generuoti. Plokštė suteikia 2 ns laikinę skyrą, kurią apsprendžia plokštės vidinio laikrodžio maksimalus dažnio daugiklis, generuojantis 500 MHz dažnio skaitmeninių impulsų vorą. Sinchronizacijos signalas generuojamas, dalinant skaitmeninių impulsų vorą iki 1000 kHz. Generuojamas signalas padalinamas į du, vienas iš jų vėlinamas fiksuotu laiko tarpu, kuris turi būti ilgesnis už laiką tarp „SuperK Compact“ signalo priėmimo ir lazerio impulso, t.y. daugiau nei 20 μ s. Tai signalas, paduodamas į „Pharos“ lazerio TEM, prie šio signalo prisiriša regeneratyvinio stiprintuvo Pokelso elementas. Antras FPGA generuojamas signalas paliekamas su galimybe keisti vėlinimo trukmę. Tokiu būdu galima zonduojantį impulsą stumdyti laike nuo kelių mikrosekundžių prieš žadinantį impulsą (šio darbo metu – 80 μ s prieš) iki beveik milisekundės po žadinančio impulso su 2 ns žingsniais (14 pav.).



14 pav. Oscilografo duomenys, atlikus dviejų skaitmeninių impulsų 10 mikrosekundžių tarpusavio vėlinimą. Pirmas impulsas (Sync 1) gali būti stumdomas laike antrojo atžvilgiu, o antras (Sync 2) turi pastovią poziciją laike.

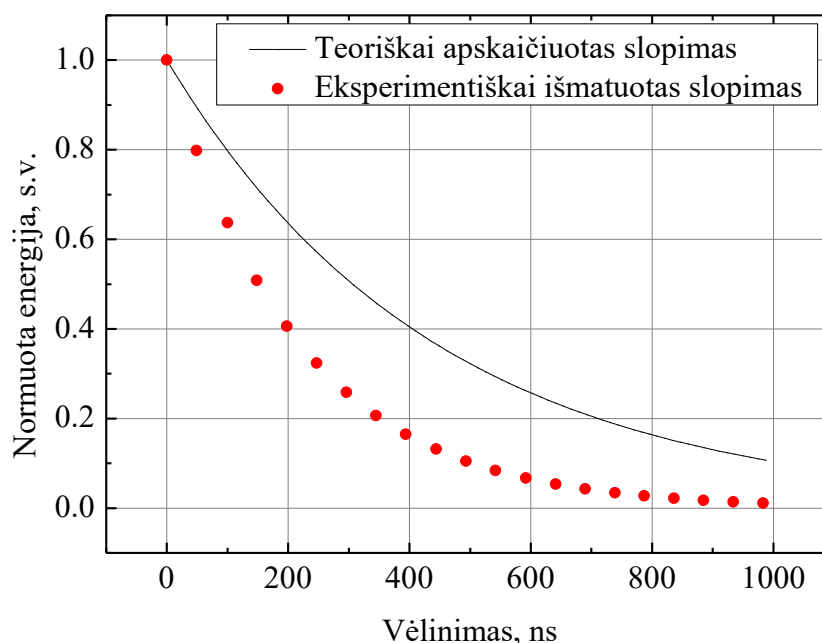
Kadangi eksperimento metu zondavimui buvo naudojamas „Šviesos konversijos“ gaminamas lazeris „Pharos“ be parametrinio stiprintuvo, žadinimo – zondavimo eksperimentas buvo atliktas su merocianiniais dažais il4cn ir il4etb, kurie pasižymi šimtų mikrosekundžių trukmės kinetika bei sugerties spektrais, kurie persikloja su „Pharos“ femtosekundinio lazerio generuojama antra harmonika (centrinis bangos ilgis 515 nm). Bandiniai buvo ištirpinti acetone (polinis tirpiklis su

dipoliniu momentu 2,91 D), 1 ml tūrio 1 mm optinio kelio kvarcinėje kiuvetėje neparenkant tikslios koncentracijos. Tirpalai buvo skiedžiami acetonu, siekiant eksperimentui tinkamo optinio tankio. „Harpia“ žadinimo – zondavimo sistema leidžia vėlininti zondavimo impulsą iki 8 nanosekundžių su retroreflektoriaus pagalba. Kadangi darbo tikslas buvo įvertinti sistemos galimybes atlikti žadinimo – zondavimo eksperimentą su mikrosekundžių eilės vėlinimo trukmėmis, bandinių kinetika, vėlinant zonduojantį impulsą su retroreflektoriumi, nebuvo išmatuota.

3. Teoriniai ir eksperimentiniai rezultatai

Daugelio praėjimų vėlinimo linijos rezultatai

Kiekvienas komponentas vėlinimo linijoje įneša optinius nuostolius – tai gali būti sklaida, sugertis, atspindys nuo skaidrių terpių paviršiaus arba veidrodžių pralaidumas. Kadangi stiprinimo rezonatoriuje nėra, kiekvieno apėjimo metu prarandama impulso energijos dalis. Gana paprasta apskaičiuoti teorinį impulso energijos slopimą, skaitant, kad nepasireiškia jokie apertūriniai arba Pokelso celės kontrastą keičiantys reiškiniai. Aukšto atspindžio veidrodžių gamintojo specifikacija yra >99.9% atspindys 1030 nm bangos ilgiui, čirpuotų veidrodžių – 99.8% atspindys 1030 nm. Pokelso celės pralaidumas – 99.27%, kontrastas 1:1300, poliarizatoriaus atspindys – 99.8%. Taigi bendra nuostolių suma teoriškai yra lygi 2.86%. Impulso teorinis slopimas ir eksperimentinis slopimas vėlinimo schemeje be ketvirčio bangos plokštelės pavaizduotas 15 pav. kairėje. Eksperimentiškai matuojant impulso slopimą su fotodiodu buvo pastebėti gana ryškūs poliarizacijos ir modos diametro ant fotodiodo nuostoliai, todėl buvo matuotas ir galios matuoklio signalas.

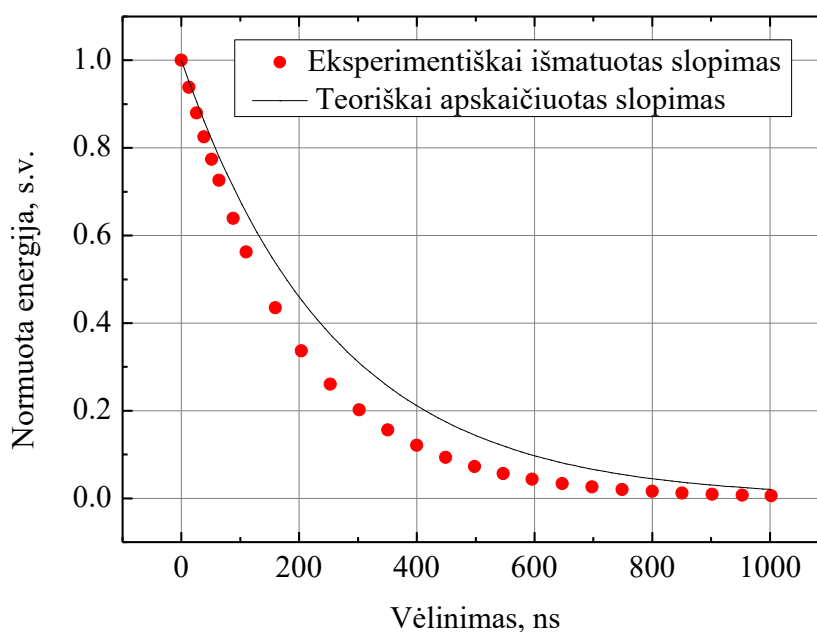


15 pav. Impulso energijos slopimas. Linija rodo teoriškai apskaičiuotą slopimą, kai bendri nuostoliai vienam apėjimui lygūs 2.86%. Taškai žymi eksperimentiškai išmatuotą impulso energijos slopimą.

Gauta vidutinės galios slopimo kreivė aproksimuota pagal eksponentinio slopimo funkciją ir nustčius minimalią amplitudę buvo apskaičiuoti poliarizacijos nuostoliai – jie pasireiškia energija, kuri praeina pro poliarizatorių kiekvieno apėjimo metu, kai impulsas turėtų būti uždarytas rezonatoriuje. Apskaičiuoti poliarizacijos nuostoliai matavimo metu lygūs 2.2% kiekvienam

apėjimui, likę optiniai nuostoliai sudaro – 3,35%. Atėmus poliarizacijos nuostolius iš galios matuokliu užfiksuotų duomenų gautas eksperimentiškai išmatuotas impulso energijos slopimas. Matavimai atlikti su 1.5 μJ ir 7.5 μJ energijos impulsais, siekiant įvertinti netiesinių reiškinių įtaką, tačiau abiem atvejais nuostoliai gauti tokie patys.

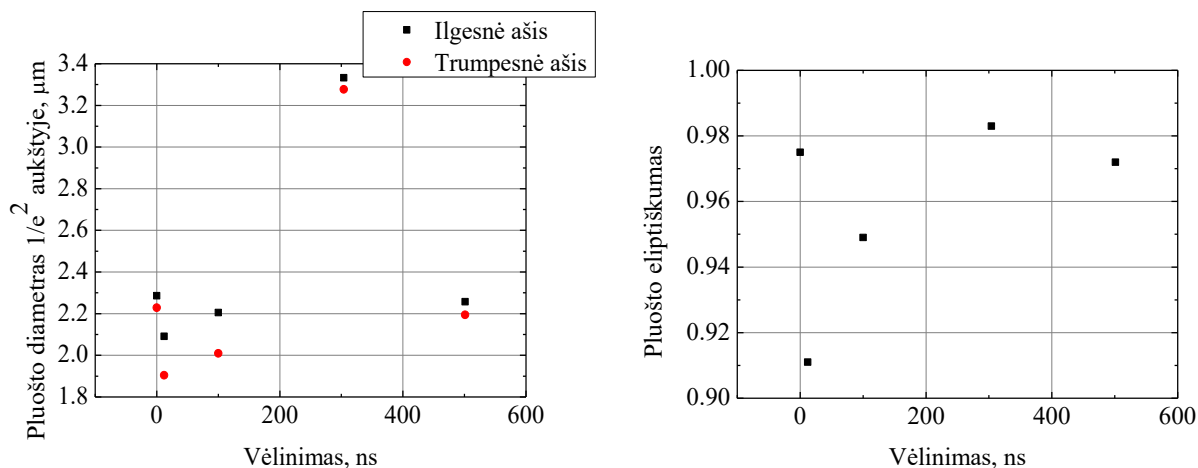
Matavimai taip pat buvo atlikti šiek tiek modifikavus rezonatorių – prieš Pokelso celę patalpinta ketvirčio bangos fazinė plokštelė tam, kad impulsas rezonatoriuje būtų laikomas tol, kol įtampa tarp Pokelso celės elektrodų laikoma įjungta. Ketvirčio bangos ilgio plokštelė į rezonatorių įneša papildomus nuostolius – specifikuojamas pralaidumas yra >99%, kontrastas – 1:1000. Tokiu pačiu būdu eksperimentiškai apskaičiuoti poliarizacijos nuostoliai lygūs 0.74%, tačiau kiti nuostoliai sudaro 5.54% vienam rezonatoriaus apėjimui. Gautas eksperimentinis ir teorinis impulso energijos slopimas pavaizduotas 16 pav.:



16 pav. Impulso energijos slopimas rezonatoriuje su $\lambda/4$ fazine plokštele. Linija rodo teoriškai apskaičiuotą slopimą, kai bendri nuostoliai vienam apėjimui lygūs 4.86%. Taškai žymi eksperimentiškai išmatuotą impulso energijos slopimą.

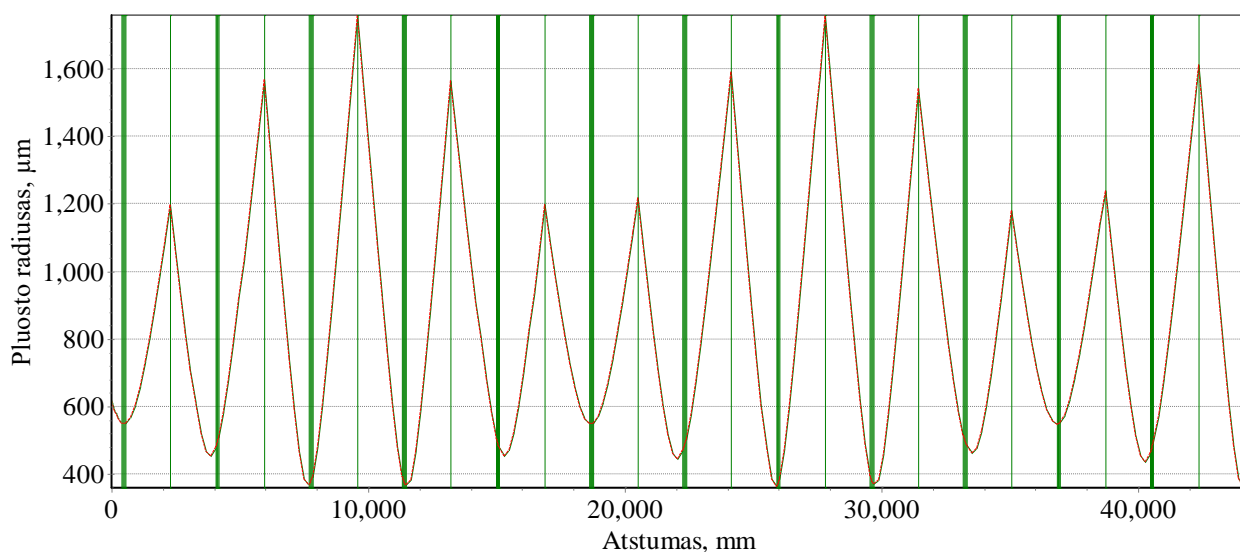
Nenaudojant $\lambda/4$ plokštelės, t.y. impulsą laikant rezonatoriuje, kol Pokelsas išjungtas, pasireiškia dideli poliarizacijos kontrasto nuostoliai. Su $\lambda/4$ plokštele rezonatoriuje kontrasto nuostoliai gerokai mažesni, tačiau dėl pačios fazinės plokštelės gerokai išauga kiti nuostoliai.

Eksperimento metu buvo išmatuotas pluošto profilis ties skirtingais impulso vėlinimais. Matavimo tikslas buvo įvertinti modos diametro stabilumą (17 pav. kairėje). Gauti rezultatai patvirtino spėjimą, kad į rezonatorių nėra tiksliai įvedamas pluoštas su rezonatoriaus palaikomais parametrais. Taip pat įvertintas pluošto eliptiškumas (17 pav. dešinėje).



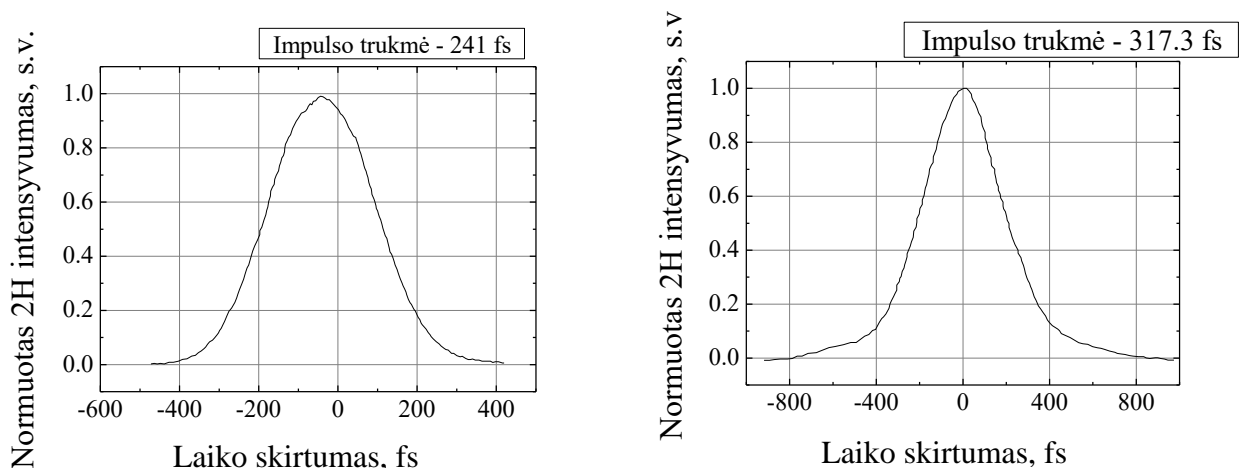
17 pav. Pluošto diametras $1/e^2$ aukštyje (kairėje) ir pluošto eliptiškumas (dešinėje) ties skirtingomis vėlinimo trukmėmis (rezonatoriaus periodas 12.83 ns).

Rezonatoriuje pluoštas išlaiko mažą eliptiškumą, tačiau pluošto diametras kinta su kiekvienu rezonatoriaus apėjimu. Taip pat buvo atliktas modeliavimas, skirtas įvertinti teleskopu įvedamo impulso radiuso kitimą rezonatoriuje, kai įvedamo pluošto parametrai nukrypsta nuo rezonatoriaus palaikomo pluošto (18 pav.). Iš modeliavimo rezultatų matosi, kad eksperimento metu nebuvo idealiai suderintas pluošto įvedimo teleskopas, dėl to nukentėjo pluošto diametro stabilumas.

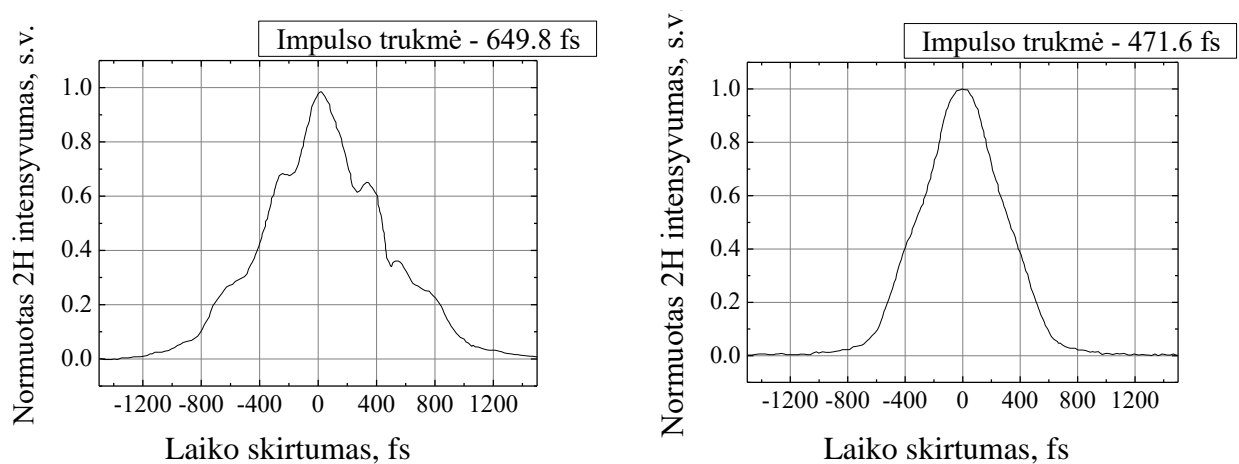


18 pav. Pluošto radiusas $1/e^2$ aukštyje, kai įvedamas pluoštas su rezonatoriaus palaikomo pluošto sąsmaukos pozicija (plati vertikali žalia linija), tačiau radiusas sąsmaukoje 0.1 mm didesnis už rezonatoriaus palaikomą. Plona vertikali žalia linija simbolizuoja galinį sferinį veidrodį. Grafike pavaizduoti 12 rezonatoriaus praėjimų, kurie atitinka 154 ns impulso vėlinimą.

Taip pat eksperimento metu buvo išmatuota impulso autokoreliacinė funkcija be vėlinimo ir su 501 ns impulso užlaikymu. Autokoreliatorius impulsą dalina į dvi dalis, iš kurių viena nukeliauja keičiamą atstumą. Nekolineria sąveika su šiais impulsais generuojama antroji harmonika, ir matuojama jos intensyvumo priklausomybė nuo impulsų tarpusavio pozicijos laike. Taip gaunamas autokoreliacinis signalas, kurio tam tikra pločio dalis yra matuojamo impulso trukmė. Žinoma, kad pradinė impulso trukmė lygi 220 fs. Impulsui pirmyn atgal suvaikščiojus per Faradėjaus izoliatorių ir pokelso celę gauta autokoreliacinė funkcija pavaizduota 19 pav. kairėje, dešinėje – su 501 ns vėlinimu. 19 ir 20 pav. matavimai atlikti, rezonatoriui veikiant be $\lambda/4$ fazinės plokštelės.



19 pav. Kairėje - pro rezonatorių nesuvaikščiojusio impulso autokoreliacinė funkcija, dešinėje – 501 ns rezonatoriuje užlaikyto impulso autokoreliacinė funkcija. Lazero impulso energija – 1.2 μ J.

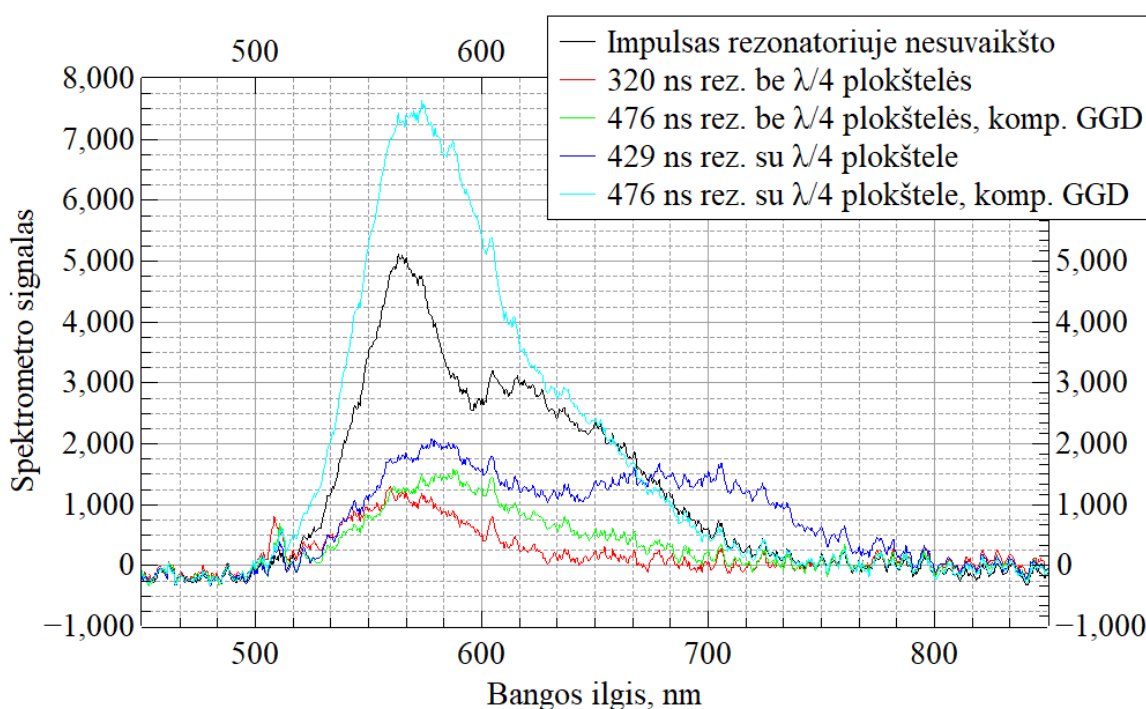


20 pav. Kairėje 501 ns rezonatoriuje užlaikyto impulso autokoreliacinė funkcija, kai lazerio impulso energija – 3,75 μ J. Dešinėje – tos pačios energijos ir užlaikymo impulso autokoreliacinė funkcija, dispersiją kompensavus su lazerio kompresoriumi.

Iš 19 pav. skirtumo galima spręsti, kad grupinių greičių dispersija nėra visiškai kompensuota. Impulsą užlaikius 501 ns, rezonatoriuje naudojant $\lambda/4$ plokštelę, impulso trukmė lygi 317.3 fs. Tai

reiškia, kad čirpuoti veidrodžiai įneša daugiau neigiamos grupinių greičių dispersijos, nei jos atsiranda dėl BBO kristalų. 20 pav. matosi fazinės savimoduliacijos įtaka autokoreliacinės funkcijos formai. Naudojant lazerio kompresorių, impulsą pavyksta suspausti iki 471.6 fs.

Užlaikyto impulso paskirtis šiame darbe yra generuoti kontinuumą žadinimo – zondavimo matavimui. Kontinuomo generacijai buvo pasirinktas -75 mm židinio nuotolio lęšis ir 3 mm storio YAG kristalas. Palygintas maksimalus vėlinimo laikas, su kuriuo dar galima generuoti šviesos kontinuumą su ta pačia lazerio impulso energija, naudojant rezonatorių su $\lambda/4$ plokštele ir be jos, taip pat kai grupinių greičių dispersija kompensuojama su kompresoriumi (21 pav.). Nustatant kontinuomo generacijos ribą buvo naudojama 7.5 μJ lazerio impulso energija.



21 pav. Juoda spalva pažymėtas kontinuomo spektras, gautas impulsui nesuvaikščiojus per rezonatorių. Lazerio impulso energija – 1.2 μJ . Raudona spalva pavaizduota kontinuomo generacijos riba rezonatoriuje be $\lambda/4$ plokštelės. Žalia spalva pavaizduota riba rezonatoriuje be $\lambda/4$ plokštelės, su lazerio plėstuvu kompensavus grupinių greičių dispersiją. Mėlyna spalva pavaizduota kontinuomo generacijos riba rezonatoriuje su $\lambda/4$ plokštele (įjungta Pokelso celės įtampa), o žydra spalva – riba rezonatoriuje su $\lambda/4$ plokštele, lazerio plėstuvu kompensavus grupinių greičių dispersiją. Vėlinant impulsą lazerio impulso energija – 7.5 μJ .

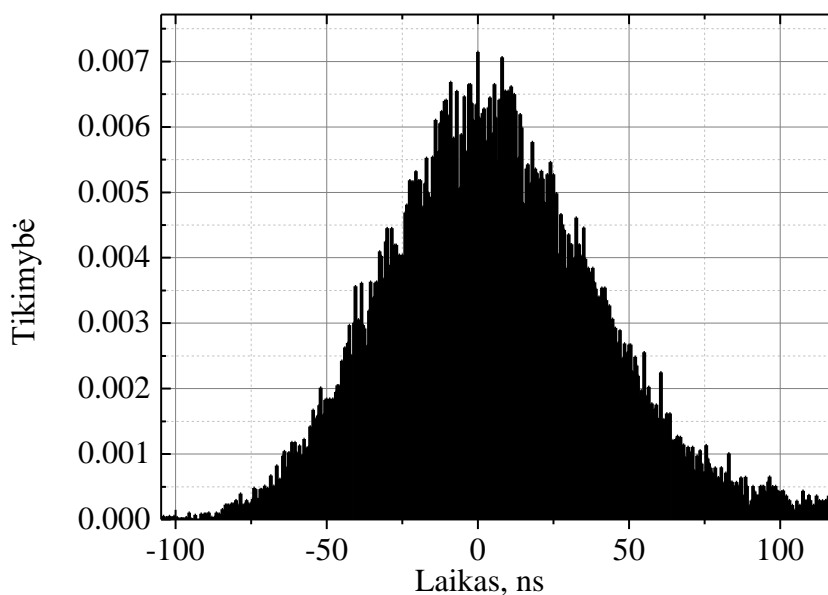
Žadinimo – zondavimo eksperimento metu matuojamas sugerties skirtumas tarp spektro, praėjusio pro nesužadintą ir sužadintą bandinį, todėl nedidelės spektro formos variacijos neturi būti kliūtis eksperimento tikslumui, tačiau svarbus yra kontinuomo spektro pločio pastovumas. Rezonatoriuje be $\lambda/4$ fazinės plokštelės kontinuomo generacijos riba yra 320 ns ir ties ja spektras

gerokai siauresnis už pradinį. Mažesnio vėlinimo (102 ns) atveju rezonatoriuje be fazinės plokštelės spektras išlaiko pradinį plotį. Kompensavus dispersiją abiem atvejais kontinuumo spektrą pavyko generuoti su 476 ns vėlinimu, tačiau rezonatoriuje su $\lambda/4$ plokštele pasiektas gerokai intensyvesnis spektras. Iš impulso energijos slopimo matavimų žinome, kad schemoje be $\lambda/4$ plokštelės impulso energija patiria mažesnę slopimą. Tai patvirtina išvadą, kad naudojant $\lambda/4$ plokštelę pasiekama mažesnė impulso trukmė. Rezonatoriuje esančio pluošto skėsties nepastovumas taip pat daro nemažą įtaką kontinuumo spektrui, kadangi dėl to keičiasi ant YAG kristalo fokusuojamo pluošto sąsmaukos diametras.

Norint padidinti maksimalią impulso vėlinimo trukmę, pirmiausia reikia sumažinti impulso fazinę savimoduliaciją Pokelso celėje. Tai galima padaryti tiksliau įvedant pluoštą į rezonatorių bei didinant rezonatoriaus palaikomo pluošto diametrą ties Pokelso cele. Taip pat didelę įtaką maksimaliam vėlinimui turi Pokelso celės pralaidumas ir teisingas grupinių greičių dispersijos kompensavimas rezonatoriuje. Siekiant didesnės vėlinimo trukmės realus variantas yra prailginti rezonatorių, tačiau tuo pačiu didės ir minimalus vėlinimo žingsnis.

Zonduojančio impulso vėlinimo su dviejų lazerių sinchronizacija rezultatai

Išoriškai sinchronizuojant „Pharos“ lazerį, jo impulso neapibrėžtumas laike bus lygus vienam lazerio osciliatoriaus periodui, t.y. apie 13 ns. Oscilografu buvo išmatuotas „SuperK Compact“ impulsų voros tirtėjimas laike, paduodamu sinchronizacijos signalo atžvilgiu.



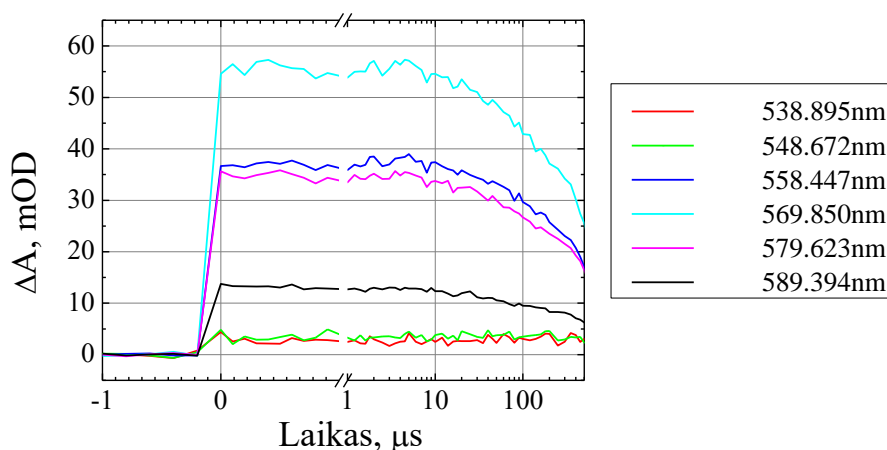
22 pav. „SuperK Compact“ lazerio impulsų pasiskirstymo laike histograma sinchronizacijos signalo atžvilgiu. Laikai, matuojant oscilografu, sugrupuoti į 0.5 ns intervalus.

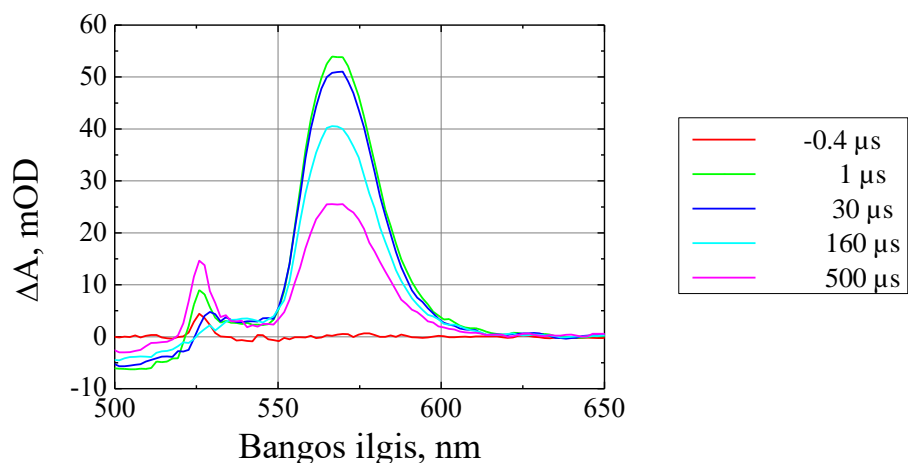
Histograma pavaizduota 22 pav. Impulsai pasiskirsto 200 ns lange sinchronizacijos signalo periodo atžvilgiu. Šis dydis, kartu su „Pharos“ generuojamų impulsų tirtėjimu, sudaro eksperimento laikinę skyrą.

Taip pat oscilografu išmatuotas vidutinis kvadratinis nuokrypis, lygus 37 ns. Kai yra matuojamas žadinimo – zondavimo signalas šimtų mikrosekundžių vėlinimui, tokia paklaida nėra kritiška, turint omeny tai, kad kiekvieno matavimo metu galima pasirinkti skirtingos sugerties spektrų skaičių vidurkio išvedimui. Kita vertus, matuojant kinetiką su vėlinimu, mažesniu nei 100 ns, į spektrų išvedamo vidurkio rinkinį gali pakliūti kitokios formos ar net ir nesužadinto bandinio skirtingos sugerties spektras, kuris gali pastebimai iškreipti galutinį rezultatą.

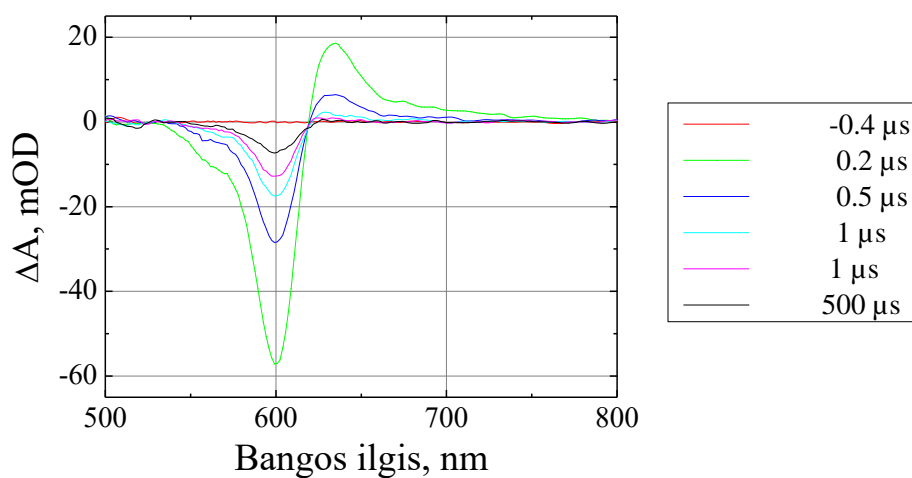
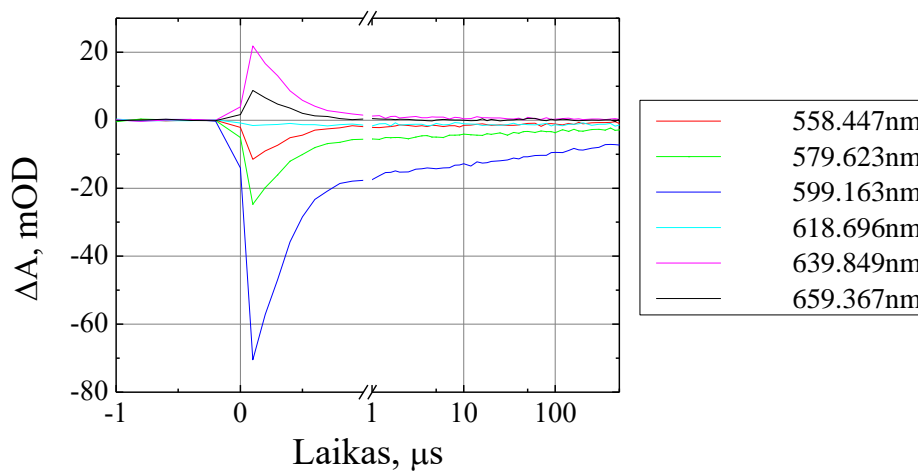
Šiame darbe buvo atliktas žadinimo – zondavimo eksperimentas, vėlinant zondavimo impulsą žadinančiojo atžvilgiu, pasitelkus papildomą lazerį – „NKT Photonics“ gaminamą „SuperK Compact“ fotoninių kristalų šviesolaidžio superkontinuumo lazerį, generuojantį 1.85 ns trukmės impulsus, apimančius 450-2400 nm spektrą. Pasirinktas spektrometro detektorius su 200 – 1100 nm darbine zona.

Eksperimento metu buvo matuojamas foninis spektras, t.y. į spektrometrą patenkanti šviesa, kai į sistemą patenka žadinantis impulsas, tačiau nepatenka zonduojantis. Foniniame spektre dėl sklaidos ant kiuvetės ar kitų sistemos komponentų galima užfiksuoti žadinančią spinduliuotę, nors jos optinis kelias blokuojamas apertūros. Tuomet pasirinkus 2500 spektrų matavimą (pluošto modulatoriaus pagalba išvedant vidurkį iš 1250 sužadinto ir 1250 nesužadinto bandinio spektrų), gaunamas skirtingos sugerties spektras ties tam tikru vėlinimu. Sinchronizacijos signalo dažnis yra 1 kHz, o laikas, per kurį spektrometras nuskaity visus pikselius yra 500 μ s, todėl šiuo atveju maksimali vėlinimo trukmė yra 500 μ s. Buvo matuojamas skirtingos sugerties spektras nuo mikrosekundės prieš sužadimą iki 500 mikrosekundžių po sužadimo, palaipsniui didinant vėlinimo žingsnį (23 ir 24 pav.).





23 pav. Pirmas grafikas – il4cn dažų kinetinės kreivės ties skirtingais bangos ilgiais, nuo 1 μ s, atvaizduotos logaritmine skale. Antras grafikas – il4cn dažų skirtuminės sugerties spektrai ties skirtingomis vėlinimo trukmėmis.



24 pav. Pirmas grafikas – il4etb dažų kinetinės kreivės ties skirtingais bangos ilgiais, nuo 1 μ s, atvaizduotos logaritmine skale. Antrasis – il4etb dažų skirtuminės sugerties spektrai ties skirtingomis vėlinimo trukmėmis.

II4cn bandinyje matomas indukuotos sugerties ties 570 nm skirtuminio spektro eksponentinis gesimas – izomero relaksacija. II4etb bandinyje susidaręs izomero spektras pasižymi per 1 μs užgęstančia indukuotos sugerties dedamąja ties 640 nm bei pagrindinės būsenos išblyškimu ties 600 nm. Eksperimento laikinio lango neužtenka, norint išmatuoti abiejų bandinių visišką skirtuminio spektro užgesimą. Kiekvienam rezultate pavaizduotam skirtuminiam spektrui buvo išvedamas vidurkis iš 3000 spektrų. Triukšmas kinetinėse kreivėse susidaro dėl lėtai kintančio aplinkos poveikio sistemai.

Ši dviejų lazerių sinchronizacijos sistema veikia ir mažinant pasikartojimo dažnį suteikia galimybę pasiekti gerokai didesnę zondavimo impulso vėlinimą, lyginant su retroreflektoriaus vėlinimo linija arba šiame darbe aprašyta daugelio apėjimų vėlinimo linija. Taip pat išlieka galimybė žadinantį impulsą praleisti per parametrinį stiprintuvą ir gauti norimą žadinimo bangos ilgį. Greta šių privalumų yra trūkumas – superkontinuumo lazeris „SuperK Compact“ dėl savo veikimo principo sinchronizuojant lazerį išoriškai pasižymi tirtėjimu 200 ns lange sinchronizacijos signalo atžvilgiu. Šią problemą galima ignoruoti, kaip buvo nuspręsta šio eksperimento metu, arba papildyti sistemą dviem greitais fotodiodais, iš kurių vienas fiksuoja žadinantį impulsą, o kitas fiksuoja zonduojantį impulsą. Tuomet galima spektrus grupuoti pasirinktais intervalais pagal vėlinimo trukmę arba atmesti tuos spektrus, kurie nepatenka į vieną pasirinktą intervalą.

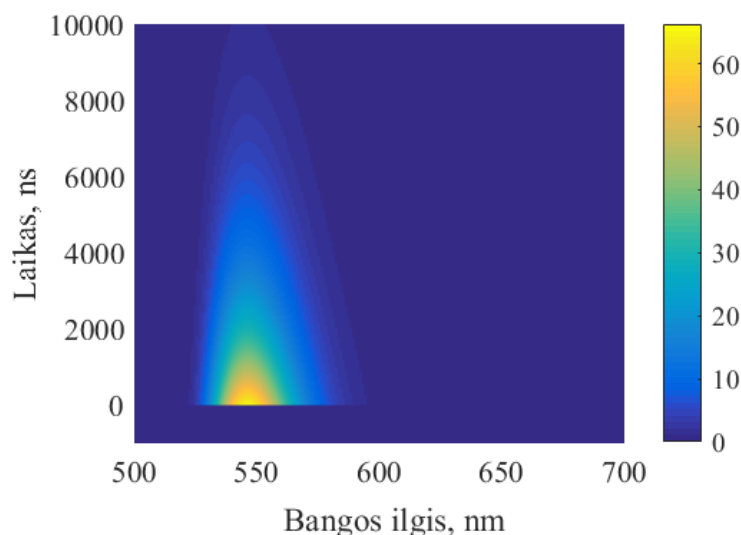
Greta realių eksperimentų su sistema buvo atliktas modeliavimas „Matlab“ programavimo aplinkoje, siekiant palyginti teorinius skirtuminius spektrus su gaunamais išvedant vidurkį iš spektrų nepaisant laikinio tirtėjimo.

Šiam tikslui buvo sugeneruota laike eksponentiškai gęstanti kreivė pagal logaritminio – Gausinio pasiskirstymo funkciją. Šios funkcijos kintamojo logaritmas sudaro Gausinį skirstinį ir turi tik teigiamas vertes:

$$P(x) = \frac{1}{x\sigma\sqrt{2\pi}} e^{\frac{(-\ln x - \mu)^2}{2\sigma^2}} \quad (24)$$

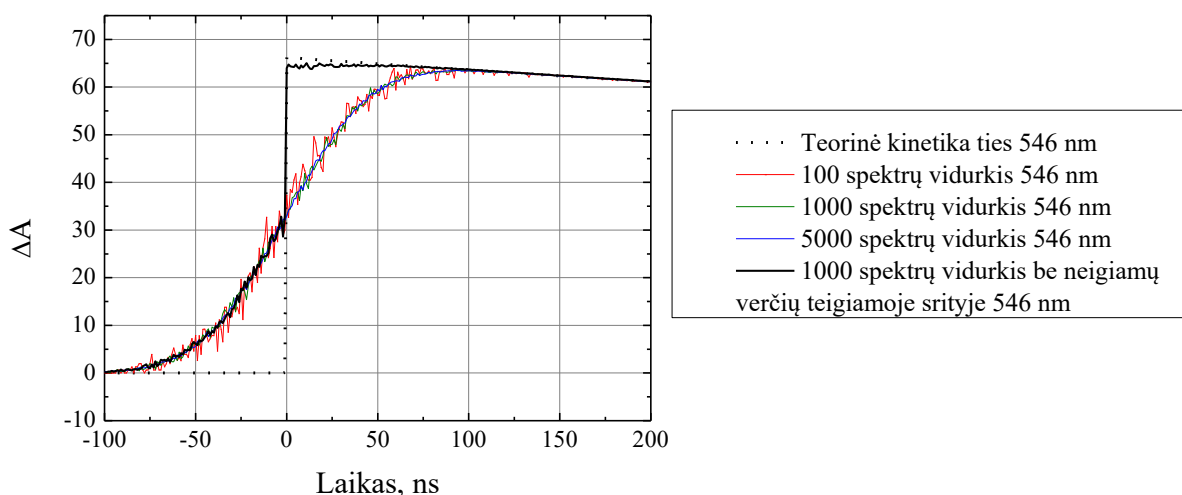
Čia μ ir σ yra atitinkamai vidurkis ir vidutinis kvadratinis nuokrypis, tačiau šiais parametrais buvo manipuluojama, siekiant sugeneruoti kreivę, kuri būtų panaši į indukuotos sugerties spektrą. Spektras susideda iš 200 taškų, iš kurių kiekvienas simbolizuoja vieną nanometrą regione nuo 500 iki 700 nm.

Sugeneruotas sugerties spektras laike suskirstytas į 11000 taškų, iš kurių kiekvienas simbolizuoja vieną nanosekundę. Laikoma, kad laikas, per kurį sužadinamas tariamas bandinys, yra mažesnis nei 1 ns, todėl laiko momentu 0 skirtuminis spektras ties visais bangos ilgiais lygus nuliui, o po 1 ns turi didžiausias vertes (25 pav.).

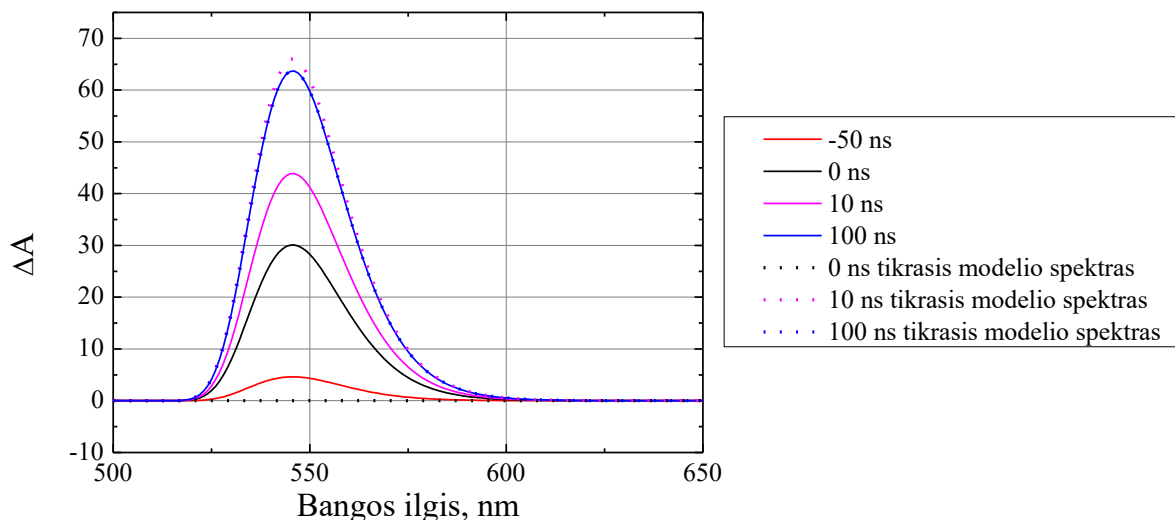


25 pav. „Matlab” programavimo aplinkoje sugeneruota pavyzdinė eksponentiškai gėstančio skirtuminio spektro kinetika, spalva simbolizuoja skirtuminio spektro optinį tankį.

Pasirinkus norimą laiko momentą, su 37 ns vidutiniu kvadratinu nuokrypiu yra generuojami atsitiktiniai skaičiai su Gausiniu pasiskirstymu, tai atspindi aprašytos realios sistemos tirtėjimą laike pagal 22 pav. Atsitiktinių skaičių kiekis modeliavimo atveju reiškia kaupiamų spektrų kiekį vidurkio išvedimui. 26 pav. pavaizduotas modeliuojamo spektro kinetikos palyginimas su išvestu vidurkiu iš 100, 1000 ir 5000 spektrų ties 546 nm bangos ilgiu modelyje, taip pat diskriminuojant nesužadinto bandinio rezultatų dalį iš 1000 spektrų, kai užduodamas laikas yra po bandinio sužadavimo.



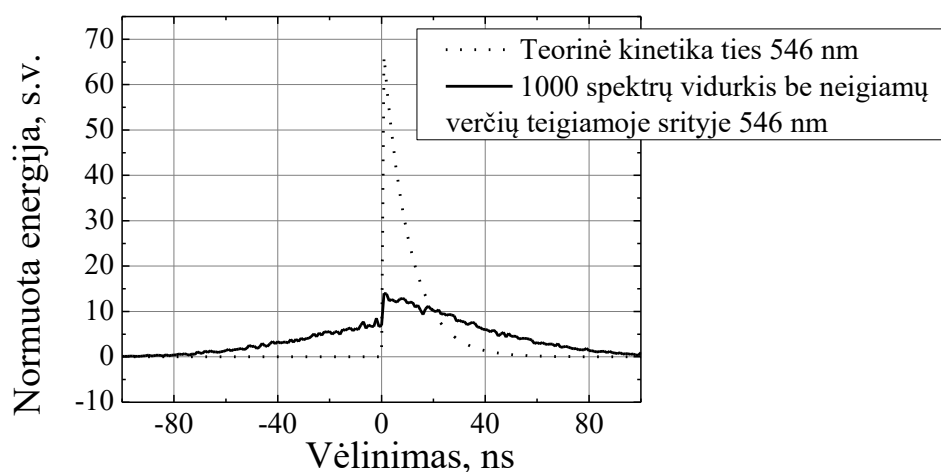
26 pav. Modelio skirtuminio spektro kinetika ties 546 nm. Grafike lyginamas teoriškai gaunamas gesimas su rezultatais, išvedant vidurkį iš skirtingo kiekio laike fliktuojančių skirtinguminių spektrų. Iš modeliavimo rezultatų iškirpta sritis nuo -100 iki 200 ns.



27 pav. Modelio skirtuminiai spektrai prie skirtingų zondavimo vėlinimo verčių, vedant vidurkį iš 1000 spektrų. Ties 100 ns išvestas skirtuminių spektrų vidurkis persikloja su tikroju modelio spektru.

Pažiūrėjus į 26 pav. galima teigti, kad didžiausia matavimo paklaida yra laikui tarp žadinimo ir zondavimo artėjant į nulį, o nuo 100 ns rezultatai priartėja prie tikrųjų verčių. Taip yra dėl to, kad nuo 100 ns į spektrų imtį vidurkio išvedimui verčių iki sužadavimo kiekis artėja į nulį, taigi vidurkis artėja prie tikrosios vertės.

Taip pat iš 26 pav. matome, kad naudojant fotodiodus žadinančio ir zonduojančio impulsų registravimui galima ženkliai pagerinti eksperimento tikslumą, jeigu iš vidurkio spektrų imties pašalinami tie spektrai, kurie užregistruoti dar nesužadintus bandinio. Tuo pačiu atmestus spektrus galima perkelti į nesužadintų spektrų vidurkį.



28 pav. 50 ns trukmės kinetikos modeliavimas, iš vidurkio imties pašalinant nesužadinto bandinio spektrus.

Be abejo, šis metodas neišsprendžia visų problemų. Jeigu bandinio kinetika gesta greitai, pavyzdžiui per 50 ns, šiuo metodu išmatuoti teisingą kinetiką vis nepavyks (28 pav.).

Su impulsų tirtėjimu 200 ns lange sistema yra tinkama matuoti eksponentiškai slopstančią kinetiką, kai yra nėra svarbi informacija apie bandinio kinetiką pirmąsias 100 nanosekundžių. Norint tikslios informacijos apie kinetiką iki 100 nanosekundžių sistemą galima patobulinti su dviem fotodiodais, registruojančiais tikslų laiką tarp žadinančio ir zonduojančio impulso. Jeigu yra saugomi tik tie spektrai, kurie atitinka norimą zonduojančio impulso vėlinimą, matavimas gali trukti gerokai ilgiau, nei trunka visų spektrų registravimas, ypač jei yra vedamas vidurkis iš didelio spektrų kiekio. Palyginimui, registruojant spektrus 1 ns tikslumu, tikimybė išmatuoti tinkamą spektrą su turima sistema yra apie 1.3 %. Tai reiškia, kad vidurkio išvedimui tiks vienas iš 77 spektrų, atitinkamai bandinio kinetikos matavimas užtruks 77 kartus ilgiau. Kita vertus, laiko sutaupyti galima, visus registruojamus spektrus kaupiant į masyvą kiekvienam laiko intervalui. Tokiu atveju, nuosekliai slenkant impulso vėlinimą galima surinkti pakankamą kiekį spektrų kiekvienam pasirinktam laiko intervalui.

Nepaisant impulsų drebjimo laike, šį metodą praktikoje lengviau įgyvendinti, nei optinio vėlinimo rezonatorių – iš karto turime gerą kontinuumo lazerio impulso energijos stabilumą ir pastovią impulso trukmę, be to, rezonatorius su Pokelso cele ir jos valdymo elektronika kartu su laiku, reikalingu jį suderinti, gali būti ekonomiškai mažiau parankus už pagamintą kontinuumo lazerį.

4. Rezultatų apibendrinimas

Šio darbo metu buvo sumodeliuotas ir įgyvendintas impulsų vėlinimo rezonatorius, galintis užlaikyti impulsą 12.85 ns intervalais su įjungtu arba išjungtu elektriniu lauku Pokelso celėje. Buvo išmatuotas impulso energijos slopimas ir nustatyta, kad eksperimento metu bendri nuostoliai vienam rezonatoriaus apėjimui didesni, kai rezonatoriuje impulsas vaikšto su įjungtu elektriniu lauku Pokelso celėje, tačiau su išjungtu elektriniu lauku didesnę nuostolių dalį sudaro poliarizacijos nuostoliai.

Matuojant pluošto profilį ties skirtingomis vėlinimo trukmėmis pastebėtas pluošto diametro nepastovumas. Tai reiškia, kad į rezonatorių įvedamo pluošto parametrai nesutampa su rezonatoriaus palaikomu pluoštu.

Su surinktu rezonatoriumi buvo išmatuota užlaikyto impulso trukmė. Pastebėta, kad bendra grupinių greičių dispersija rezonatoriuje neigiama, o naudojant 3.75 μJ energijos impulsus ir esant 501 ns vėlinimui jau pasireiškia fazinė savimoduliacija. Lazerio kompresoriumi kompensavus grupinių greičių dispersiją, gautas kontinuumas su 476 ns impulso vėlinimu, kai lazerio impulso energija lygi 7.5 μJ .

Darbo metu atliktas žadinimo – zondavimo eksperimentas, naudojant antrą lazerį zonduojančiam impulsui. Įgyvendinta dviejų lazerių sinchronizacija ir atliktas zonduojančio impulso vėlinimas iki 500 μs . Su šia sistema matuota merocianininių dažų il4cn ir il4etb kinetika.

Išmatuotas lazerio „SuperK Compact“ impulsų pasiskirstymas laike sinchronizuojančio impulso atžvilgiu – gautas Gausinis pasiskirstymas su 37 ns vidutiniu kvadratinu nuokrypiu. Su gautais duomenimis atliktas modeliavimas, siekiant įvertinti zonduojančio impulso tirtėjimo svarbą, kai matavimo metu yra vedamas vidurkis iš daugelio skirtuminių spektrų.

5. Išvados

Žadinimo – zondavimo eksperimentui zondavimo impulsus vėlinant rezonatoriuje su tikslu pasiekti 500 ns vėlinimą susiduriama su keliomis problemomis – prarandama didžioji dalis impulso energijos dėl optinių ir poliarizacinių nuostolių, pastebima fazinė savimoduliacija ir pluošto erdvinių parametų nestabilumas.

Impulsų vėlinimas, zondavimui naudojant kontinuomo lazerį „SuperK Compact“ yra ekonomiškesnis ir paprastesnis būdas pasiekti milisekundės vėlinimo trukmes, jeigu sistema yra patobulinama su aprašytu modeliu, su fotodetektorių pagalba registruojant laiką tarp žadinimo ir zondavimo impulsų.

Literatūros sąrašas

- [1] Chance, Britton. *The accelerated flow method for rapid reactions*. Journal of the Franklin Institute **229.6**, p. 737-766 (1940). DOI: 10.1016/S0016-0032(40)90963-2
- [2] H. W. Mocker, R. J. Collins, *Mode Competition and Self-Locking Effects in a Q-Switched Ruby Laser*, Appl. Phys. Lett. **7**, p. 270-272 (1965). DOI: 10.1063/1.1754253
- [3] J. Šponer, P. Banáš, P. Jurečka, M. Zgarbová, P. Kührová, M. Havrila, M. Krepl, P. Stadlbauer, and M. Otyepka *Molecular Dynamics Simulations of Nucleic Acids. From Tetranucleotides to the Ribosome* Journal of Phys. Chem. Lett. **5** (10), 1771-1782 (2014). DOI: 10.1021/jz500557y
- [4] Marcel Gielen, Rudolph Willem, Bernd Wrackmeyer, *Fluxional Organometallic and Coordination Compounds*, John Wiley & Sons, (2005). DOI: 10.1002/0470858451
- [5] Prof. Dr. Mikas Vengris, *Introduction to time-resolved spectroscopy*. Internetinė nuoroda web.vu.lt/ff/m.vengris/images/TR_spectroscopy02.pdf (tikrinta 2018-06-20)
- [6] Y. N. Kulchin, Y. L. Gamayunov, G. L. Beryezkina, S. G. Churin, B. Okhota, *Optical delay line*, Proc. SPIE Vol. 5851, p. 339-343 (2005). DOI: 10.1117/12.634527
- [7] Donald R. Herriott and Harry J. Schulte, "Folded Optical Delay Lines," Appl. Opt. **4**, p. 883-889 (1965). DOI: 10.1364/AO.4.000883
- [8] Svelto, O., & Hanna, D. C. *Principles of lasers* **5** vol. New York: Plenum press. (2010). DOI: 10.1007/978-1-4419-1302-9
- [9] Internetinė prieiga https://en.wikipedia.org/wiki/Optical_cavity#/media/File:Laser_resonator_stability.svg (tikrinta 2018-01-22)
- [10] "Electro-optic behavior", Inrad Optics white paper Internetinė prieiga http://inradoptics.com/pdfs/Inrad_WP_ElectroOptic.pdf (tikrinta 2018-06-20)
- [11] J. Valasek, *Properties of Rochelle Salt Related to the Piezo-Electric Effect*, Phys. Review, Vol **21**, No. 478, (1922). DOI:10.1103/PhysRev.20.639
- [12] E.S. Fulkerson, D.C. Norman, R. Booth, *Driving Pockels cells using avalanche transistor pulsers*, 11th IEEE International, (1997). DOI: 10.1109/PPC.1997.674588
- [13] Manuel J. Llansola-Portoles, K. Redeckas, S. Streckaitė, C. Ilioaia, A. A. Pascal, A. Telfer, M. Vengris, L. Valkunas, B. Robert, *Lycopene Crystalloids exhibit singlet exciton fission in tomatoes*, Phys. Chem. Chem. Phys., 8640-8646, **20** (2018). DOI: 10.1039/C7CP08460A
- [14] A. V. Kulinich, Aleksandr A. Ishchenko, Merocyanine dyes: synthesis, structure, properties and applications, Russian Chemical Reviews, **78** (2), 141 (2009), DOI:10.1070/RC2009v078n02ABEH003900

[15] D. Dementavičius, *Polimetininių Dažiklių Su Dimetil-7,8,9,10-Tetrahidro-6h[1,2-A] Indoliumo Ir Malonitrilo Bei 1,3-Dietil-Tiobarbituratinės Rūgšties Grupėmis Fotoizomerizacijos Dinamikos Tyrimas* <https://epublications.vu.lt/object/elaba:23238826> (tikrinta 2018-06-20)

[16] Internetinė prieiga <http://eksmaoptics.com/pockels-cells-and-drivers/pulse-picker-kit/ultrafast-pulse-picker-up1/> (tikrinta 2018-06-20)

Santrauka

Šviesos impulsų vėlinimas žadinimo – zondavimo spektroskopijai nanosekundžių-mikrosekundžių laiku srityje

Paulius Razma

Šiame darbe tiriami du nauji būdai priartėti prie mikrosekundžių eilės impulso vėlinimo žadinimo – zondavimo eksperimentui – zonduojančio impulso vėlinimas rezonatoriuje bei femtosekundinio žadinančio lazerio sinchronizavimas su zonduojančiu fotoninių kristalų šviesolaidžio lazeriu, generuojančiu nanosekundinius superkontinuumo impulsus. Šio darbo tikslas – palyginti minėtus du metodus vėlinti zonduojantį impulsą žadinimo – zondavimo eksperimentui. Darbo užduotys - sumodeliuoti ir surinkti rezonatorių, skirtą gauti optinį impulso vėlinimą. Surinktame rezonatoriui išmatuoti impulso slopimą bei impulso parametrų priklausomybę nuo vėlinimo. Su užlaikytu impulsu sugeneruoti kontinuumo spektrą ir įvertinti sistemos galimybes žadinimo – zondavimo eksperimentui atlikti. Taip pat darbo metu sinchronizuoti žadinantį femtosekundinį lazerį su zonduojančiu nanosekundiniu lazeriu ir įvertinti tokios sistemos tikslumą ir galimybes žadinimo – zondavimo eksperimentui atlikti su vėlinimo trukmėmis, artėjančiomis prie milisekundės eilės.

Su darbo metu surinktu rezonatoriumi buvo įgyvendintas optinis impulsų vėlinimas 12.85 ns intervalais. Rezonatoriuje impulsas buvo užlaikomas su išjungtu elektriniu lauku Pokelso celėje, arba įjungtu lauku kartu su $\lambda/4$ fazine plokštele. Buvo išmatuotas impulso energijos slopimas ir nustatyta, kad eksperimento metu bendri nuostoliai vienam rezonatoriaus apėjimui didesni, kai rezonatoriuje impulsas vaikšto su įjungtu elektriniu lauku Pokelso celėje, tačiau su išjungtu elektriniu lauku didesnę nuostolių dalį sudaro poliarizacijos nuostoliai. Matuojant pluošto profilį ties skirtingomis vėlinimo trukmėmis pastebėtas pluošto diametro nepastovumas. Tai reiškia, kad į rezonatorių įvedamo pluošto parametrai nesutampa su rezonatoriaus palaikomu pluoštu. Su surinktu rezonatoriumi buvo išmatuota užlaikyto impulso trukmė. Pastebėta, kad bendra grupinių greičių dispersija rezonatoriuje neigiama, o naudojant 3.75 μJ energijos impulsus ir esant 501 ns vėlinimui jau pasireiškia fazinė savimoduliacija. Lazerio kompresoriumi kompensavus grupinių greičių dispersiją, gautas kontinuumas su 476 ns impulso vėlinimu, kai lazerio impulso energija lygi 7.5 μJ .

Taip pat darbo metu atliktas žadinimo – zondavimo eksperimentas, naudojant antrą lazerį zonduojančiam impulsui. Įgyvendinta dviejų lazerių sinchronizacija ir atliktas zonduojančio impulso vėlinimas iki 500 μs . Su šia sistema matuota merocianininių dažų *il4cn* ir *il4etb* kinetika. Taip pat išmatuotas lazerio „SuperK Compact“ impulsų pasiskirstymas laike sinchronizuojančio impulso atžvilgiu – gautas Gausinis pasiskirstymas su 37 ns vidutiniu kvadratinu nuokrypiu. Su gautais

duomenimis atliktas modeliavimas, siekiant įvertinti zondojančio impulso tirtėjimo svarbą, kai matavimo metu yra vedamas vidurkis iš daugelio skirtuminių spektrų.

Summary

Delay of Optical Pulses for Pump – Probe Spectroscopy in Nanosecond-to-Microsecond Time Range

Paulius Razma

Presented in this paper are two new methods for delaying optical pulses for pump – probe experiments and reaching towards the microsecond time range. One of these methods is the delay of an optical pulse inside a cavity, whereas the other method involves synchronization of a femtosecond pulse laser for probing and a nanosecond pulse laser with built-in supercontinuum generation. The objective of this paper is to compare the two mentioned methods for probe delay in pump – probe experiments. Modeling and assembly of a cavity for optical pulse delay was done and measurements of decay of pulse energy as well as other parameters depending on desired delay were performed. A continuum spectrum was generated with the delayed pulse to assess the feasibility of applying this cavity for a pump – probe experiment. In this paper is also described the synchronization of a pumping femtosecond pulse laser with a probing nanosecond pulse laser and to assess the precision of the system for pump – probe experiments closing in to a millisecond time regime.

The assembled cavity was able to delay optical pulses in steps of 12.85 nanoseconds. The pulses were trapped inside the cavity while keeping the voltage on the cell at zero or applying voltage to the Pockels cell together with a $\lambda/4$ waveplate. Pulse energy decay was measured and it was determined, that during the experiment the total optical losses for one cavity round trip were higher while the voltage on the Pockels cell is applied, however, with the voltage turned off the major part of energy losses were due to depolarization inside the cavity. The diameter of the pulse for different time delays was varying, therefore parameters of the inserted pulse inside the cavity were not equal to the parameters, supported by the cavity itself. As well as that, the pulse duration was measured for different time delays. It was determined, that the total group velocity dispersion is negative and self-phase modulation inside the Pockels cell already has a significant effect at 3.75 μJ pulse energies. After compensating for negative group velocity dispersion with the laser compressor, a white light continuum was achieved with 476 nanosecond pulse delay for 7.5 μJ pulse energies.

A pump – probe experiment using a second laser for probing was also performed. Synchronization of two lasers was achieved and the system was delaying pulses for up to 500 μs . The kinetics of merocyanine dyes *il4cn* and *il4etb* were measured during the experiment. The pulse – to – pulse time jitter of the “SuperK Compact“ supercontinuum laser was also measured – a normal

distribution with standard deviation of 37 ns. Having this information, computer modeling was performed to assess the limitations of probe pulse jitter in time, when averaging multiple difference absorption spectra during the measurement.