

Vilniaus universitetas
Fizikos fakultetas
Lazerinių tyrimų centras

Karolis Gadeikis
SUPERKONTINUUMO GENERACIJA MIŠRIUOSE TALIO HALIDUOSE KRS-5 IR KRS-6

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinės fizikos ir optinių technologijų studijų programa

Studentas

Karolis Gadeikis

Leista ginti

2018 05 28

Darbo vadovas

Prof. habil. Dr. Audrius Dubietis

LTC direktorius

Prof. Dr. Roaldas Gadonas

Vilnius 2018

Turinys

Įvadas.....	3
1. Teorinis įvadas.....	4
1.1. Netiesinis medžiagos poliarizuotumas.....	4
1.2. Netiesinis lūžio rodiklis	6
1.3. Elektroninis netiesiškumas	6
1.4. Netiesiškumas dėl lygmenų užpildos persiskirstymo	7
1.5. Šviesos saviveikos reiškiniai	9
1.5.1. Šviesos pluoštų fokusavimasis	9
1.5.2. Šviesos impulsų fazės moduliavimasis	11
1.5.3. Femtosekundinės šviesos gijos.....	13
1.5.4. Superkontinuumo generacija	19
1.6. Eksperimentų apžvalga	20
2. Darbo rezultatai	23
2.1. Medžiagos ir eksperimento detalės.....	23
2.2. Netiesinio lūžio rodiklio nustatymas	24
2.3. Superkontinuumo generacija KRS-5 kristale	27
2.4. Superkontinuumo generacija KRS-6 kristale	29
3. Išvados.....	31
Santrauka	33
Santrauka anglų kalba.....	34
Šaltiniai.....	35

Ivadas

1960 metais sukūrus pirmąjį lazerį mokslui atsivėrė nauji horizontai. Kartu su lazerio gimimu atsirado ir netiesinė optika, kuri nagrinėja intensyvios optinės spinduliuotės sąveiką su medžiaga. Trumpam šviesos impulsui (< 10 ps) sklindant netiesine terpe, jo dažnių spektras gali išplisti šimtus ar tūkstančius kartų – generuojamas šviesos superkontinuumas. Pirmą kartą literatūroje kontinuumas paminėtas jau 1964 metais, kuomet sugeneravus mazeriu jis buvo naudojamas Ramano absorbcijai skysčiuose [1] tirti, o 1970 metais užfiksuoti pirmieji spektro išplitimai kristaluose naudojant lazerio spinduliuotę [2].

Atradus superkontinuumo reiškinį jis pradėtas tirti įvairiose netiesinėse terpėse – kietuosiuose kūnuose, organiniuose ir neorganiniuose skysčiuose, dujose, šviesolaidžiuose. Šviesolaidinė terpė ypatinga tuo, jog pasižymi mažais sklidimo nuostoliais, atsparumu trikdžiams, galimybe perduoti informaciją dideliu atstumu. Pirmieji eksperimentai atlikti lydyto kvarco [3] šviesolaidyje, o 1996 metais didelį atgarsį optikos mokslo pasaulyje sukėlė fotoninių kristalų šviesolaidžio išradimas. Jo populiarumą lėmė konstrukcijos pasirinkimo laisvė projektuojant šviesolaidžio struktūrą – keičiant šerdies ir aplinkinių mikrostruktūrų dydžius bei atstumus tarp jų, galima keisti netiesiškumo parametrai bei dispersines savybes. Didelio netiesiškumo medžiagų panaudojimas leido sukurti labai plataus spektro (nuo artimosios infraraudonosios iki vidurinėsios infraraudonosios srities) šviesolaidinius superkontinuumo šaltinius [4, 5], o parametriškai stiprinamų čirpuotų impulsų lazerinių sistemų, veikiančių MIR srityje, tobulinimas atvedė prie įdomių superkontinuumo generacijos ore bei kitose dujose rezultatų [6, 7].

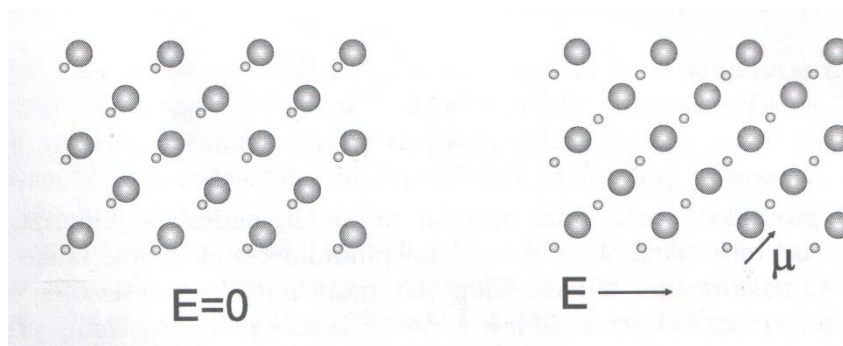
1983 metais sugeneruotas pirmasis superkontinuumas kaupinant femtosekundiniais impulsais – 80 fs trukmės 627 nm bangos ilgio dažų lazerio spinduliuotė buvo leidžiama per etileno glikolio čiurkšlę, o superkontinuumo spektras išplito nuo UV iki NIR [8]. Toliau tobulėjant femtosekundinių lazerių technologijoms bei gilėjant žinioms apie superkontinuumo reiškinį buvo sukurti femtosekundiniai optiniai parametriniai stiprintuvai [9] – ši pažanga palengvino darbą tyrinėjant iki tol mažai pažintą MIR spektrinę sritį. Ši sritis įdomi tuo, kad joje yra daugumos organinių molekulių taip vadinamieji “pirštų atspaudai” (angl. fingerprint) – sugerties sritys, kurios kiekvienai molekulei yra skirtingos ir unikalios. Organinių molekulių atpažinimas bei tyrimai būtų daug lengvesni pasitelkiant plataus spektro MIR šaltinius.

Šio darbo tikslas yra ištirti superkontinuumo generacijos MIR srityje galimybes ir dėsningumus netiesinėje optikoje egzotinėmis laikomose medžiagose – talio bromojodide (KRS-5) bei talio bromochloride (KRS-6) žadinant intensyviais 60 fs trukmės ir 3,1 μm bangos ilgio impulsais.

1. Teorinis įvadas

1.1. Netiesinis medžiagos poliarizuotumas

Netiesinė optika – optikos mokslo šaka, tirianti didelio intensyvumo spinduliuotės ir medžiagos sąveiką. Tokiomis sąlygomis vykstantys reiškiniai vadinami netiesiniais reiškiniais. Netiesiškumas pasireiškia tuo, jog medžiagos poliarizacinis atsakas netiesiškai priklauso nuo krintančios šviesos elektrinio lauko stiprio [10]. Pagal klasikinio osciliatoriaus modelį, skaidrią dielektrinę medžiagą veikiant elektriniu lauku, dipolio krūviai pasislinks į priešingas puses ir atsiras dipolinis momentas $\mu(t)$, kintantis elektrinio lauko dažniu (1 pav.).



1 pav. Dielektriko atsakas į išorinį elektrinį lauką [11]

Medžiagos indukuotas poliarizuotumas užrašomas taip: $P(t) = N \langle \mu(t) \rangle$. N – dipolių skaičius, $\langle \mu(t) \rangle$ – vidurkis visų dėl elektrinio lauko atsiradusių dipolių dipolinių momentų.

Netiesinės optikos reiškiniai pasireiškia esant dideliame šviesos elektrinio lauko stipriui, kuris lemia netiesinio poliarizuotumo priedo atsiradimą. Indukuotas poliarizuotumas netiesiškai priklauso nuo elektrinio lauko stiprio:

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E(t) + \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) + \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t) + \dots, \quad (1)$$

čia $\chi^{(1)}$ – tiesinis optinis jautris, $\chi^{(2)}$ ir $\chi^{(3)}$ yra antrosios ir trečiosios eilės netiesiniai optiniai jautriai, ε_0 – vakuumo dielektrinė skvarba. Šią išraišką galima perrašyti atskiriant tiesinę ir netiesinę poliarizuotumo dalis:

$$P(t) = P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots = P_T + P_{NT}, \quad (2)$$

čia $P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t)$ yra antrosios eilės (kvadratinis) netiesinis poliarizuotumas, o $P^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t)$ – trečiosios eilės (kubinis) netiesinis poliarizuotumas. Skirtingos eilės optinių jautrių dydžiai smarkiai skiriasi [1]:

$$\begin{aligned} \chi^{(1)} &\approx \frac{\pi}{2} \\ \chi^{(2)} &\approx 2 \times 10^{-12} \text{ m/V} \\ \chi^{(3)} &\approx 4 \times 10^{-24} \text{ m}^2/\text{V}^2. \end{aligned} \quad (3)$$

Reikia paminėti, kad kvadratinio ir kubinio netiesinių poliarizuotumų reiškiniai vyksta nevienodai – su kvadratinio netiesiškumu susiję reiškiniai pasireiškia tik kristaluose, kurie neturi simetrijos centro, o su kubiniu netiesiškumu susiję reiškiniai vyksta visose be išimties medžiagose, nepriklausomai nuo jų agregatinės būsenos – kietuosiuose kūnuose, dujose, skysčiuose bei plazmoje [11]. Netiesinėje optikoje poliarizuotumas yra svarbi charakteristika dėl to, kad dielektrinėje terpėje jo kitimas laike yra naujų elektromagnetinių bangų šaltinis. Bangos sklidimas netiesinėje nedispersinėje terpėje aprašomas lygtimi [11]:

$$\nabla^2 E - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c} \frac{\partial^2 P_{NT}}{\partial t^2}, \quad (4)$$

čia c yra šviesos greitis, o n – medžiagos lūžio rodiklis. Į šią lygtį galima žvelgti kaip į nevienalytę bangos lygtį, kurioje P_{NT} kuria elektrinį lauką E . Dešiniajai lygties pusei esant nelygiai nuliui, krūviai yra greitunami – būtent jie ir spinduliuoja elektromagnetines bangas.

$\chi^{(3)}$ terpėje sklindant monochromatinei bangai, kurios elektrinio lauko išraiška:

$$E(t) = E \cos \omega t, \quad (5)$$

indukuojamas netiesinis poliarizuotumas aprašomas:

$$P^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t) = \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3 \cos 3\omega t + \frac{3}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3 \cos \omega t. \quad (6)$$

Pirmasis narys aprašo trečiosios harmonikos generaciją, antrasis – netiesinio poliarizuotumo įtaką to paties dažnio spinduliuotei, interpretuojamą kaip medžiagos lūžio rodiklio pokytis. Su pastaruoju nariu yra susiję tokie netiesiniai reiškiniai kaip pluoštų fokusavimasis bei impulsų fazės moduliavimasis.

1.2. Netiesinis lūžio rodiklis

Netiesinėje optikoje medžiagų lūžio rodiklis priklauso nuo kritusios spinduliuotės intensyvumo [11]. Ši priklausomybė užrašoma taip:

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (7)$$

čia n_0 yra tiesinis, o n_2 – netiesinis lūžio rodikliai. Intensyvaus šviesos lauko izotropinėje terpėje kuriamas poliarizuotumas:

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E(\omega) + 3\varepsilon_0 \chi^{(3)} |E(\omega)|^2 E(\omega) \equiv \varepsilon_0 \chi_{\text{eff}} E(\omega), \quad (8)$$

čia $\chi^{(n)}$ – n -tosios eilės optinis jautris, ε_0 – dielektrinė skvarba vakuume, E – elektrinio lauko stipris

Tada medžiagos lūžio rodiklio išraiška:

$$n^2 = 1 + \chi_{\text{eff}}. \quad (9)$$

Galima išskirti lūžio rodiklio tiesinę ir netiesinę dedamąsias, siejamas su tiesiniu ir netiesiniu medžiagos optiniu jautriu:

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}, \quad (10)$$

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2 c \varepsilon_0} \chi^{(3)}. \quad (11)$$

Lūžio rodiklio priklausomybė nuo šviesos elektrinio lauko stiprio kartais vadinama optiniu Kero (Kerr) efektu. Optinio Kero efekto atveju elektrinis laukas kinta labai greitai, o lūžio rodiklio pokytis turi greitą arba lėtą atsako ir relaksacijos laiką.

Kubinis netiesiškumas yra skirstomas į nerezonansinį (dėl užpildos persiskirstymo tarp virtualių lygmenų) ir rezonansinį (dėl užpildos persiskirstymo tarp realių lygmenų, susijusių su sugertimi).

1.3. Elektroninis netiesiškumas

Elektroninį netiesiškumą lemia Kero efektas. Tai yra reiškinys, kai molekulę ar atomą paveikus elektriniu elektromagnetinės spinduliuotės lauku, jo elektroninio debesėlio elektronų atsakas yra netiesinis. Elektroninio netiesiškumo kilmę galima paaiškinti taip: elektroną dėl stipraus spinduliuotės lauko veikia didelė išorinė jėga, jo judėjimo nebegalima aprašyti parabolinio potencialo funkcija, o nuokrypis nuo jos ir lemia atsirandantį netiesiškumą. Elektroninis netiesiškumas būdingas visoms skaidrioms dielektrinėms medžiagoms, nepaisant jų agregatinės būsenos ar simetrijos savybių. Šis netiesiškumas yra nerezonansinis, nes jis nepriklauso nuo realių elektroninių šuolių tarp lygmenų. Ši

netiesiškumą lemia tik virtualūs šuoliai, todėl jis yra labai greitas [11]. Atsako trukmę galima įvertinti taip:

$$\tau = 2\pi a_0 / v, \quad (12)$$

čia $a_0 = 0.5 \times 10^{-8}$ cm – Boro spindulys, o $v \approx c/137$ – elektrono orbitinis greitis. Tipinė atsako trukmė yra lygi $\tau \approx 10^{-16}$ s. Kondensuotoms terpėms elektroninio netiesiškumo lemiamas netiesinis lūžio rodiklis n_2 yra $10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$ eilės ir yra teigiamas. Verta paminėti, kad kai kurių fizikinių mechanizmų kuriamas netiesinis lūžio rodiklis gali būti neigiamas [11].

1.4. Netiesiškumas dėl lygmenų užpildos persiskirstymo

Netiesiškumas dėl lygmenų užpildos persiskirstymo gali būti ir rezonansinis, ir nerezonansinis; fizikiniai mechanizmai, netiesiškumo dydis ir atsako trukmės yra būti labai įvairios – viskas priklauso nuo kritusio fotono energijos. Jeigu ši energija yra didesnė už draustinės energijos tarpą, netiesinis atsakas ir medžiagos lūžio rodiklio pokytis yra lemiami realių šuolių tarp energijos juostų – elektronas peršoka iš valentinės į laidumo juostą. Tada medžiagos optinių savybių pokytį galima susieti su juostos užpilda N_c , kurios laikinis kitimas yra:

$$\frac{dN_c}{dt} = \frac{\alpha I}{\hbar \omega} - \frac{N_c - N_c^{(0)}}{\tau_R}, \quad (13)$$

čia α yra sugerties koeficientas, $N_c^{(0)}$ – pusiausvyroji laidumo juostos užpilda nesant spinduliuotės, τ_R – elektronų ir skylių rekombinacijos trukmė (10 ns eilės). Kadangi paprastai lazerio impulso trukmė yra daug mažesnė už rekombinacijos trukmę, impulsui sąveikaujant su medžiaga juostos užpilda pamažu didėja. Dėl tokio elektronų koncentracijos pokyčio medžiagos savybės pakinta, o šis pokytis pagrinde yra lemiamas laisvųjų elektronų atsako, kuris aprašomas:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i/\tau)}, \quad (14)$$

čia ε yra medžiagos dielektrinė konstanta, $\omega_p^2 = N_c e^2 / \varepsilon_0 m$ – plazmos dažnis, $\tau \leq \tau_R$ – optinio atsako trukmė. Didėjant spinduliuotės intensyvumui juostos užpilda N_c irgi didėja, o dielektrinė konstanta $\varepsilon(\omega)$ – mažėja. Taigi, netiesinį lūžio rodiklį galima užrašyti taip:

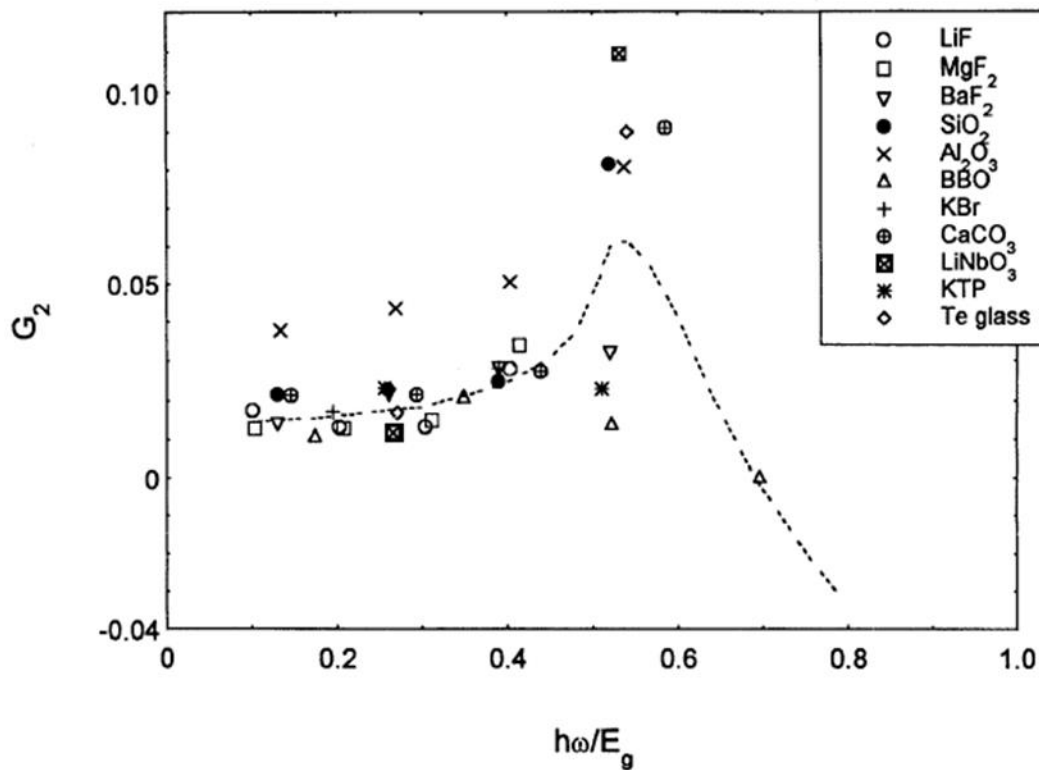
$$n_2 = -\frac{e^2 \alpha \tau_R}{2n_0 \varepsilon m \hbar \omega^3}, \quad (15)$$

čia $m=0.1m_e$ yra efektinė elektronų masė laidumo juostoje. Kadangi netiesinis lūžio rodiklis yra proporcingas spinduliuotės dažnio kubui, šis netiesiškumas stipriau pasireiškia prie didesnių bangos ilgių, o konkrečiau – infraraudonajame spektro diapazone. Svarbus aspektas yra neigiamas netiesinio lūžio rodiklio dydis – dėl netiesinio laisvųjų elektronų atsako medžiaga pasižymi defokusuojančiu poveikiu.

Tuo atveju, kai kritusio fotono energija yra mažesnė už draustinės energijos tarpą, netiesinis atsakas ir medžiagos lūžio rodiklio pokytis yra lemiami virtualių šuolių, o virtualieji lygmenys yra išsidėstę draustinėje juostoje. Jeigu fotono energija nėra artima E_g , labiausiai netiesiškumą lemia dvifotoniai ar aukštesnės eilės procesai. Šiuo atveju netiesinis lūžio rodiklis gali būti užrašytas taip [13, 14]:

$$n_2(esu) = K' \frac{\sqrt{E_p}}{n_0 E_g^4} G_2(\hbar\omega/E_g), \quad (16)$$

čia E_p yra Kane momento parametras, kuris daugumai medžiagų lygus 21 eV [13, 14]; šiuose skaičiavimuose taip pat imama ši vertė. $G_2(\hbar\omega/E_g)$ yra netiesinio lūžio rodiklio dispersijos funkcija, o $K' = 7,33 \times 10^{-9}$ – empirinė konstanta. Dispersijos funkcija grafiškai pavaizduota 2 pav. [13]



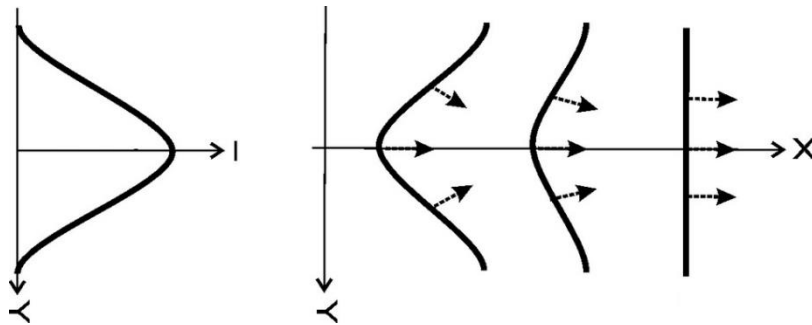
2 pav. Dispersijos funkcijos G_2 priklausomybė nuo $\hbar\omega/E_g$ santykio (brūkšniuota linija)

1.5. Šviesos saviveikos reiškiniai

Dėl netiesinio lūžio rodiklio medžiagoje pasireiškia daug netiesinės optikos reiškinių – šviesos pluoštų fokusavimasis, ultratrumpųjų šviesos impulsų fazės moduliavimasis ir spektro plitimas, superkontinuumo generacija ir kiti. Šie reiškiniai dažnai vadinami vienu vardu – šviesos saviveika. Jie taikomi įvairiai – pradedant impulsų spektro plėtimu, impulsų laikine spūda, optinių solitonų generacija, baigiant optinės informacijos įrašymu ir apdorojimu, spektroskopiniais taikymais [11]. Iš saviveikos reiškinių reikia išskirti superkontinuumo generaciją – impulso spektro išplitimą šimtus ar tūkstančius kartų jam sklindant netiesine terpe. Šviesolaidžiuose superkontinuumas sklinda optinių solitonų, susidarančių dėl impulso fazės moduliavimosi ir medžiagos dispersijos sąveikos, pavidalu. Stikluose ir kristaluose superkontinuumas sklinda šviesos gijų pavidalu, kurie yra šviesos pluoštų fokusavimosi, fazės moduliavimosi, daugiafotonės sugerties/jonizacijos indukuotos laisvųjų elektronų plazmos, grupinių greičių dispersijos, keturbangių parametrinių sąveikų ir t.t., rezultatas.

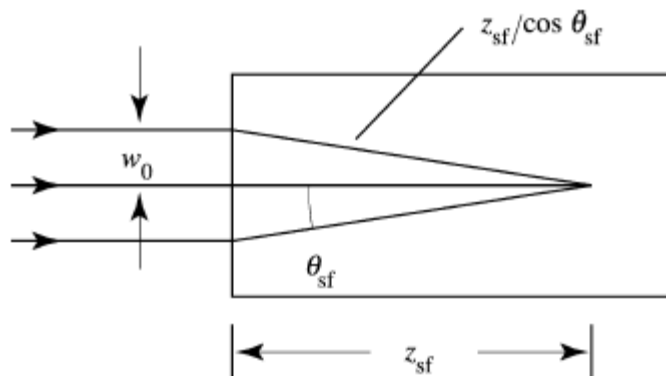
1.5.1. Šviesos pluoštų fokusavimasis

Šviesos pluoštų fokusavimasis yra reiškinys, kurio metu intensyvus šviesos spindulys taip pakeičia sklidimo terpės optines savybes, kad medžiaga ima veikti kaip lęšis. Šviesos pluoštas pasižymi erdvinio intensyvumo skirstiniu skersai sklidimo ašies, dažniausiai aprašomu Gauso pasiskirstymo funkcija. Dėl šio pasiskirstymo atsirandanti medžiagos lūžio rodiklio moduliacija šviesos pluošto centre yra didesnė, o kraštuose – mažesnė. Jeigu lūžio rodiklis yra teigiamas ($n_2 > 0$), bus indukuojamas glaudžiamasis lęšis ir pluoštas fokusuos (3 pav.), o jeigu neigiamas ($n_2 < 0$), lęšis bus sklaidomasis ir pluoštas defokusuosis.



3 pav. Šviesos pluošto bangos fronto iškraipymai – pluošto fokusavimosi priežastis (adaptuota iš [15])

Tarkime, kad w_0 spindulio kolimuotas šviesos spindulys krinta į netiesinę skaidrią medžiagą, turinčią teigiamą netiesinį lūžio rodiklį n_2 (4 pav.).



4 pav. Netiesinio židinio nuotolio apibrėžimo iliustracija

Atstumas z_{sf} , kurį įveikęs pluoštas susifokusuos, bus aprašomas taip [16]:

$$z_{sf} = \frac{0,367z_R}{\sqrt{\left[(P/P_{cr})^{1/2} - 0,852\right]^2 - 0,0219}}, \quad (17)$$

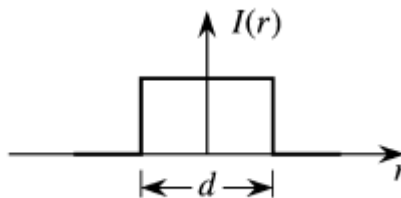
čia $z_R = \pi n_0 \omega_0^2 / \lambda$ yra Reilėjaus ilgis Gauso pluoštui, kurio spindulys ω_0 , o P_{cr} – kritinė galia:

$$P_{cr} = \frac{3,77\lambda^2}{8\pi n_0 n_2}, \quad (18)$$

čia n_0 bei n_2 yra atitinkamai tiesinis ir netiesinis lūžio rodikliai, o λ – spinduliuotės bangos ilgis. Nors (17) lygtis yra išvesta nuolatinės veikos lazerių spinduliuotei, ji yra tinkama ir femtosekundinių impulsų netiesinio fokusavimo aproksimacijai [17]. Tuo atveju, kai šviesos pluošto galia P yra lygi kritinei galiai P_{cr} , fokusavimo ir difrakcinės skėsties reiškiniai kompensuoja vienas kitą ir šviesa yra tarsi įkalinama erdvėje – ji gali skliti didelius atstumus beveik nekintant jos skersmeniui.

Šviesos įkalinimui erdvėje suprasti padarykime prielaidą, jog pluošto intensyvumo skirstinys yra stačiakampio formos (5 pav). Tuomet šviesos nepaveiktoje medžiagos srityje lūžio rodiklis bus lygus medžiagos lūžio rodikliui n_0 , o paveiktoje srityje lūžio rodiklis yra $n = n_0 + \delta n$, čia δn – netiesinis lūžio rodiklio indėlis. Šviesos spinduliui krentant į ribą tarp šviesos paveiktos ir nepaveiktos medžiagos sričių, jis patirs visišką vidaus atspindį ir liks įkalintas lazerio pluošto viduje, jeigu kritimo kampas θ bus mažesnis už kritinį visiško vidaus atspindžio kampą θ_0 , kuris išreiškiamas:

$$\cos \theta_0 = \frac{n_0}{n_0 + \delta n}. \quad (19)$$



5 pav. a) Stačiakampio formos lazerio spindulio intensyvumo pasiskirstymas [10]

Svarbu paminėti, kad šviesos pluošto fokusavimasis yra nulemiamas ne intensyvumo, o galios. Praktikoje balansą tarp fokusavimosi ir difrakcinės skėsties pasiekti yra beveik neįmanoma dėl triukšminės pluošto moduliacijos bei kitų tuo pat metu galinčių pasireikšti netiesinės optikos reiškinių įtakos, pavyzdžiui, energijos nuostolių dėl netiesinės sugerties [11].

1.5.2. Šviesos impulsų fazės moduliavimasis

Ultratrumpajam šviesos impulsui sklindant skaidria terpe, dėl optinio Kero efekto medžiagoje atsiras kintantis lūžio rodiklis, kuris lems impulso fazės pokytį, taip pakeisdamas jo dažninį spektrą. Nagrinėjant plokščiosios bangos sklidimą ir taikant lėtai kintančios amplitudės artinį bei laikant impulso laikinę gaubtinę sklidimo metu nekintančia galima užrašyti tokią sklidimo lygtį [18]:

$$i \frac{\partial A}{\partial z} - \beta |A|^2 A = 0, \quad (20)$$

čia β yra netiesiškumo koeficientas

$$\beta = \frac{3\chi^{(3)}k_0}{8n_0^2} = n_2 \frac{c\varepsilon_0 k_0}{2}, \quad (21)$$

čia n_0 yra medžiagos lūžio rodiklis, o k_0 – bangos vektorius. Šios lygties sprendinys yra

$$A(z, t) = A_0(t) \exp(-i\beta |A_0|^2 z), \quad (22)$$

čia $A_0(t) = A(z=0, t) = a_0(t) e^{i\phi_0(t)}$ yra pradinė impulso amplitudė, o ϕ_0 – fazė. Sprendinį perrašius $A = a e^{i\phi}$ pavidalu, gauname, kad

$$\begin{aligned} a(z, t) &= a_0(t), \\ \phi(z, t) &= \phi_0(t) - \beta |A_0(t)|^2 z \end{aligned} \quad (23)$$

Pirmoji lygtis parodo, jog impulso laikinė gaubtinė neiškraipoma, nes nėra dispersinės plėtros, o antroji – kad netiesiškumas lemia indukuotą fazės pokytį impulsui nusklidus atstumą nuo 0 iki z :

$$\delta\phi(z,t) = -\beta |A_0(t)|^2 z. \quad (24)$$

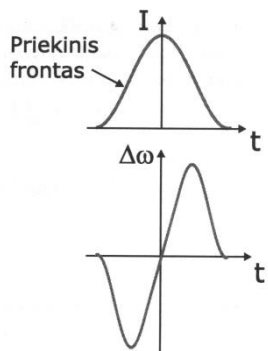
Išraiškoje esantis atstumo žymuo z rodo, jog fazės pokytis kaupiasi sklidimo metu. Išreiškus jį per intensyvumą, gausime

$$\delta\phi(z,t) = -n_2 \frac{k_0}{2n_0} |A_0(t)|^2 z = -\frac{\omega_0}{c} n_2 I_0(t) z. \quad (25)$$

Kadangi bangos dažnis yra laikinė fazės išvestinė, impulso fazės moduliacija lemia jo dažnio moduliaciją:

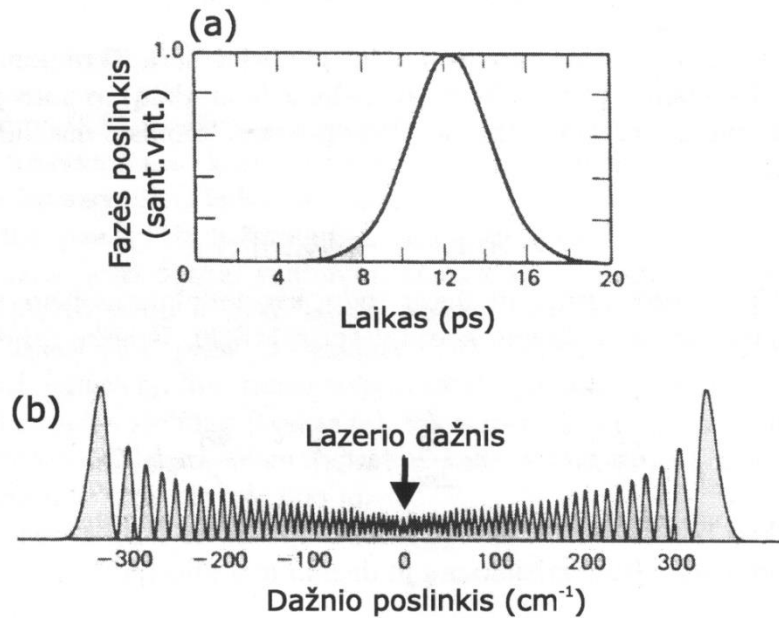
$$\delta\omega(z,t) = \frac{\delta(\delta\phi)}{\delta t} = -\beta \frac{\partial |A_0|^2}{\partial t} = -\frac{\omega}{c} n_2 \frac{\partial I_0}{\partial t} z. \quad (26)$$

Tai iliustruota 6 paveiksliuke.



6 pav. Šviesos impulso laikinė gaubtinė ir dažnio moduliacija [11]

Impulso priekinis frontas įgauna neigiamą dažnio poslinkį (tampa raudonesnis), o galinis – teigiamą (tampa mėlynesnis). Toks šviesos impulsas vadinamas faziškai moduliutu [11]. Faziškai moduliuto šviesos impulso fazės pokytis ir spektras pavaizduoti 7 paveiksliuke.



7 pav. Intensyvaus šviesos impulso (a) fazės pokytis ir (b) dažnių spektras momentinio netiesinio atsako terpėje [11]

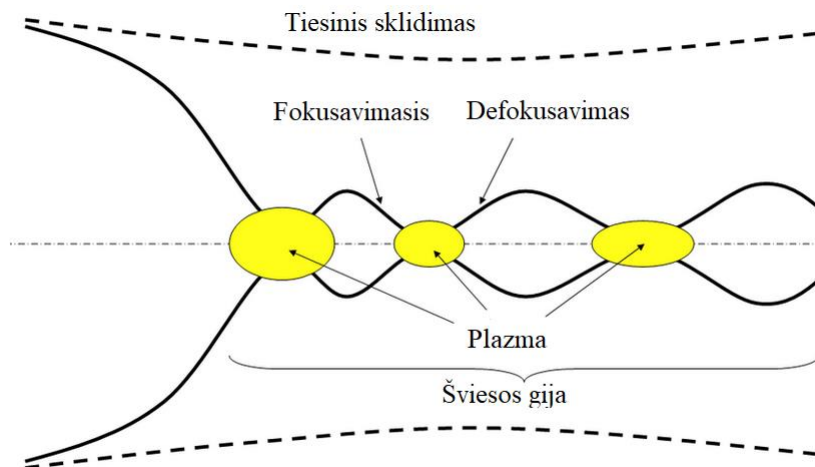
Tokio impulso spektras simetriškai išplitęs į abi puses nešančiojo dažnio atžvilgiu ir jame yra kvaziperiodinės osciliacijos. Spektras yra simetriškas tik tuo atveju, kai n_2 netiesiškumas spėja kisti su elektrinio lauko dažniu, o taip būna greito netiesiškumo, pavyzdžiui, elektroninio, atveju.

1.5.3. Femtosekundinės šviesos gijos

Femtosekundinės šviesos gijos formavimasis yra labai sudėtingas dinamiškas reiškinys – be pluošto fokusavimo ir difrakcinės skėsties reikia atkreipti dėmesį į tokius veiksnius, kaip laisvųjų elektronų plazmos generacija dėl daugiafotonės sugerties, impulsų fazės moduliacija, spektro plėtra, grupinių greičių dispersija, impulso laikinės gaubtinės modifikacija bei keturbangis dažnių maišymasis, kuris tenkina nekolinearaus fazinio sinchronizmo sąlygas [19]. Vis dėlto, teorinis šviesos gijų aprašymas gali būti labai supaprastintas atsižvelgiant į tris pagrindinius fizikinius veiksnius: pluošto difrakciją, fokusavimąsi ir defokusavimą dėka generuojamos laisvųjų elektronų plazmos, atsirandančios dėl daugiafotonės sugerties ar jonizacijos [11]:

$$n_2 I - \frac{N(I)}{2N_{cr}} - \frac{(0.61\lambda)^2}{4\pi n_0 w_0^2} = 0, \quad (27)$$

čia $N(I)$ yra laisvųjų elektronų tankis, o w_0 – šviesos gijos spindulys, $N_{cr} = \varepsilon_0 m_e \omega_0^2 / e^2$ – kritinis plazmos tankis, kurį pasiekus, plazma tampa neskaidri. Spinduliuotės intensyvumas sklaidimo metu kinta tiek laike, tiek erdvėje, todėl atitinkamai kinta ir laisvųjų elektronų tankis, o dėl jo – ir medžiagos lūžio rodiklis. Vadinasi, (40) lygtis aprašo lokalų šviesos pluošto difrakcijos, fokusavimo bei defokusavimo reiškinių balansą bet kuriame erdvės taške. Šviesos gijos formavimasis bei sklaidimo dinamika fokusavimo ir defokusavimo ciklais pavaizduota 8 pav.



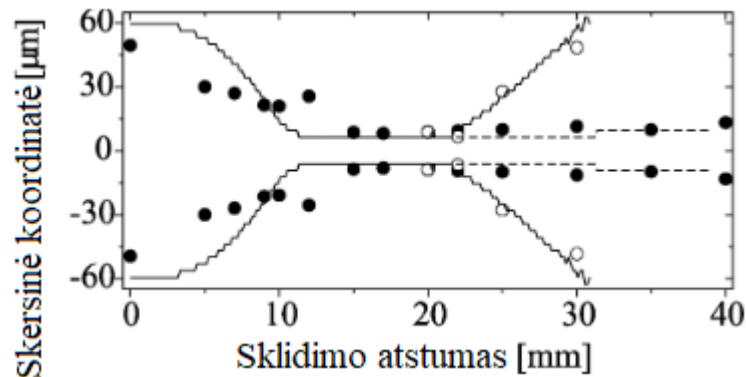
8 pav. Šviesos gijos formavimasis bei sklaidimas fokusavimo bei defokusavimo ciklais. Šviesos gijos skersmuo pažymėtas ištisinėmis linijomis. Brūkšninėmis linijomis pažymėtas pluošto skersmuo tiesinio sklaidimo atveju (adaptuota iš [20])

Šviesos pluošto galiai viršijant kritinę galią, pluoštas fokusuojasi ir gali pasirodyti, jog jo matmenys susitrauks iki nykstamai mažų verčių. Vis dėlto taip nenutinka, kadangi ima veikti kiti fizikiniai mechanizmai, kurių dėka tolimesnis pluošto fokusavimas yra sustabdomas. Fokusavimo metu šalia netiesinio židinio taško labai išaugęs intensyvumas lemia daugiafotonės sugerties atsiradimą, kurios metu medžiaga ima sugerti po keletą spinduliuotės fotonų vienu metu. Kondensuotai terpei pritaikius juostinį energijos lygmenų modelį galima įsivaizduoti, jog elektronai yra sužadunami iš valentinės į laidumo juostą ir tampa sąlyginai laisvi, o jų plazma dėl užpildos persiskirstymo tarp realių lygmenų medžiagoje indukuoja neigiamą netiesinį lūžio rodiklį $n_2 < 0$. Dujų atveju atomai ir molekulės yra tiesiog jonizuojami. Taigi, atsiradusi neigiamo netiesinio lūžio rodiklio laisvųjų elektronų plazma bei energijos nuostoliai ima slopinti intensyviausią centrinę pluošto dalį. Jeigu po defokusavimo pluošto galia vis dar yra didesnė už kritinę galią, po kurio laiko pluoštas vėl ima fokusuotis. Šis ciklas

tęsis tol, kol dėl energijos nuostolių pluošto galia taps mažesnė už kritinę, o fokusavimo ir defokusavimo ciklo ryškumas priklausys nuo pradinės pluošto galios.

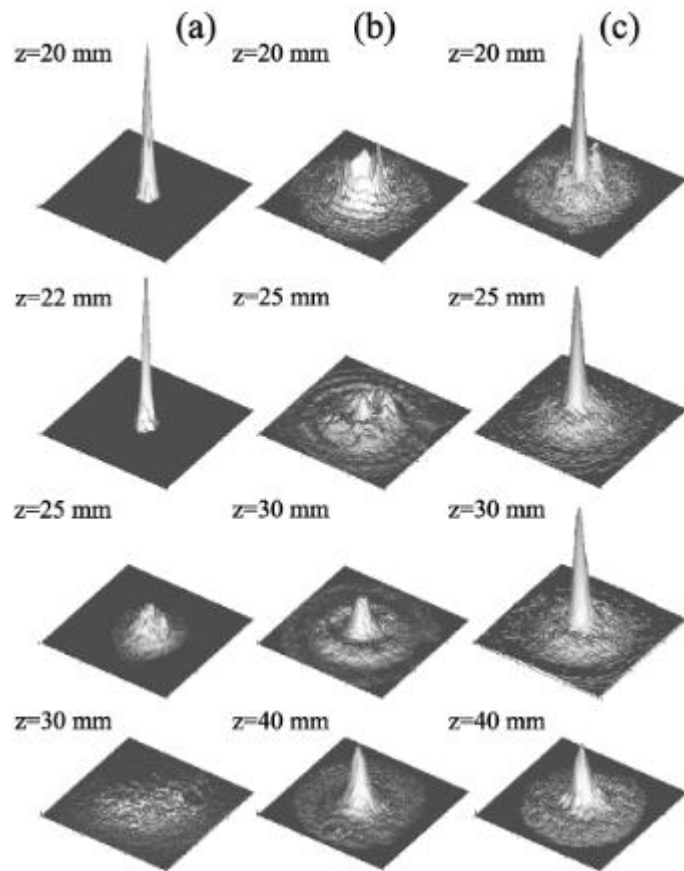
Tuo atveju, kai $P < 5P_{cr}$, ciklai bus beveik nepastebimi ir kurį laiką bus matomas lėtai didėjantis šviesos gijos skersmuo, pavaizduotas 9 pav. Toks sklidimas vadinamas subdifraciniu, kadangi šviesos gijos difrakcinė skėstis yra daug mažesnė, lyginant su tų pačių matmenų Gauso pluoštu [11]. Šviesos gijos galia yra artima kritinei galiai P_{cr} , o jos spindulys aprašomas:

$$w_0 = \sqrt{\frac{2P_{cr}}{\pi I}}. \quad (28)$$



9 pav. Subdifracinis šviesos gijos sklidimas. Taškai žymi eksperimento duomenis, ištisinė linija – skaitmeninio modeliavimo rezultatą [21]

Šviesos gijų skersmenys skysčiuose ir kietuosiuose kūnuose paprastai būna nuo 5 iki 20 μm , o atstumai, kuriais ji išlaiko savo matmenis, yra keletu centimetrų eilės [11]. Sudėtingas ir įdomus yra jos erdvinis skirstinys – giją sudaro intensyvi mažų matmenų centrinė smailė ir mažo intensyvumo periferinė dalis, kuri atrodo kaip koncentrinių žiedų struktūra (10 pav. c) Šviesos gija šią struktūrą išlaiko viso sklidimo metu – su terpe netiesiškai sąveikauja tik intensyvi centrinė dalis, kurioje yra < 10% visos pluošto energijos, o periferinė dalis atlieka energijos rezervuaro funkciją ir kompensuoja centrinės smailės energijos nuostolius. Ši kompensacija lemia labai įdomią šviesos gijų savybę – savaiminę centrinės smailės rekonstrukciją. Eksperimentų [21] metu pastebėta, jog užblokavus centrinę šviesos gijos dalį, periferinis mažo intensyvumo energijos rezervuaras po tam tikro atstumo šią dalį atstato (10 pav. b), tačiau jeigu yra blokuojama periferinė dalis, tuomet šviesos gija greitai difraguoja ir išnyksta (10 pav. a).

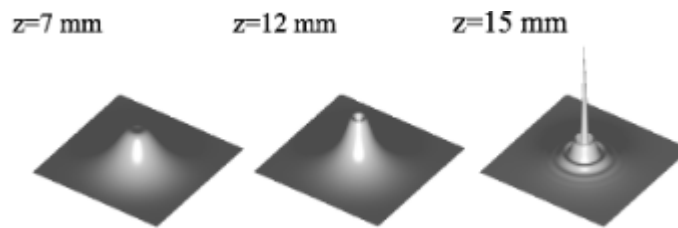


10 pav. a) centrinės smailės sklidimas užblokavus periferinę pluošto dalį; b) savaiminė centrinės smailės rekonstrukcija ją užblokavus; c) šviesos gijos sklidimo dinamika. z – sklidimo atstumas [21]

Šviesos gijos erdvinės struktūros formavimasis gali būti aiškinamas kaip erdvinė Gauso pluošto transformacija dėl fokusavimo, difrakcijos bei daugiafotonės sugerties. Netiesinė Šrėdingerio lygtis lauko amplitudei A užrašoma taip [21]:

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{i}{2k} \nabla_{\perp}^2 A + \frac{i\omega_0 n_2}{c} |A|^2 A - \frac{\beta^{(K)}}{2} |A|^{2K-2} A. \quad (29)$$

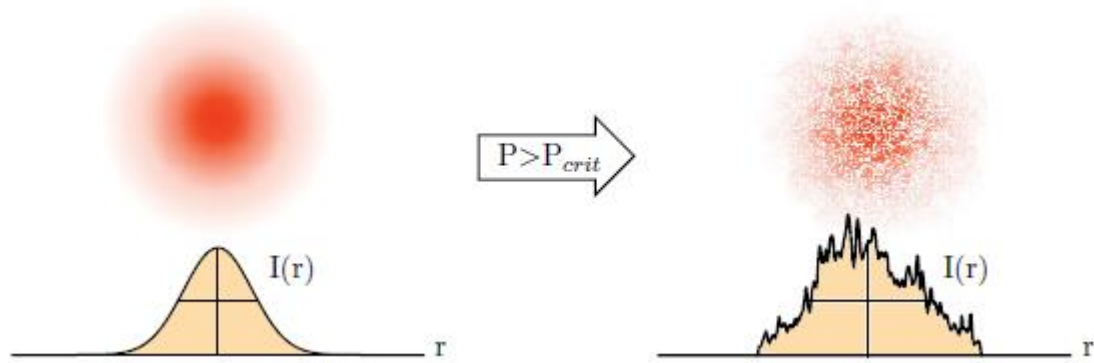
Čia A – elektrinio lauko amplitudė, k – bangos vektorius, ω_0 – nešantysis dažnis, $K = E_g / \hbar\omega$ – daugiafotonės sugerties eilė, $\beta^{(K)}$ – daugiafotonės sugerties koeficientas. Šios lygties skaitmeninis modeliavimas pateiktas 11 pav.



11 pav. Gauso pluošto transformacijos į šviesos giją skaitmeninis modeliavimas. z – sklidimo atstumas [21]

Kaip jau minėta anksčiau, šviesos pluoštui fokusuojantis šalia netiesinio židinio taško atsiranda daugiafotonė sugertis. Šis procesas yra stipriai netiesinis, todėl pasireiškia tik pačioje pluošto viršūnėje, kuri dėl to suplokštėja. Suplokštėjusios viršūnės kraštai vis dar kuria lūžio rodiklio gradientą ir toliau fokusuojasi, tuo tarpu pati viršūnė įgauna pastovų fazės poslinkį ir įdumba – formuojasi žiedo pavidalo pluoštas, turintis stačius kraštus. Tokiame pluošte dėl difrakcijos susiformuoja siaura centrinė smailė, kuri sklisdama netiesiškai sąveikauja su medžiaga bei patiria daugiafotonės sugerties lemiamus energijos nuostolius, kuriuos kompensuoja periferinė žiedinė struktūra. Kuomet periferinis energijos rezervuaras išsenka, šviesos gija difraguoja ir išnyksta. Centrinės smailės rekonstrukcija yra galima dėl to, kad šviesos gija pasižymi kūgine struktūra (kuomet netiesinio sklidimo metu atsirandantys pluošto bangos vektoriai išsidėsto ant kūgio, kurio simetrijos ašis sutampa su pluošto sklidimo kryptimi [11]). Šviesos gijos pasižymi labai plačiu spektru, kuris praktiškai yra superkontinuumas. Jo dažnio komponentai atsiranda tiek dėl impulso laikinių transformacijų, tiek dėl keturbangio dažnių maišymosi, kuris, beje, lemia šviesos gijos kūginę spinduliuotę (ši spinduliuotė tolimajame lauke matoma kaip spalvoti žiedai [11]).

Tais atvejais, kuomet šviesos pluošto galia smarkiai viršija kritinę galią ($P \gg P_{cr}$), šviesos gija gali skilti į daugybę atskirų gijų, o kiekvienos iš jų galia bus apytiksliai lygi P_{cr} [10]. Gauso pavidalo pluošto intensyvumo pasiskirstymas tampa atsitiktinai moduluotas su didesnio intensyvumo taškais centre, tačiau jo bendras vaizdas vis dar primena pradinį pasiskirstymą (12 pav.) – nors šių taškų intensyvumas laikui bėgant svyruoja, erdvėje savo pozicijas jie išlaiko [22].



12 pav. Gauso pluošto intensyvumo pasiskirstymas prieš (kairėje) ir po (dešinėje) šviesos gijos skilimo. Raudonai pateikti šių pluoštų intensyvumo profiliai [22]

Tačiau kokie dar veiksniai, be galios, lemia šviesos gijos skilimą? Šis klausimas yra gana subtilus mažiausiai dėl dviejų priežasčių. Pirmiausia, skilimą gali sukelti pradiniai šviesos bangos fronto iškraipymai, todėl negražios formos spindulys skils daug greičiau už gražios formos spindulį. Antra, skilimui įtakos turi ir erdvinė koordinatė besifokusuojančiame šviesos pluošte. Apibrėžkime gijos skilimo atstumą z_{fil} pagal sąryšį $n_2 k_{vac} I z_{fil} = G$, čia G yra skaičius nuo 3 iki 10, žymintis, kokį stiprumo lygį turi pasiekti gija, prieš pradėdama skilti. Iš čia randame, kad:

$$z_{fil} = \frac{G}{n_2 k_{vac} I}. \quad (30)$$

Šį atstumą galime palyginti su fokusavimo atstumu (17) išraiškoje, esant kritinei galiai, kuri aprašoma (18) lygtimi. Sąlyga gijos skilimui prasidėti gali būti užrašoma kaip $z_{fil} < L$, čia L yra sąveikos kelio ilgis, o $z_{fil} < z_{sf}$. Šios sąlygos teigia, kad skilimas turi įvykti sąveikos srities ilgyje dar nepasiekus netiesinio židinio taško. Kadangi z_{fil} , didėjant galiai (ar intensyvumui), mažėja daug greičiau, negu z_{sf} , gijos skilimas gali būti pasiektas esant pakankamai aukštai lazerio spinduliuotės galiai. Lazerio galia, kuomet skilimo atstumas bus lygus netiesinio židinio atstumui $z_{fil} = z_{sf}$, yra išreiškiama taip:

$$\frac{P}{P_{cr}} = 4G^2. \quad (31)$$

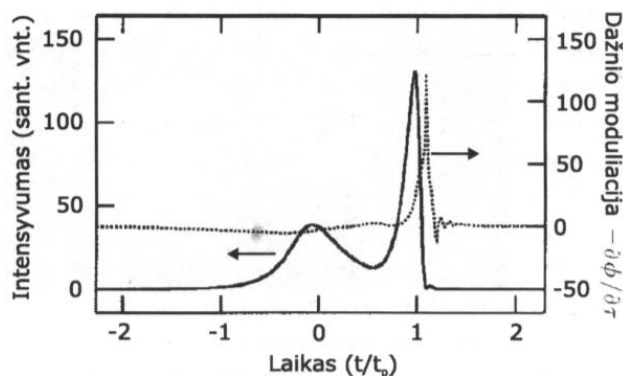
Pagal šią lygtį, jeigu G vertė yra, pavyzdžiui, 5, tuomet gijos skilimo galima tikėtis lazerio galiai esant $P > 100P_{cr}$.

1.5.4. Superkontinuumo generacija

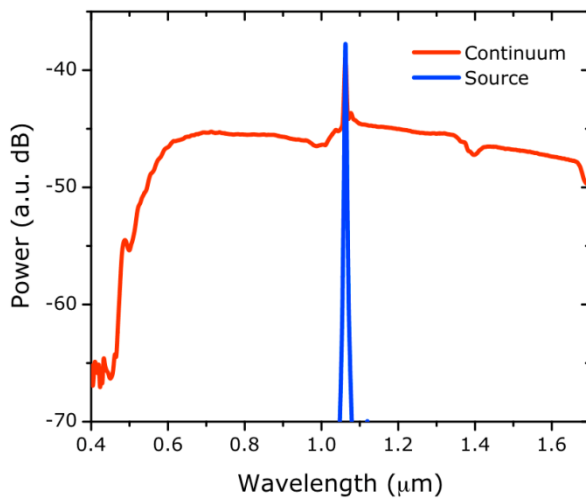
Baltos šviesos superkontinuumas – tai erdvėje ir laike koherentinė labai plataus spektro spinduliuotė. Jis labai skiriasi nuo kitų šviesos šaltinių, kadangi sklinda šviesos pluošto pavidalu, o jo dažnių komponentai yra fazuoti [11]. Superkontinuumo generacija pasireiškia, kuomet trumpas šviesos impulsas (<10 ps) sklinda netiesine terpe ir jo dažnių spektras išplinta šimtus ar tūkstančius kartų. Šio reiškinio prigimtis yra universali, kadangi ją galima stebėti įvairiose terpėse: dujose, skysčiuose, kietuosiuose kūnuose, šviesolaidžiuose. Eksperimentiškai nustatyta, jog superkontinuumo žadinimo slenkstinė galia praktiškai sutampa su kritine pluošto fokusavimosi galia, todėl galima daryti išvadą, jog toks sklidimo režimas turi daug bendro su šviesos gijų žadinimo ypatumais [11].

Superkontinuumo generacijos metu pasireiškia daugybė netiesinės optikos reiškinų – impulso fazės moduliavimasis, kryžminė fazės moduliacija, keturbangis dažnių maišymasis, priverstinė Ramano sklaida, erdvėlaikinis fokusavimasis, laikinis impulsų skilimas, smūginių bangų susidarymas, kūginės spinduliuotės atsiradimas ir pan. Jo spektras paprastai būna tolydus (14 pav.), be jokių aiškių spektrinių minimumų ar maksimumų, o plitimas būna asimetriškas žadinančios spinduliuotės atžvilgiu. Dažniausiai eksperimentų metu stebimas plitimas į mėlynąją pusę būna daug didesnis už plitimą į raudonąją [11].

Tokių superkontinuumo spektro plitimo pobūdį galima paaikškinti remiantis laikinės impulso gaubtinės iškraipymais dėl erdvėlaikinių efektų [23]. Skaitmeniniai modeliavimai parodė, kad dėl stiprios erdvėlaikinės sąveikos pradinis impulsas skyla į du subimpulsus (13 pav.), kurie labai skiriasi savo amplitudėmis, trukmėmis bei dažnio moduliacijos mastu. Priekinis subimpulsas turi mažesnę amplitudę bei gulstesnius frontus, jo dažnio moduliacija silpna ir neigiama – jis lemia spektro plitimą į raudonąją pusę. Galinio subimpulso amplitudė didelė, frontai statūs, o dažnio moduliacija stipri ir teigiama – jis lemia spektro plitimą į mėlynąją pusę.



13 pav. Baltos šviesos kontinuumo laikinė struktūra (ištininė linija) ir dažnio moduliacija (brūkšninė linija) [11]



14 pav. Tipinis superkontinuumo (raudona) bei kaupinimo spinduliuotės (mėlyna) spektras

Plačiausi ir didžiausią poslinkį į mėlynąją bangų pusę turintys superkontinuumo spektrai generuojami medžiagose, turinčiose mažiausią netiesinį lūžio rodiklį n_2 [11]. Tokios medžiagos pasižymi dideliu draustinės energijos tarpu E_g . Šviesos pluoštui fokusuojantis ir pasiekiant labai dideles intensyvumo vertes medžiagoje susidaro laisvųjų elektronų plazma, kurios neigiamo netiesinio lūžio rodiklio indėlis lemia pluošto defokusavimą. Kuomet laisvųjų elektronų tankis pasiekia $\sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ [11], yra ribojamas spinduliuotės intensyvumas – ribinis intensyvumas bei pluošto skersmuo netiesiniame židinyje priklausys nuo daugiafotonės sugerties eilės. Kuomet draustinės energijos tarpas yra nedidelis, elektronų plazma bus kuriama mažesnės eilės daugiafotonės sugerties, šviesos pluošto skersmuo bus didesnis, o netiesinės fazės poslinkis – mažesnis, todėl spektras plis sąlyginai nedaug. Platų draustinės energijos tarpą turinčiose medžiagose aukštesniųjų eilių daugiafotonė sugertis pasireiškia tik esant labai dideliui intensyvumui, todėl pluošto skersmuo yra mažesnis, o netiesinis fazės poslinkis didesnis ir spektras plinta daugiau.

1.6. Eksperimentų apžvalga

Pirmieji šviesos impulsų spektro išplitimo požymiai pastebėti jau 1964 metais, kuomet Jones ir Stoicheff [1] mazeriu tyrė Ramano sugertį skysčiuose – eksperimentų metu mazerio spinduliuotėje atsiradus papildomiems komponentams, Ramano emisijos spektrai pastebimai išsiplėtė. 1970 metais Alfano paskelbė tris straipsnius apie baltos šviesos generacijos reiškinį, dabar vadinamą superkontinuumu, kuris pirmą kartą buvo sugeneruotas kietoje netiesinėje terpėje – naudojant 5 mJ energijos ir 530 nm bangos ilgio impulsus, superkontinuumo spektras BK7 tipo stikle išsiplėtė nuo 400 iki 700 nm [24]. Pirmasis superkontinuumas kaupinant femtosekundiniais impulsais sugeneruotas 1983

metais, kuomet Fork su kolegomis pademonstravo išplitimą nuo artimosios UV iki artimosios IR srities, 80 fs trukmės 627 nm bangos ilgio impulsus leisdami per etileno glikolio čiurkšlę [8].

Tobulėjant technologijoms, plečiantis žinioms apie superkontinuumą bei atsirandant plataus spektro MIR srityje šaltinių poreikiui pastarajame dešimtmetyje atlikta nemažai eksperimentų, tiriančių MIR superkontinuumo generacijos dėsningumus įvairiose terpėse: dujose, skysčiuose, šviesolaidžiuose, kristaluose. 2008 metais, kaupinant 1550 nm bangos ilgio, 100 fs trukmės bei 1,9 nJ energijos impulsais, fotoninių kristalų šviesolaidyje sugeneruotas superkontinuumas, kurio spektras išplito nuo 789 iki 4870 nm [4]. Autorių teigimu, trumpesnis šviesolaidžio ilgis (buvo naudotas 8 mm šviesolaidis) lemia glotnesnį spektrą bei sumažina dispersijos įtaką, o ilgesniuose bangos ilgiuose medžiagos sugertis yra mažesnė. Laiptelinio lūžio rodiklio ypač didelės skaitinės apertūros chalkogenidiniame šviesolaidyje, kaupinant ultratrumpaisiais 4,5 μm bei 6,3 μm bangos ilgio impulsais, superkontinuumo spektras išplito atitinkamai 1,5 – 11,7 μm bei 1,4 – 13,3 μm [5]. Šiuo eksperimentu buvo pademonstruotas šviesolaidžių potencialas generuoti plataus spektro MIR spinduliuotę. Vis dėlto, šviesolaidžiai turi trūkumų. Pirmiausia, jų pagalba gaunamos spinduliuotės smailinė galia yra maža, o naudojant galingesnius lazerius terpė gana lengvai gali būti optiškai pažeista. Taip pat sudėtinga į šviesolaidį gerai įvesti spinduliuotės pluoštą, pasireiškia didelis jautrumas bet kokiems mechaniniams trikdžiams. Galiausiai, iš šviesolaidžio išeinanti spinduliuotė negali pasigirti geru laikiniu koherentiškumu.

2012 metais atliktas eksperimentas 80 fs trukmės bei 3,9 μm bangos ilgio spinduliuotę leidžiant per argono dujas. Superkontinuumas šioje terpėje labai stipriai plito į trumpesnių bangų pusę ir apėmė 350 nm – 5 μm spektrą [6]. Taip pat superkontinuumas MIR srityje generuotas ir ore – kaupinant 3,9 μm bangos ilgio spinduliuote susidariusios šviesos gijos spektras išplito nuo 250 nm iki 6,5 μm [6], o kito eksperimento metu, fokusuojant 1 mJ energijos, 25 fs trukmės bei 800 nm bangos ilgio impulsu pirmąją, antrąją bei trečiąją harmonikas ore susidariusi šviesos gija apėmė net 2 – 25 μm spektrą! [4] Kad ir kokie įspūdingi atrodytų šie pasiekimai, dujos nėra ideali terpė superkontinuumo generacijos eksperimentams – jų netiesinis lūžio rodiklis yra labai mažas, todėl reikia didelių energijų, kurias pasiekti gali ne visi šviesos šaltiniai. Negana to, fokusavimosi atstumai dujose yra labai dideli (metrų eilės), todėl apie patogią bei kompaktišką eksperimento schemą galima pamiršti.

2012 metais užregistruotas plačiausias iki tol sugeneruotas superkontinuumas kietoje netiesinėje terpėje – 85 fs trukmės bei 3,1 μm bangos ilgio impulsus fokusuojant į YAG kristalą, spektras išplito nuo 450 nm iki 4,5 μm [25]. Po metų MIR superkontinuumas sugeneruotas chalkogenidiniame stikle 150 fs trukmės ir 5,3 μm bangos ilgio impulsais, o spektras išplito nuo 2,5 μm iki daugiau nei 7,5 μm

[26]. Kitos grupės su ta pačia medžiaga atlikto eksperimento metu buvo fokusuojami 70 fs trukmės impulsai ir pademonstruotas dar didesnis spektro išplitimas – nuo 2,5 μm iki 11 μm [27]. 2017 metais atlikti palyginamieji eksperimentai generuojant superkontinuumą lydytame kvarce ir YAG bei LiF kristaluose [28]. Eksperimentų metu buvo naudojami 2,3 μm bangos ilgio, 100 fs trukmės bei 50 μJ impulsai. Lydyto kvarco atveju plačiausias užregistruotas superkontinuumas išplito nuo 310 nm iki 3,75 μm , YAG – nuo 350 nm iki 3,8 μm , o LiF – nuo 290 nm iki 4 μm . Vis dėlto labiausiai paplitusiose medžiagose, tokiose kaip lydytas kvarcas, safyras ar YAG kristalas, pralaidumas MIR srityje yra labai prastas – lydyto kvarco atveju jis smarkiai krenta jau nuo 3,5 μm , o safyras ir YAG kristalas stipriai sugeria ilgesnę nei 5,2 μm spinduliuotę. Ieškant alternatyvių medžiagų atlikti eksperimentai generuojant platų superkontinuumą MIR srityje fluoride [29], telurite [30, 31], lantanume [32]. Dėl daug didesnio už dielektrikų kubinio netiesiškumo bei gero pralaidumo IR srityje didelį potencialą netiesinėje optikoje įgyja puslaidininkiniai kristalai. Superkontinuumo generacijos eksperimentai atlikti galio arsenido (GaAs) [33-35], cinko sulfido (ZnS) [36], cinko selenido (ZnSe) [37, 38] kristaluose. Neseniai pademonstruoti skaitmeniniai modeliavimai parodė, jog šarminių metalų haliduose, pasižyminčiuose labai geru pralaidumu plačioje MIR srityje, galima sugeneruoti per kelias oktavas besitiesiantį superkontinuumą su dideliu plitimu į raudonąją pusę [39].

Taigi, tobulėti dar yra kur ir optimalių medžiagų paieškos tęsiasi. Šiame darbe MIR superkontinuumo generacija atlikta netiesinėje optikoje egzotinėmis laikomose medžiagose – mišriuose talio haliduose KRS–5 bei KRS–6, pasižyminčiuose labai geru pralaidumu infraraudonajai spinduliuotei bei dideliu kubiniu netiesiškumu.

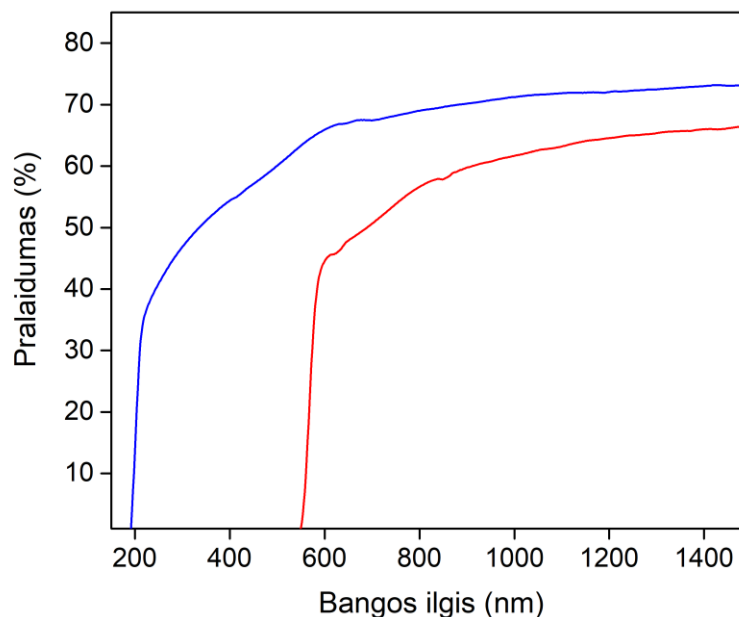
2. Darbo rezultatai

2.1. Medžiagos ir eksperimento detalės

Mišrūs talio halidai – talio bromojodidas (Tl(Br,I) – KRS-5) bei talio bromochloridas (Tl(Br,Cl) – KRS-6) – tai kubinės simetrijos dielektriniai kristalai, pasižymintys sąlyginai mažais draustinės energijos tarpais bei turintys labai platų infraraudonosios spinduliuotės pralaidumo ruožą (1 lentelė) [40]. Abiejų kristalų pralaidumas labai staigiai sumažėja regimojoje spektro srityje (15 pav.): KRS-5 – ties 550 nm, o KRS-6 – ties 400 nm.

Medžiaga	U_g , eV	Pralaidumas, μm	n_0	$n_2, \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ išmatuota	$n_2, \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ suskaičiuota teoriškai
KRS-5	2,5	0,58 – 42	2,386	9,5	9,48
KRS-6	3,25	0,42 – 27	2,194	4,7	3,6

1 lentelė. Mišrių talio halidų draustinės energijos tarpų pločiai, pralaidumas, tiesinis bei netiesinis lūžio rodikliai [40]



15 pav. Talio halidų KRS-5 (raudona) ir KRS-6 (mėlyna) pralaidumo kreivės regimajame ir artimajame infraraudonajame diapazone

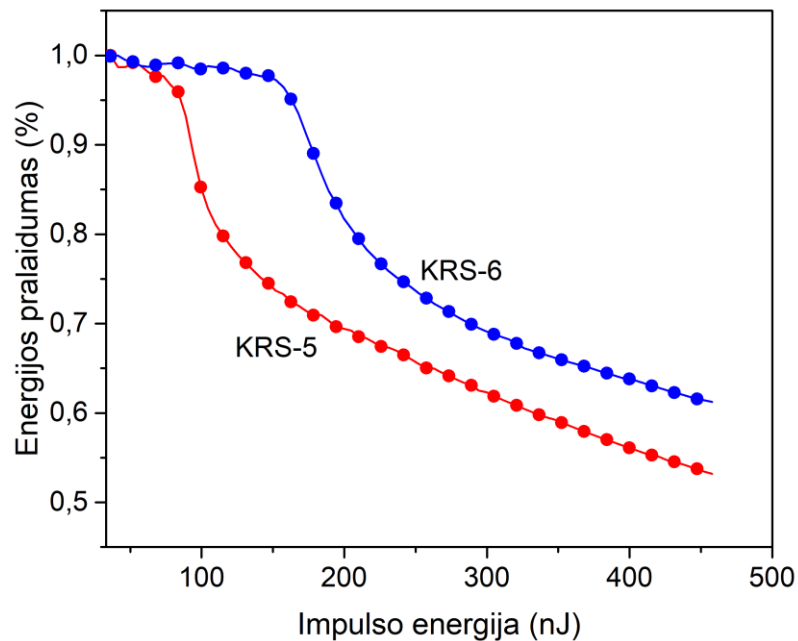
Mišrūs talio halidai randa pritaikymus MIR ir gama spindulių spektroskopijoje bei astronomijoje, tačiau netiesinėje optikoje jie yra laikomi egzotika – tyrimų su jais šioje srityje yra atlikta labai mažai ir jie dar nebuvo taikomi kaip netiesinės medžiagos.

Eksperimente naudoti KRS-5 ir KRS-6 kristalai, pagaminti Rusijos kompanijos Crystaltechno Ltd. Juose atitinkamai yra 58% talio jodido (TII) ir 60% talio chlorido (TICl). Eksperimentas atliktas titano safyro lazerinės sistemos (Spitfire-PRO, Newport-Spectra Physics) pagalba, kuria buvo kaupinamas komercinis BBO kristalą turintis optinis parametrinis stiprintuvas (Topas – Prime, Šviesos konversija); iš jo išeidavo 90 fs trukmės spinduliuotė, derinama 1,1 – 2,5 μm srityje. Spinduliuotė 3 – 4 μm srityje buvo gaunama atliekant iš parametrinio stiprintuvo išeinančių signalinės ir šalutinės bangų skirtuminę dažnio generaciją 1 mm storio KTA kristale, kurios metu gaunamos spinduliuotės trukmė buvo 60 fs. Spinduliuotė BaF₂ lęšiu ($f = +100$ mm) buvo fokusuojama į mišrių talio halidų kristalus, kurių ilgiai – 1,9 mm (KRS-5) ir 1,8 mm (KRS-6). Superkontinuumo spinduliuotė buvo matuojama skenuojančios prizmės spektrometru, turinčiu InAsSb detektorių, kurio efektyvios detekcijos sritis yra 0,8 – 5,8 μm . Šviesos gijų profiliai išmatuoti nukreipiant išeinančią spinduliuotę į piroelektrinę CCD kamerą (WinCamD, modelis FIR2-16-HR).

2.2. Netiesinio lūžio rodiklio nustatymas

Kadangi tiriamieji talio halidai netiesinėje optikoje yra naujos medžiagos, siekiant praplėsti žinias apie jų netiesines savybes buvo atlikti netiesinio lūžio rodiklio n_2 matavimai. Šie matavimai yra netiesioginiai ir remiasi netiesinio židinio radimu, kuris kolimuotam Gauso pluoštui yra aprašomas (17) išraiška.

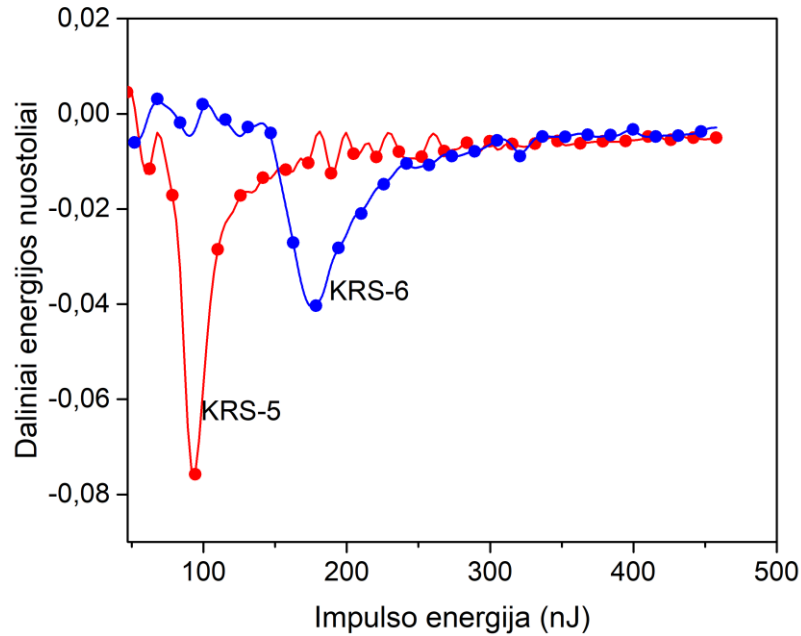
Siekiant surasti netiesinio židinio atstumą z_{sf} , buvo išmatuoti KRS-5 ir KRS-6 kristalų pralaidumai 3,1 μm bangos ilgiui (16 pav). Turint omenyje, jog 3,1 μm spinduliuotės fotono energija yra lygi 0,4 eV ir atsižvelgiant į 1 lentelėje pateiktas draustinių juostų energijos vertes, galima daryti išvadą, jog netiesiniai nuostoliai KRS-5 ir KRS-6 kristaluose atsiranda dėl atitinkamai 7 bei 9 eilės fotonų sugerties.



16 pav. Normuota kristalų KRS-5 (raudona) ir KRS-6 (mėlyna) pralaidumo priklausomybė nuo kritusio impulso energijos 3,1 μm bangos ilgiui

Netiesinio židinio atstumas rastas suskaičiavus dalinius energijos nuostolius dT/dE (17 pav). Kadangi energijos nuostoliai atsiranda dėl padidėjusio spinduliuotės intensyvumo dėka pluošto fokusavimosi ir šviesos gijų formavimosi, galima spręsti, jog ten, kur spinduliuotės intensyvumas didžiausias, bus netiesinis židinytis [41], vyks daugiafotonė sugertis bei atsiras dalinių energijos nuostolių minimumas, matomas 17 pav.

Kadangi turime dalinių nuostolių kitimo nuo energijos priklausomybę ir fiksuotą kristalų ilgį, impulso energijos vertės ties dalinių nuostolių minimumais atitinka tokias sąlygas, kuomet netiesinis židinytis yra lygus kristalų ilgiui, arba, kitaip tariant, netiesinis židinytis susidaro ant galinio kristalų paviršiaus.



17 pav. Kristalų KRS-5 (raudona) ir KRS-6 (mėlyna) dalinių nuostolių priklausomybė nuo kritusio impulso energijos 3,1 μm bangos ilgiui

Eksperimento metu naudotos lazerio spinduliuotės bangos ilgis $\lambda = 3,1 \mu\text{m}$, pluošto spindulys sąsmaukoje $\omega_0 = 40 \mu\text{m}$, impulsų trukmė $t_p = 60 \text{ fs}$. Turėdami šiuos parametrus bei žinodami KRS-5 ir KRS-6 kristalų lūžio rodiklius (2,386 ir 2,194 atitinkamai), iš (17) galime rasti kritinę galią P_{cr} :

$$P_{cr} = \frac{P}{\left(\sqrt{\left(\frac{0,367z_R}{z_{sf}} \right)^2 + 0,0219 + 0,852} \right)^2}. \quad (32)$$

Kritinė šviesos pluošto fokusavimosi galia KRS-5 kristale yra 0,63 MW, o KRS-6 – 1,4 MW. Žinodami P_{cr} iš (18) lygties randame netiesinį lūžio rodiklį:

$$n_2 = \frac{3,77\lambda^2}{8\pi n_0 P_{cr}}. \quad (33)$$

Taigi, eksperimento metu išmatuotas netiesinis lūžio rodiklis KRS-5 kristalui yra $9,5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$, o KRS-6 – $4,7 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$.

Netiesinis lūžio rodiklis taip pat suskaičiuotas ir teoriškai. Šiuo atveju į pagalbą buvo pasitelkta literatūroje [13, 14] aptariama netiesinio lūžio rodiklio išraiška (16). KRS-5 ir KRS-6 kristalams fono

energijos ir draustinės energijos tarpo santykis yra 0,16 ir 0,12 atitinkamai, o pagal 2 pav. G_2 vertė abejais atvejais – apie 0,015. Kadangi (16) lygtis yra išreiškiama *esu* vienetais, gauta netiesinio lūžio rodiklio vertė į SI sistemą gali būti konvertuota šio sąryšio pagalba [42]:

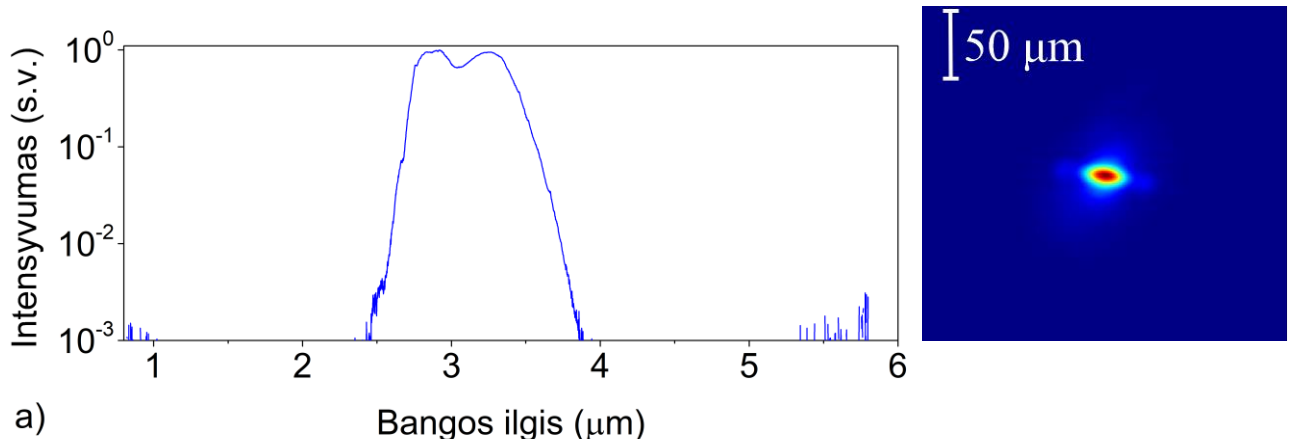
$$n_2(m^2/W) = \frac{40\pi}{c} \frac{n_2(esu)}{n_0} = 4,19 \times 10^{-7} \frac{n_2(esu)}{n_0}. \quad (34)$$

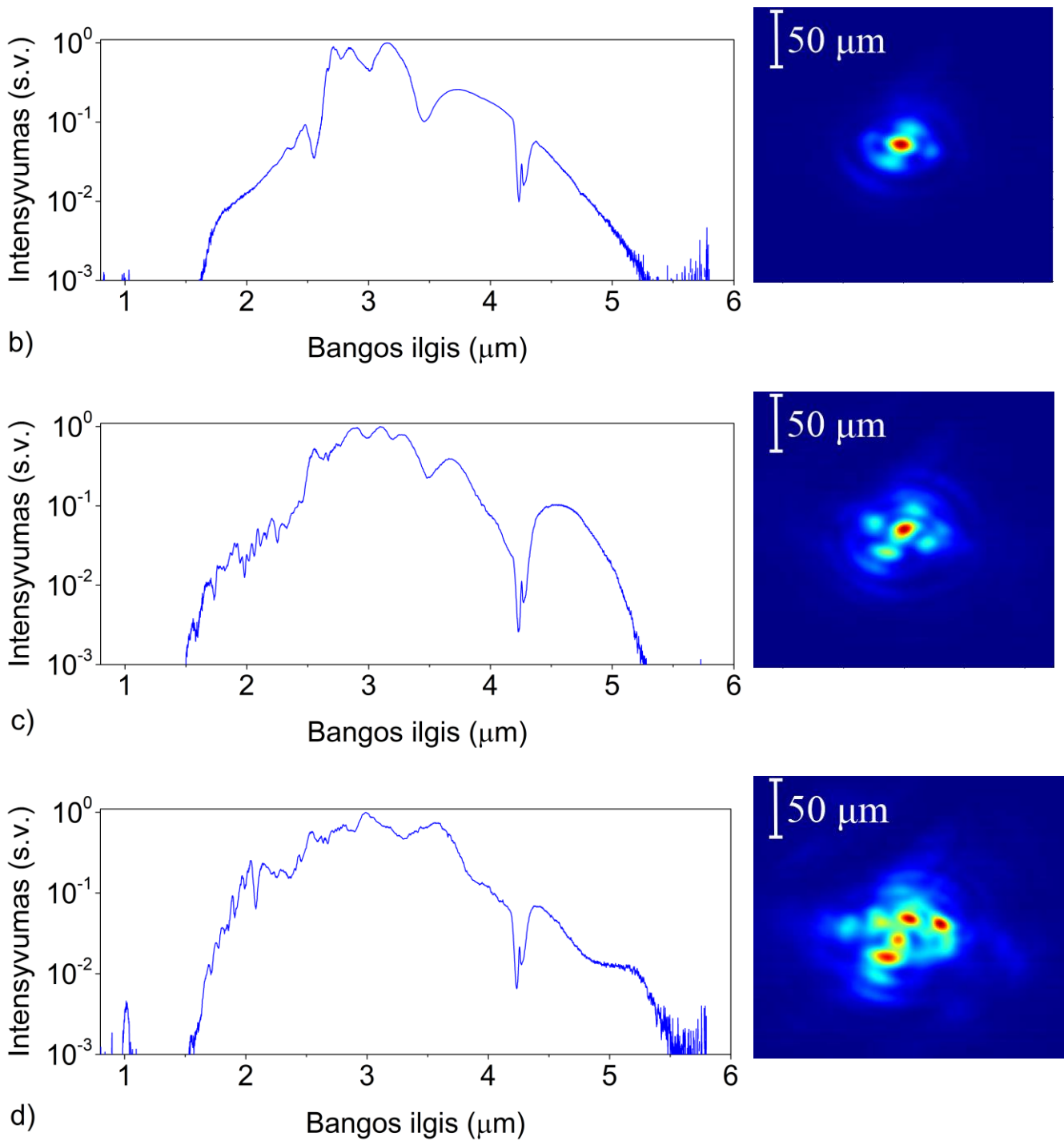
Taigi, teoriškai suskaičiuota netiesinio lūžio rodiklio vertė KRS-5 kristale yra $9,48 \times 10^{-15}$ cm^2/W , o KRS-6 – $3,6 \times 10^{-15}$ cm^2/W . Šios vertės beveik nesiskiria nuo išmatuotų eksperimentiškai.

2.3. Superkontinuumo generacija KRS-5 kristale

Gauti rezultatai pateikti 18 paveiksliuke. Dėl didelio kristalo netiesinio lūžio rodiklio šviesos pluošto spektro plitimas gali būti stebimas esant vos kelių šimtų nanodžaulių energijai.

18 pav. pavaizduoti superkontinuumo spektrai KRS-5 kristale esant įvairioms energijos vėrtėms, kartu pateikiami ir išeinančio pluošto intensyvumo profiliai. Superkontinuumo spektras esant 386 nJ energijai išplinta nuo 1,6 μm iki 5,25 μm , o profilyje aplink šviesos giją pradeda formotis simetriškos didesnio intensyvumo struktūros. Spektre ties 4,25 μm yra du įdubimai, atsirandantys dėl atmosferoje esančių CO_2 dujų sugerties. Esant 867 nJ energijai mėlynoji spektro sritis slenkasi iki 1,5 μm , raudonojoje pusėje atsiranda labai silpnos dažnių komponentės ties 5,5 – 5,8 μm , o intensyvumas šoninėse struktūrose didėja – dėl išorinių žiedų saviorganizacijos formuojasi antrinės šviesos gijos ir superkontinuumo spektras praranda glotnią formą. Matoma antrinių gijų struktūra yra siejama su fokusuojamo šviesos pluošto eliptiškumu [43].





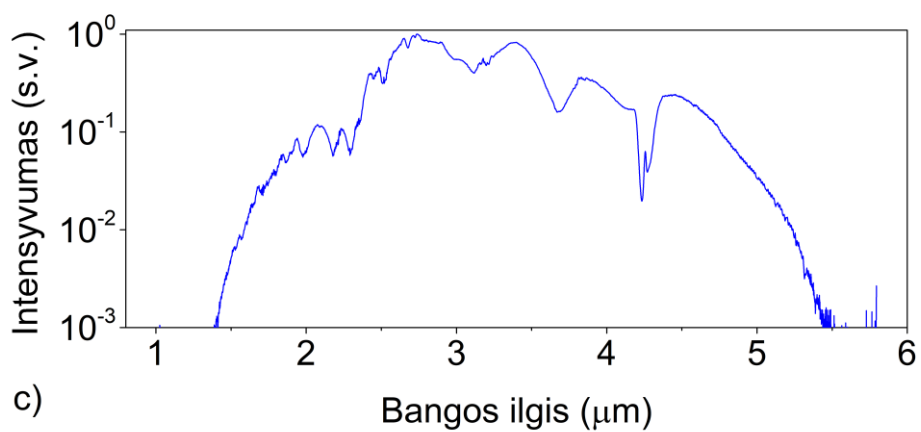
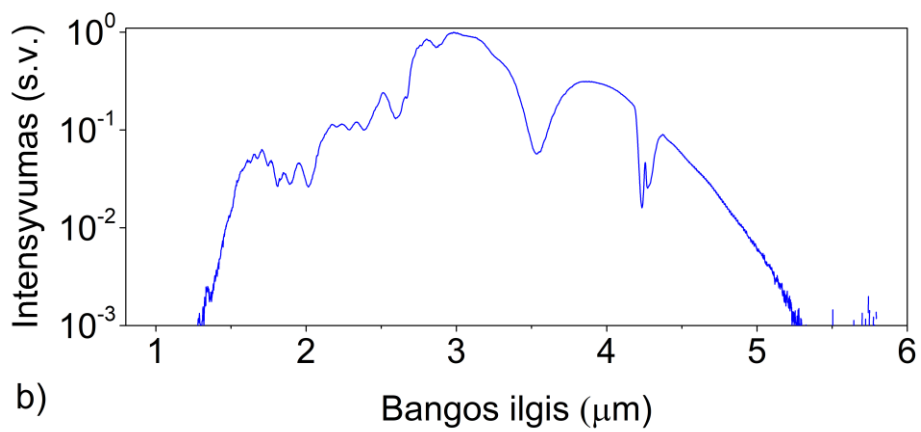
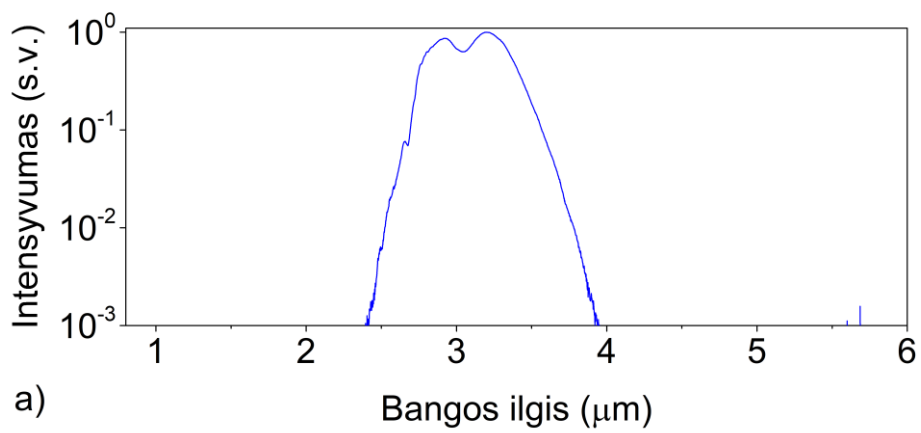
18 pav. Superkontinuum spektrai 1,9 mm storio KRS-5 kristale, kaupinant 60 fs trukmės ir 3,1 μm bangos ilgio impulsais esant skirtingoms impulso energijoms: a) 171 nJ, b) 386 nJ, c) 867 nJ, d) 1300 nJ. Kartu pridėti ir išeinančių šviesos gijų intensyvumo profiliai

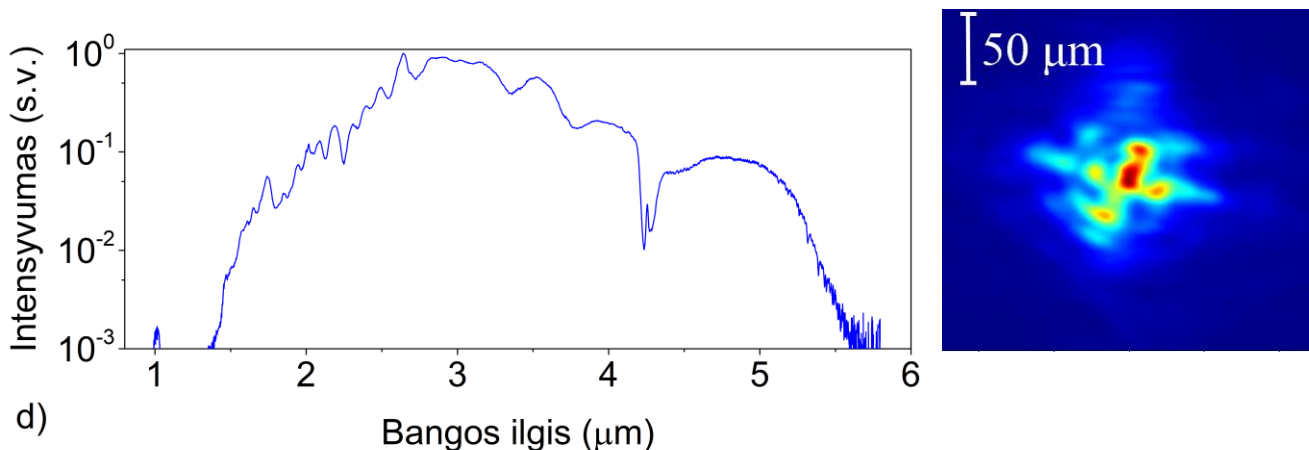
Energijai pasiekus 1,3 μJ , šviesos gijų pasiskirstymas tampa panašus į atsitiktinį. Keleto gijų sklaidimas praplečia superkontinuumo spektro raudonąją dalį iki 5,5 μm , o jeigu būtų atsižvelgiama į labai silpnas dažnio komponentes – ir iki 5,8 μm . Esant šiai ir didesnėms energijoms dėl šviesos gijų persifokusavimo [41] bei tarp atskirų gijų kuriamų spektrų susidarančių mušimų bendras superkontinuumo spektras patiria spektrinę moduliaciją. Taip pat ties 1,3 μJ energija užfiksuotas atskiras intensyvumo padidėjimas ties 1,03 μm bangos ilgiu – trečioji kaupinimo spinduliuotės harmonika.

2.4. Superkontinuumo generacija KRS-6 kristale

Labai panaši superkontinuumo spektro plitimo charakteristika stebima ir KRS-6 kristale. Dėl didelio kristalo netiesinio lūžio rodiklio šviesos pluošto spektro plitimas gali būti stebimas esant vos kelių šimtų nanodžaulių energijai.

19 pav. pavaizduoti superkontinuumo spektrai KRS-6 kristale esant įvairioms energijos vėrtėms, kartu pateikiami ir išeinančio pluošto intensyvumo profiliai. Dėl mažesnio netiesinio lūžio rodiklio spektro plitimas pasireiškė esant šiek tiek didesnėms impulso energijos vėrtėms, nei KRS-5 atveju. Vėlgi, ties 4,25 μm spektre matomi du įdubimai dėl atmosferos CO_2 dujų sugerties. Maksimalus spektro išplitimas tęsiasi nuo 1,35 μm iki 5,6 μm , o atsižvelgiant į labai silpnas dažnio komponentes – ir iki 5,8 μm . Taigi, KRS-6 kristale superkontinuumas į mėlynąją bangų pusę plito šiek tiek daugiau, negu KRS-5 atveju – taip yra dėl platesnio draustinės energijos tarpo ir jo sąlygojamos aukštesnės eilės daugiafotonės sugerties. Antrinių šviesos gijų struktūra susiformuoja ties 783 nJ energija, o toliau ją didinant, gijų pasiskirstymas pluošto profilyje vėl tampa panašus į atsitiktinį. Verta pastebėti, kad antrinių šviesos gijų susiformavimo indėlis į bendrą superkontinuumo spektrą yra mėlynosios pusės išplėtimas nuo 1,5 μm iki 1,35 μm , o raudonosios – nuo 5,25 μm iki 5,8 μm .





19 pav. Superkontinuumo spektrai 1,8 mm storio KRS-6 kristale, kaupinant 60 fs trukmės ir 3,1 μm bangos ilgio impulsais esant skirtingoms impulso energijoms: a) 232 nJ, b) 783 nJ, c) 1762 nJ, d) 2642 nJ. Kartu pridėti ir išeinančių šviesos gijų intensyvumo profiliai

3. Išvados

1. Eksperimentų metu buvo tirtos superkontinuumo generacijos MIR srityje galimybės bei dėsningumai netiesinėje optikoje egzotinėmis laikomose medžiagose – talio bromojodide KRS-5 bei talio bromochloride KRS-6, žadinant intensyviais 60 fs trukmės ir 3,1 μm bangos ilgio impulsais. Siekiant nustatyti medžiagų netiesines savybes išmatuotas bei teoriškai apskaičiuotas netiesinis lūžio rodiklis n_2 . Matavimų metu gautos n_2 vertės yra $9,5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ (KRS-5) bei $4,7 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ (KRS-6), o teoriškai apskaičiuotos – $9,48 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ (KRS-5) bei $3,6 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ (KRS-6). Taigi, eksperimento metu išmatuoti dydžiai yra labai arti teorinių verčių.
2. Superkontinuumo generacijos metu buvo stebėti vienagijis bei daugiagijis šviesos sklidimo režimai bei gauti superkontinuumo spektrai. KRS-5 kristale maksimalus šviesos spektro išplitimas užfiksuotas nuo 1,55 μm iki 5,8 μm, o KRS-6 – nuo 1,35 μm iki 5,8 μm; KRS-6 kristale dėl didesnio draustinės energijos tarpo bei aukštesnės daugiafotonės sugerties eilės spektras plito labiau. Esant mažesnėms impulso energijos vertėms kristaluose formavosi viena šviesos gija su periferiniais žiedais, o energiją didinant aplink centrinę giją iš pradžių atsirado simetriška, o vėliau chaotiška antrinių šviesos gijų struktūra.
3. Dėl didelių netiesinio lūžio rodiklio verčių bei gero pralaidumo MIR srityje talio halido kristalai turi geras perspektyvas būti naudojami superkontinuumo generacijos MIR srityje taikymuose –

galima tikėtis, jog naudojant ilgesnius spinduliuotės bangos ilgius superkontinuumo spektras plis dar labiau.

Santrauka

Karolis Gadeikis

Superkontinuumo generacija mišriuose talio haliduose KRS-5 ir KRS-6

Superkontinuumo generacija – reiškinys, kuomet trumpam šviesos impulsui (<10 ps) sklindant netiesine terpe jo spektras išplinta šimtus ar tūkstančius kartų. Superkontinuumo generacija iš pradžių tirta kietuosiuose kūnuose, skysčiuose, dujose, o vėliau ir šviesolaidžiuose. Tobulėjant femtosekundinių lazerių technologijoms bei gilėjant žinioms apie superkontinuumo reiškinį buvo sukurti femtosekundiniai optiniai parametriniai stiprintuvai – ši pažanga palengvino darbą tyrinėjant iki tol mažai pažintą MIR spektrinę sritį, kurioje yra daugumos organinių molekulių “pirštų atspaudai” – sugerties sritys, kurios kiekvienai molekulei yra skirtingos ir unikalios. Organinių molekulių atpažinimas bei tyrimai būtų daug lengvesni pasitelkiant plataus spektro MIR šaltinius.

Eksperimentų metu intensyvi 60 fs trukmės ir 3,1 μm bangos ilgio spinduliuotė buvo fokusuojama į du netiesinius kristalus – talio bromojodidą KRS-5 bei talio bromochloridą KRS-6 – juose generuojant superkontinuumą šviesos gijų pavidalu. KRS-5 kristale maksimalus šviesos spektro išplitimas užfiksuotas nuo 1,55 μm iki 5,8 μm, o KRS-6 – nuo 1,35 μm iki 5,8 μm. Dėl didelių netiesinio lūžio rodiklio verčių ($9,5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ KRS-5 ir $4,7 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ KRS-6) abiejuose kristaluose spektro plitimas prasidėjo ties kelių šimtų nanodžaulių impulso energijos vertėmis. Dėl mažesnio netiesinio lūžio rodiklio KRS-6 kristale spektras pradėjo plisti esant šiek tiek didesnei impulso energijai, negu KRS-5 atveju (232 nJ ir 171 nJ, atitinkamai). Esant 386 nJ energijai KRS-5 kristale ir 783 nJ energijai KRS-6 kristale aplink centrinę šviesos giją iš aplinkinių žiedų pradeda formotis simetriškos antrinių šviesos gijų struktūros, lemiančios didesnę superkontinuumo spektro išplitimą bei glotnaus spektro pavidalo suardymą. Toliau didinant impulso energijas kristaluose, struktūra iš simetriškos keičiasi į atsitiktinę, o dėl šviesos gijų persifokusavimo bei tarp atskirų gijų kuriamų spektrų susidarančių mušimų bendras superkontinuumo spektras patiria spektrinę moduliaciją.

Rezultatai rodo, kad talio bromojodido ir talio bromochlorido kristalai turi didelį potencialą superkontinuumo generacijos MIR srityje taikymuose dėl didelių netiesinio lūžio rodiklio verčių bei gero pralaidumo. Kadangi kristalų nulinės dispersijos bangos ilgiai yra tolimesnėje MIR srityje, negu buvo matuota šio eksperimento metu, galima tikėtis, jog kaupinant kristalus didesniais bangų ilgiais superkontinuumo spektras plis dar labiau.

Santrauka anglų kalba

Karolis Gadeikis

Supercontinuum generation in mixed thallium halides KRS-5 and KRS-6

Supercontinuum generation is a phenomenon, which occurs when ultrashort light pulse (<10 ps) travels through nonlinear media and its spectrum extends hundreds or thousands of times. At first, supercontinuum generation had been investigated in solids, liquids, gas and later – in optical fibers. As a result of technological femtosecond lasers advancement and deeper understanding of supercontinuum phenomenon, femtosecond optical parametric oscillators were created – such an invention facilitated the investigations of theretofore little known MIR spectral range, where “fingerprints” of many organic molecules are – unique and different absorption regions for each of those molecules. Their recognition and investigation would become much easier by using broadband MIR light sources.

During the experiment intensive 60 fs duration $3,1 \mu\text{m}$ wavelength light radiation had been focused in two nonlinear crystals – thallium brojiodide KRS-5 and thallium bromochloride KRS-6 – supercontinuum was generated in light filament regime. Maximum spectral broadening in KRS-5 has been registered from $1,55 \mu\text{m}$ to $5,8 \mu\text{m}$, in KRS-6 – from $1,35 \mu\text{m}$ to $5,8 \mu\text{m}$. Due to large nonlinear refraction indexes ($9,5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ for KRS-5 and $4,7 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ for KRS-6) in both of those crystals spectral broadening began at few hundred nanojoules of impulse energy. Because of lower nonlinear refraction index in KRS-6 spectral broadening began at slightly greater value of impulse energy than in KRS-5 (232 nJ and 171 nJ, respectively). At 368 nJ impulse energy in KRS-5 and 783 nJ at KRS-6, symmetric secondary light filaments emerge around central light filament, forming from surrounding rings – these secondary filaments determine broader supercontinuum spectrum and disrupts smooth spectral shape. By amplifying impulse energy in crystals, symmetric filament structure becomes random, also, due to filament refocusing and beatings between supercontinua spectra from different filaments, net supercontinuum spectrum undergoes spectral modulation.

Results show that thallium bromiodide and thallium bromochloride crystals have huge potential for supercontinuum generation in MIR range applications due to their large nonlinear refraction indexes and good transmittance. Since zero dispersion wavelengths of these crystals are deeper in the MIR zone, it is very likely that using longer wavelengths can lead to even larger supercontinuum spectrum broadening.

Šaltiniai

- [1] W. J. Jones and B. P. Stoicheff, Inverse Raman spectra: Induced absorption at optical frequencies, *Phys. Rev. Lett.* **13**, 657–659 (1964).
- [2] R. R. Alfano and S. L. Shapiro, Observation of self– phase modulation and small– scale filaments in crystals and glasses, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 592–594 (1970).
- [3] C. Lin, V. Nguyen, and W. French, Wideband near– I.R. continuum (0.7– 2.1 μm) generated in low– loss optical fibres, *Electron. Lett.* **14**, 822–823 (1978).
- [4] P. Domachuk, N.A. Wolchover, M. Cronin-Golomb, A. Wang, A.K. George, C.M.B. Cordeiro, J.C. Knight, and F.G. Omenetto, Over 4000 nm bandwidth of mid-IR supercontinuum generation in sub-centimeter segments of highly nonlinear tellurite PCFs, *Opt. Express* **16**, 7161–7168 (2008).
- [5] C.R. Petersen, U. Moller, I. Kubat, B. Zhou, S. Dupont, J. Ramsay, T. Benson, S. Sujecki, N. Abdel- Moneim, Z. Tang, D. Furniss, A. Seddon, and O. Bang, Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3 μm molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre, *Nature Photon.* **8**, 830–834 (2014).
- [6] D. Kartashov, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. Voronin, A. Zheltikov, M. Petrarca, P. Bejot, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and A. Baltuška, White light generation over three octaves by femtosecond filament at 3.9 μm in argon, *Opt. Lett.* **37**, 3456– 3458 (2012).
- [7] A.V. Mitrofanov, A.A. Voronin, S.I. Mitryukovskiy, D.A. Sidorov-Biryukov, A. Pugžlys, G. Andriukaitis, T. Flory, E.A. Stepanov, A.B. Fedotov, A. Baltuška, and A.M. Zheltikov, Mid-infrared-to-mid-ultraviolet supercontinuum enhanced by third-to-fifteenth odd harmonics, *Opt. Lett.* **40**, 2068–2071 (2015).
- [8] R.L. Fork, C.V. Shank, C. Hirlimann, R. Yen, and W.J. Tomlinson, Femtosecond white-light continuum pulses, *Opt. Lett.* **8**, 1–3 (1983).
- [9] K.R. Wilson and V.V. Yakovlev, Ultrafast rainbow: Tunable ultrashort pulses from a solid-state kilohertz system, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 444–448 (1997).
- [10] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd ed., Academic Press, San Diego (2008).
- [11] A. Dubietis, *Netiesinė optika*, Vilnius (2011).
- [12] R. W. Boyd, Order–of-magnitude estimates of the nonlinear optical susceptibility, *J. Mod. Opt.* **46**, 367– 378 (1999).

- [13] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, M. Sheik-Bahae, Infrared to Ultraviolet Measurements of Two-Photon Absorption and n_2 in Wide Bandgap Solids, *IEEE J. Quantum Electron.* **32**, 1324-1333 (1996).
- [14] M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, Dispersion of Bound Electronic Nonlinear Refraction in Solids, *IEEE J. Quantum Electron.* **27**, 1296-1309 1991.
- [15] www2.mpq.mpg.de/lpg/research/RelLasPlas/Rel-Las-Plas.html (lankyta 2018-05-23)
- [16] J. H. Marburger, Self-focusing: Theory, *Prog. Quantum Electron.* **4**, 35–110 (1975).
- [17] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. de J. Ramirez-Gongora, M. Kolesik, Practitioner's guide to laser pulse propagation models and simulation, *Eur. Phys. J. Special Topics* **199** (2011) 5–76.
- [18] R. R. Alfano, *The Supercontinuum Laser Source*, 2nd ed. Springer Science+Business Media, NY (2006).
- [19] A. Couairon, A. Mysyrowicz, Femtosecond filamentation in transparent media, *Phys. Rep.* **441**, 47-189 (2007).
- [20] B. Alonso (2012). *Spatiotemporal Characterization of Ultrashort Laser Pulses*, 10.13140/RG.2.2.29747.84005.
- [21] A. Dubietis, E. Gaižauskas, G. Tamošauskas, P. Di Trapani, Light Filaments without Self-Channelling, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 253903 (2004).
- [22] S. Uhlig, *Self-Organized Surface Structures with Ultrafast White-Light*, Dresden, 2015.
- [23] A. L. Gaeta, Catastrophic collapse of ultrashort pulses, *Physical Review Letters* **84**, 3582-3585 (2000).
- [24] www.kexue.com.cn/upload/blog/file/2009/8/2009814185831242431.PDF (lankyta 2018– 01– 18)
- [25] F. Silva, D.R. Austin, A. Thai, M. Baudisch, M. Hemmer, D. Faccio, A. Couairon, and J. Biegert, Multi-octave supercontinuum generation from mid-infrared filamentation in a bulk crystal, *Nat. Commun.* **3**, 807 (2012).
- [26] Y. Yu, X. Gai, T. Wang, P. Ma, R. Wang, Z. Yang, D.-Y. Choi, S. Madden, and B. Luther-Davies, Mid-infrared supercontinuum generation in chalcogenides, *Opt. Mater. Express* **3**, 1075–1086 (2013).
- [27] A.M. Stingel, H. Vanselous, and P.B. Petersen, Covering the vibrational spectrum with microjoule mid-infrared supercontinuum pulses in nonlinear optical applications, *J. Opt. Soc. Am. B* **34**, 1163–1168 (2017).

- [28] N. Garejev, G. Tamošauskas, and A. Dubietis, Comparative study of multioctave supercontinuum generation in fused silica, YAG, and LiF in the range of anomalous group velocity dispersion, *J. Opt. Soc. Am. B* **34**, 88–94 (2017).
- [29] M. Liao, W. Gao, T. Cheng, X. Xue, Z. Duan, D. Deng, H. Kawashima, T. Suzuki, Y. Ohishi, Five-octave-spanning supercontinuum generation in fluoride glass, *Appl. Phys. Express* **6**, 032503 (2013).
- [30] M. Liao, W. Gao, T. Cheng, Z. Duan, X. Xue, H. Kawashima, T. Suzuki, Y. Ohishi, Ultrabroad supercontinuum generation through filamentation in tellurite glass, *Laser Phys. Lett.* **10**, 036002 (2013).
- [31] P. Bejot, F. Billard, C. Peureux, T. Diard, J. Picot-Clemente, C. Strutyński, P. Mathey, O. Mouawad, O. Faucher, K. Nagasaka, Y. Ohishi, F. Smektala, Filamentation-induced spectral broadening and pulse shortening of infrared pulses in Tellurite glass, *Opt. Commun.* **380**, 245–249 (2016).
- [32] Y. Yang, M. Liao, X. Li, W. Bi, Y. Ohishi, T. Cheng, Y. Fang, G. Zhao, W. Gao, Filamentation and supercontinuum generation in lanthanum glass, *J. Appl. Phys.* **121**, 023107 (2017).
- [33] S. Ashihara, Y. Kawahara, Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in GaAs, *Opt. Lett.* **34**, 3839–3841 (2009).
- [34] A. A. Lanin, A. A. Voronin, E. A. Stepanov, A. B. Fedotov, A. M. Zheltikov, Frequency-tunable sub-two-cycle 60-MW-peak-power freespace waveforms in the mid-infrared, *Opt. Lett.* **39**, 6430–6433 (2014).
- [35] A. A. Lanin, A. A. Voronin, E. A. Stepanov, A. B. Fedotov, A. M. Zheltikov, Multioctave, 3 - 18 μm sub-two-cycle supercontinua from self-compressing, self-focusing soliton transients in a solid, *Opt. Lett.* **40**, 974–977 (2015).
- [36] H. Liang, P. Krogen, R. Grynko, O. Novak, C.-L. Chang, G. J. Stein, D. Weerawarne, B. Shim, F. X. Kartner, K.-H. Hong, Three-octavespanning supercontinuum generation and sub-two-cycle self-compression of mid-infrared filaments in dielectrics, *Opt. Lett.* **40**, 1069-1072 (2015).
- [37] O. Mouawad, P. B'ejot, F. Billard, P. Mathey, B. Kibler, F. Desevedavy, G. Gadret, J.-C. Jules, O. Faucher, F. Smektala, Filament-induced visible-to-mid-IR supercontinuum in a ZnSe crystal: Towards multioctave supercontinuum absorption spectroscopy, *Opt. Mater.* **60**, 355–358 (2016).
- [38] R. Suminas, G. Tamosauskas, G. Valiulis, V. Jukna, A. Couairon, A. Dubietis, Multi-octave spanning nonlinear interactions induced by femtosecond filamentation in polycrystalline ZnSe, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 241106 (2017).

- [39] S. A. Frolov, V. I. Trunov, V. E. Leshchenko, E. V. Pestryakov, Multioctave supercontinuum generation with IR radiation filamentation in transparent solid-state media, *Appl. Phys. B* **122**, 124 (2016).
- [40] A. Marcinkevičiūtė, G. Tamošauskas, A. Dubietis, Supercontinuum generation in mixed thallos halides KRS-5 and KRS-6, *Opt. Mater.* **78**, 339-344 (2018).
- [41] A. Jarnac, G. Tamošauskas, D. Majus, A. Houard, A. Mysyrowicz, A. Couairon, A. Dubietis, Whole life cycle of femtosecond ultraviolet filaments in water, *Phys. Rev. A* **89**, 033809 (2014).
- [42] www.rp-photonics.com/nonlinear_index.html (lankyta 2018–05–23)
- [43] A. Dubietis, G. Tamošauskas, G. Fibich, B. Ilan, Multiple filamentation induced by input-beam ellipticity, *Opt. Lett.* **29**, 1126–1128 (2004).