

Vilniaus universitetas
Fizikos fakultetas
Lazerinių tyrimų centras

Mykolas Bakanauskas

**AUKŠTESNIŲJŲ OPTINIŲ HARMONIKŲ GENERACIJA ORE FEMTOSEKUNDINIAIS
LAZERIO IMPULSAIS**

MAGISTRANTŪROS STUDIJŲ BAIGIAMASIS DARBAS

Lazerinės fizikos ir optinių technologijų studijų programa

Studentas

Mykolas Bakanauskas

Leista ginti

2026-05-22

Darbo vadovas

Dr. Virgilijus Vaičaitis

Lazerinių tyrimų centro direktorė

Dr. Dalia Kaškelytė

Vilnius 2026

Turinys

Įvadas	3
1. Lazerio bangos ilgio keitimas optinių harmonikų generavimo metu	5
1.1. Optinių harmonikų generacija netiesinėse terpėse	5
1.2. Trečios ir ketvirtos harmonikų generavimas naudojant aukštesnių eilių dažnių maišymą	7
1.3. Optimalaus dviejų pluoštų sukirtimo kampo skaičiavimas	10
2. Ketvirtos Ti:Safyro lazerio harmonikos generavimas ore naudojant du pluoštus	14
2.1. Dviejų pluoštų eksperimento schema ir matavimų metodika	14
2.2. Ketvirtos harmonikos signalo priklausomybių nuo žadinimo impulsų parametrų matavimų rezultatai	17
Išvados	26
Literatūros sąrašas	27
Summary	30
Santrauka	31

Įvadas

Ultratrumpųjų impulsų lazeriai ir netiesinė optika šiandien yra viena sparčiausiai besivystančių šiuolaikinės fotonikos sričių. Didelę reikšmę vis dar turi femtosekundiniai Ti:Safyro lazeriai, leidžiantys generuoti itin didelio intensyvumo trumpus impulsus, kurių veikimo metu medžiagoje pasireiškia aukštesnių eilių netiesiniai reiškiniai. Vienas svarbiausių tokių reiškinių yra optinių harmonikų generacija – procesas, kurio metu iš pradinės lazerio spinduliuotės gaunama trumpesnio bangos ilgio šviesa. Šis metodas plačiai naudojamas siekiant išplėsti lazerinės spinduliuotės spektrinę sritį į ultravioletinį bei vakuuminį ultravioletinį diapazoną, kuriame tiesioginių lazerinių šaltinių yra nedaug arba jų parametrai yra riboti. Ultratrumpųjų impulsų (ypač trumpesnių nei 100 fs) ultravioletinė spinduliuotė yra svarbi daugelyje mokslo ir technologijų sričių – laikinės skyros spektroskopijoje, medžiagų diagnostikoje, fotochemijoje, biologinių objektų tyrimuose bei aukštos erdvinės skyros litografijoje.

Dažniausiai optinių harmonikų generacijai naudojami netiesiniai kristalai, tačiau jų taikymą trumpųjų ultravioletinių bangų srityje riboja medžiagų sugertis, fazinio sinchronizmo sąlygų sudėtingumas bei impulsų laikinis išsiskyrimas. Dėl šių priežasčių vis didesnis dėmesys skiriamas alternatyvai – harmonikų generacijai dujinėse terpėse. Fokusuojant didelio intensyvumo femtosekundinius impulsus dujose gali susidaryti šviesos filamentai – dinamiškai stabilūs siauri šviesos kanalai, kuriuose dėl Kero savifokusacijos, plazmos defokusacijos ir kitų netiesinių reiškinių palaikomas labai didelis intensyvumas. Tokiose sąlygose tampa įmanoma efektyvi aukštesniųjų harmonikų generacija net ir terpėse, kuriose įprastai fazinio sinchronizmo sąlygos nėra tenkinamos¹. Be to, naudojant dujinę terpę galima generuoti itin trumpus ultravioletinius impulsus, kurių trukmė siekia vos keliolika femtosekundžių².

Pastaraisiais metais daug dėmesio skiriama nekoliniariems dažnių maišymo procesams, kai du lazerio pluoštai sukertami nedideliu kampu. Tokia geometrija leidžia pagerinti fazinio sinchronizmo sąlygas bei padidinti harmonikų generacijos efektyvumą^{3–6}. Ypač svarbūs tampa aukštesnių eilių netiesiniai procesai, vykstantys per penktosios eilės optinį jautrį $\chi^{(5)}$, kai harmonikos generuojamos šešiabangio dažnių maišymo metu⁷. Moksliniuose straipsniuose parodyta, kad tokiu būdu galima reikšmingai sustiprinti trečiosios harmonikos generaciją ore, o taip pat ir generuoti ketvirtąją Ti:Safyro lazerio harmoniką ultravioletinėje srityje ties ~200 nm bangos ilgiu^{8,9}. Tačiau ketvirtosios harmonikos generacijos mechanizmai, bei jos priklausomybė nuo žadinimo impulsų parametrų vis dar nėra pilnai ištirta. Dėl šios priežasties aktualūs tampa eksperimentiniai tyrimai, leidžiantys geriau suprasti aukštesnių harmonikų generacijos procesus ore ir įvertinti galimybes efektyviai generuoti trumpabangę ultravioletinę spinduliuotę naudojant femtosekundinius lazerius.

Šio **darbo tikslas** yra ištirti ore generuojamos ketvirtosios femtosekundinio Ti:Safyro lazerio harmonikos priklausomybes nuo žadinimo spinduliuotės parametrų, tam naudojant dviejų pluoštų ketvirtos harmonikos generacijos schemą, kai pirmos ir antros harmonikos pluoštai yra sukertami ore nedideliu kampu.

Darbo uždaviniai buvo:

1. Apskaičiuoti pirmos ir antros harmonikų pluoštų sukirtimo kampus optimaliai faziškai sinchronizuotos ketvirtos optinės harmonikos generacijai.
2. Surinkti ir suderinti dviejų pluoštų schemą ketvirtos harmonikos generavimui ore.
3. Ištirti ketvirtos harmonikos parametrų (šviesos intensyvumo, spektrinių savybių) priklausomybes nuo:
 - pirmos ir antros harmonikos energijų ir jų santykio;
 - pirmos ir antros harmonikų poliarizacinių savybių
 - vėlinimo ir fazių skirtumo tarp pirmos ir antros harmonikų impulsų;

1. Lazerio bangos ilgio keitimas optinių harmonikų generavimo metu

Reikia iš karto paminėti, kad šis darbas yra tęsinys prieš tai daryto mokslo tiriamojo darbo¹⁰, kuriame ketvirta harmonika buvo generuojama naudojant paprastesnę (vieno pluošto) schemą, todėl teorinė darbo dalis ir straipsnių apžvalga bus didžiąja dalimi paimta iš jo.

Taigi, vienas iš efektyviausių ir dažniausiai naudojamų būdų gauti lazerinę spinduliuotę spektrinėse srityse, kuriose nėra tiesioginių lazerinių šaltinių, yra optinių harmonikų generacija. Šis procesas gali vykti tiek kietose medžiagose (įprastai netiesiniuose kristaluose), tiek dujose (dažnai ore). Kristalai yra dažniausiai naudojami regimojo spektro bei artimojo ultravioleto srityje, tačiau jų efektyvumas mažėja pereinant prie trumpesnių bangos ilgio ultravioletinių bangų (mažiau 200 nm) dėl stiprios sugerties ir nebetenkinamų fazinio sinchronizmo sąlygų. Viena iš galimų alternatyvų kristalams yra dujinė terpė, kurioje galima pakankamai efektyviai užtikrinti fazinį sinchronizmą harmonikų generacijai UV srityje. Toliau yra pateikiama teorinė dalis bei straipsnių šia tema apžvalga.

1.1. Optinių harmonikų generacija netiesinėse terpėse

Vienas paprasčiausių netiesinių procesų yra antros harmonikos generacija (AHG), kurios metu gaunama dvigubo dažnio spinduliuotė. Tai yra vienas iš efektyviausių būdų keisti lazerio bangos ilgį, plačiai naudojamas ultratrumpųjų impulsų lazeriams. Medžiagos poliarizuotumo priklausomybė nuo elektrinio lauko stiprio aprašoma šia išraiška:

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

čia ϵ_0 yra vakuumo dielektrinė skvarba, $\chi^{(1)}$ yra tiesinis optinis jautris, $\chi^{(2)}$ antros eilės netiesinis optinis jautris, kuris yra atsakingas už antros harmonikos generaciją, $\chi^{(3)}$ trečios eilės netiesinis optinis jautris ir t.t. Būtina sąlyga kristalams, kad galėtų vykti antros harmonikos generacija yra tai, kad jie turi būti necentrosimetriniai (turėtų dvejetainį simetriją). Keletas tokių kristalų pavyzdžių yra beta bario boratas (BBO), ličio triobatas (LBO), kalio titanilio fosfatas (KTP). Šiam procesui taip pat yra būtinas didelis elektrinio lauko stipris, nes antros eilės netiesinis jautris yra santykinai mažas, jo vertė yra 10^{-12} m/V eilės. Kristalą veikiant stipriam elektriniam laukui, kristale indukuojama poliarizacija, kuri osciluoja dvigubu dažniu lyginant su kaupinimo banga, todėl generuojama antroji harmonika. Kvantiniu požiūriu šis procesas gali būti interpretuojamas kaip dviejų ω dažnio fotonų sugertis ir vieno 2ω dažnio fotono emisija per virtualius lygmenis, esančius medžiagos draustinės juostos tarpo viduje. Efektyviai antrosios harmonikos generacijai reikia tenkinti energijos tvermės dėsni (2 formulė) ir judesio kiekio tvermės dėsni (3 formulė):

$$\hbar\omega_1 + \hbar\omega_1 = \hbar\omega_2, \quad (2)$$

$$\hbar k_1 + \hbar k_1 = \hbar k_2, \quad (3)$$

čia $\hbar$ yra redukuota Planko konstanta, o k_1 ir k_2 yra banginiai vektoriai atitinkamai kaupinimo ir antrosios harmonikos bangų. Antroji sąlyga dar vadinama fazinio sinchronizmo sąlyga. Iš jos išplaukia, kad fundamentinės ir generuojamos harmonikos faziniai greičiai terpėje turi sutapti. Tik tokiu atveju visose kristalo vietose generuojamos antrosios harmonikos bangos interferuoja konstruktyviai ir harmonikos intensyvumas didėja visame kristalo tūryje. Fazinis sinchronizmas dažniausiai pasiekiamas išnaudojant kristalų dvejetainiškumą. Tam kaupinimo spinduliuotė turi sklisti tam tikru kampu θ kristalo optinės ašies atžvilgiu. Šis kampas vadinamas fazinio sinchronizmo kampu ir priklauso tiek nuo naudojamo bangos ilgio, tiek nuo pačios medžiagos dispersinių savybių. Pačių netiesinių kristalų yra daug ir įvairių, be prieš tai minėtų KTP, BBO ir LBO dar yra ir KTA, GaSe, LiNbO₃, BiBO ir kt. Taip pat yra ir periodiškai poliuoti kristalai PPLN, PPKTP, kuriuose fazinis sinchronizmas pasiekiamas kvazifazinio sinchronizmo būdu, periodiškai keičiant kristalo netiesiškumo ženklo kryptį. Praktikoje kristalas parenkamas atsižvelgiant į jo skaidrumo sritį (jis turi būti skaidrus visiems dažniams, kurie naudojami ir gaunami netiesinių reiškinių metu), netiesiškumo koeficientą, optinio pažeidimo slenkstį, šilumines savybes bei fazinio sinchronizmo realizavimo galimybes. Vienas plačiausiai naudojamų netiesinių kristalų yra BBO kristalas, pasižymintis aukštu optinio pažeidimo slenksčiu, plačia skaidrumo sritimi ir palyginti dideliu netiesiškumo koeficientu. Dėl šių savybių jis dažnai naudojamas ultratrumpųjų impulsų lazerių harmonikų generacijai, o taip pat ir šio darbo eksperimentinėje dalyje.

Trečios eilės netiesiniai reiškiniai, susiję su $\chi^{(3)}$, gali vykti praktiškai visose terpėse – kietuose kūnuose, skysčiuose, dujose bei plazmoje. Vienas svarbiausių tokių reiškinių yra trečiosios harmonikos generacija (THG), kurios metu trys fundamentinio dažnio fotonai sąveikauja ir sukuriamas vienas trigubo dažnio fotonas. Kaip ir AHG atveju, procesas vyksta per virtualius energijos lygmenis ir turi būti tenkinamos energijos tvermės bei fazinio sinchronizmo sąlygos. Trečios eilės netiesinis jautris yra gerokai mažesnis už antros eilės jautrį – jo vertė paprastai siekia apie $10^{-24} \text{ m}^2/\text{V}^2$, todėl THG stebėti reikalingi itin dideli spinduliuotės intensyvumai. Dėl šios priežasties trečiosios harmonikos generacija dažniausiai realizuojama fokusuojant ultratrumpus lazerio impulsus. Be to, efektyvų procesą riboja terpės dispersija. Pavyzdžiui, ore normaliomis sąlygomis fazinio sinchronizmo pasiekti praktiškai neįmanoma, nes fundamentinės ir trečiosios harmonikos bangų faziniai greičiai nesutampa. Tokiu atveju koherentinis ilgis – atstumas, per kurį išlaikomas pastovus fazių skirtumas tarp sąveikaujančių bangų ir vyksta konstruktyvi interferencija – tesiekia kelis milimetrus. Viršijus šį atstumą, generuojamos harmonikos pradeda interferuoti destruktoriai, todėl bendras trečiosios harmonikos intensyvumas nebedidėja.

1.2. Trečios ir ketvirtos harmonikos generavimas naudojant aukštesnių eilių dažnių maišymą

Iš tiesų, yra būdas pakankamai efektyviai generuoti trečiąją harmoniką ore (arba inertinėse dujose). Tam reikia fokusuoti didelio intensyvumo femtosekundinius lazerio impulsus suformuojant plazmos filamentą^{1,2}. Tokiu būdu generuojama trečia harmonika gali išlaikyti didelį smailinį intensyvumą bei energiją per visą filamento ilgį, kuris dažnai kelis ar keliolika kartų viršija koherentinį ilgį. Dėl to harmonikų generacija tampa gerokai efektyvesnė nei įprasto fokusavimo sąlygomis. Filamento susidarymą lemia keli tarpusavyje konkuruojantys netiesiniai procesai. Pirmiausia, dėl netolygaus lazerio pluošto erdvinio intensyvumo pasiskirstymo ir Kero efekto terpės lūžio rodiklis tampa priklausomas nuo intensyvumo. Didžiausio intensyvumo srityje lūžio rodiklis padidėja, todėl pluoštas pradeda savaime fokusuotis. Šis procesas dar labiau didina intensyvumą ir dar labiau verčia pluoštą fokusuotis. Tačiau savifokusaciją stabilizuoja kiti netiesiniai mechanizmai – daugiafotoninė jonizacija ir susidariusios mažo tankio plazmos sukeltas pluošto defokusavimas. Papildomą įtaką taip pat turi aukštesnių eilių netiesinio lūžio rodiklio nariai¹¹. Dėl šių konkuruojančių reiškinių susidaro dinamiškai stabilus siauras šviesos kanalas – filamentas. Filamento formavimosi dinamika yra sudėtinga, todėl jai paaiškinti yra pasiūlyta keletas teorinių modelių: judančio fokuso¹² (angl. „moving focus“), savikanalizacijos^{13–15} (angl. „self-channeling“) bei erdvinio atsistatymo¹⁶ (angl. „spatial replenishment“). Filamentuose smailinis intensyvumas dažniausiai siekia 10^{13} W/cm^2 ¹⁷, kas jau yra pakankama efektyviai aukštesnių harmonikų generacijai bei kitiems stipraus lauko netiesiniams reiškiniams stebėti.

Trečią harmoniką galima generuoti ir netiesiniuose kristaluose, tačiau tokį metodą apriboja fazinio sinchronizmo juostos plotis bei laikinis išsiskyrimas (angl. „temporal walk-off“) tarp fundamentinės ir generuojamos harmonikos impulsų. Dėl šių priežasčių tampa sudėtinga išlaikyti labai trumpų ultravioletinių impulsų trukmę. Panaudojant BBO kristalus galima generuoti maždaug 180 fs trukmės UV impulsus¹⁸, tačiau šis metodas nėra tinkamas itin trumpiems, mažesniems nei 20 fs impulsams gauti. Eksimeriniai lazeriai taip pat leidžia generuoti ultravioletinę spinduliuotę, tačiau jų spektrinis plotis dažniausiai riboja impulsus iki didesnių nei 100 fs trukmių^{19–21}. Būtent tokiais atvejais dujinė terpė tampa pranašesnė už kristalus. Fokusavimas ore leidžia tiesiogiai generuoti itin trumpus ultravioletinius impulsus – pavyzdžiui, fokusuojant 22 fs Ti:Safyro lazerio impulsus ore galima gauti apie 16 fs trukmės 266 nm bangos ilgio impulsus². Tokios trečiosios harmonikos generacijos efektyvumas gali siekti apie 0,1 %, naudojant maždaug 1 mJ energijos fundamentinius impulsus ir suformuojant apie 1 cm ilgio filamentą. Vietoj oro naudojant argono dujas, dėl didesnio netiesiškumo ir mažesnių nuostolių galima pasiekti maždaug dvigubai didesnę konversijos efektyvumą. Esant 1 kHz impulsų pasikartojimo dažniui, tokiu būdu buvo gauta apie 1 mW vidutinė UV spinduliuotė

galia. Sugeneruotų ultravioletinių impulsų trukmė buvo matuojama savidifraguojančiu dažninės skyros metodu („self-diffraction frequency resolved optical gating“, SD-FROG), kuris leidžia tiksliai charakterizuoti ultratrumpus impulsus tiek laiko, tiek dažninėje srityje.

Tam tikromis sąlygomis aukštesnių eilių netiesinio medžiagos poliarizuotumo nariai gali tapti palyginami ar net didesni negu žemesnieji nariai, naudojami didelio intensyvumo femtosekundinius lazerio impulsai^{22–24}. Tokiu režimu netiesinė sąveika gali pasireikšti sudėtingais dažnių maišymo procesais. Eksperimentais parodyta, kad kūgio formos trečiosios harmonikos emisija, generuojama aštriai fokusuojant femtosekundinius impulsus natrio garuose, gali būti aiškinama kaip nekolinearaus šešių bangų maišymo rezultatas⁷. Vienas iš būdų sustiprinti tokio tipo sąveiką yra panaudojant du nedideliu kampu susikertančius lazerio pluoštus, kas gali reikšmingai pagerinti trečiosios harmonikos efektyvumą^{3–6}. Šiame straipsnyje²⁵ eksperimentas atliekamas sukertant du pluoštus ≈ 10 mrad kampu, o stebėtas procesas aprašomas tokia fotonų kombinacija:

$$3\omega = \omega + \omega + \omega + \omega - \omega. \quad (4)$$

Ši išraiška parodo, kad vienas trečios harmonikos fotonas gaunamas dalyvaujant penkiems pirmos harmonikos fotonams, iš kurių vienas yra su minuso ženklu, kas atitinka penktos eilės netiesinį procesą susijusį su $\chi^{(5)}$ netiesiškumu. Eksperimentiškai parodyta, kad egzistuoja dvi pagrindinės proceso realizacijos: pirmoji yra kai susikertantys pluoštai turi lygiagrečias (per $\chi^{(5)}_{xxxxxx} = \chi^{(5)}_{yyyyyy}$ penktosios eilės netiesinio jautrio tenzoriaus komponentą) arba statmenas poliarizacijas (per $\chi^{(5)}_{yyyyyx} = \chi^{(5)}_{yxxxxx}$ komponentą). Eksperimente femtosekundinio Ti:Safyro lazerio pluoštas buvo padalintas į dvi apylyges dalis ir fokusuotas ilgo židinio nuotolio lęšiu (100 cm) taip, kad susikirstų filamentų priekinės dalys tiek erdvėje, tiek laike. Tolimajame lauke ant ekrano buvo stebimi du ryškūs trečios harmonikos spinduliai, sklindantys simetriškai didesniais kampais nei kaupinimo spinduliuotė. Svarbus rezultatas buvo tas, kad šie du THG pluoštai pasižymėjo ortogonaliomis poliarizacijomis, kas patvirtino teorinį nekolinearaus šešiabangio dažnių maišymo modelį. Keičiant sukirtimo kampą, buvo gauta kampinė priklausomybė su aiškiais maksimumais – pagrindinis ties ~ 13 mrad ir mažesnis ties ~ 30 mrad, kas atitiko skaitinius modeliavimus. Taip pat nustatyta, kad THG signalas gali būti generuojamas net ir esant mažoms kaupinimo energijoms, kai filamentas dar pilnai nesusiformuoja. Atskirų trečios harmonikos pluoštų intensyvumo analizė parodė skirtingas priklausomybes: vieno pluošto intensyvumas kito tiesiškai nuo žadinimo intensyvumo (vienas fotonas iš pirmo pluošto, 4 formulėje su minuso ženklu), o kitas – kaip ketvirto laipsnio funkcija (keturi fotonai iš antro pluošto). Tai iš esmės patvirtino faktą, kad trečia harmonika generuojama šešiabangio dažnių maišymo metu. Dar vienas svarbus aspektas yra efektyvumo padidėjimas: naudojant 2 mJ vieno pluošto kaupinimą, buvo gaunamos kelių nJ THG impulsų energijos, o dviejų pluoštų geometrijoje – iki ~ 200 nJ, t. y. maždaug dviem eilėmis didesnis efektyvumas. Papildomas šio metodo privalumas yra erdvinis

atskyrimas: THG spinduliai generuojami skirtingomis kryptimis nei fundamentinė spinduliuotė, todėl UV filtravimas tampa daug paprastesnis. Tai ypač svarbu UV srityje, kur optinių filtrų pralaidumas ir sugertis dažnai riboja signalą. Kitame straipsnyje²⁶ parodyta, kad trečios harmonikos impulso energija didėja nuo kaupinimo energijos penktuoju laipsniu, nes trečios harmonikos fotonui gauti naudojami iš viso penki pirmos harmonikos fotonai. Čia taip pat pademonstruota, kad keičiant santykį tarp dviejų kaupinimo pluoštų energijų, galima valdyti, į kurį iš THG kanalų bus nukreipta didžioji energijos dalis: esant simetriškam santykiui 1:1, abu kanalai yra panašūs, tačiau nesubalansavus intensyvumų vienas kanalas slopinamas, o kitas sustiprinamas. Tai efektyviai leidžia didžiąją dalį galios sukonzentruoti į vieną iš gaunamų trečios harmonikos pluoštų. Taip pat pastebėta, kad didėjant kaupinimo energijai trečiosios harmonikos spektro centrinis bangos ilgis šiek tiek pasislenka į raudonąją pusę (per 1 – 2 nm), tačiau spektro plotis išlika nepakitęs. Šie rezultatai labai skiriasi nuo trečios harmonikos generuojamos naudojant tik vieną pluoštą, kur gaunamos sudėtingos priklausomybės, todėl dviejų pluoštų metodas yra pranašesnis.

Ne tik trečiąją, bet ir ketvirtąją Ti:Safyro lazerio harmoniką ($\lambda \approx 200$ nm) taip pat galima generuoti ore panaudojant dažnių maišymą per aukštesnių eilių nelyginius netiesiškumus (specifiškai $\chi^{(3)}$ ir $\chi^{(5)}$). Tai pasiekti galima fokusuojant vieną bichromatinį (fundamentinė + antra harmonika) lazerio pluoštą arba du atskirus pluoštus sukertant mažu kampu. Šiuo atveju yra keli variantai gauti ketvirtą harmoniką:

$$4\omega = \omega + \omega + 2\omega, \quad (5)$$

$$4\omega = 3\omega + 2\omega - \omega \quad (6)$$

per $\chi^{(3)}$ netiesinį optinį jautrį^{9,27} ir:

$$4\omega = 2\omega + 2\omega + 2\omega - \omega - \omega, \quad (7)$$

$$4\omega = 2\omega + 2\omega - 2\omega + \omega + \omega, \quad (8)$$

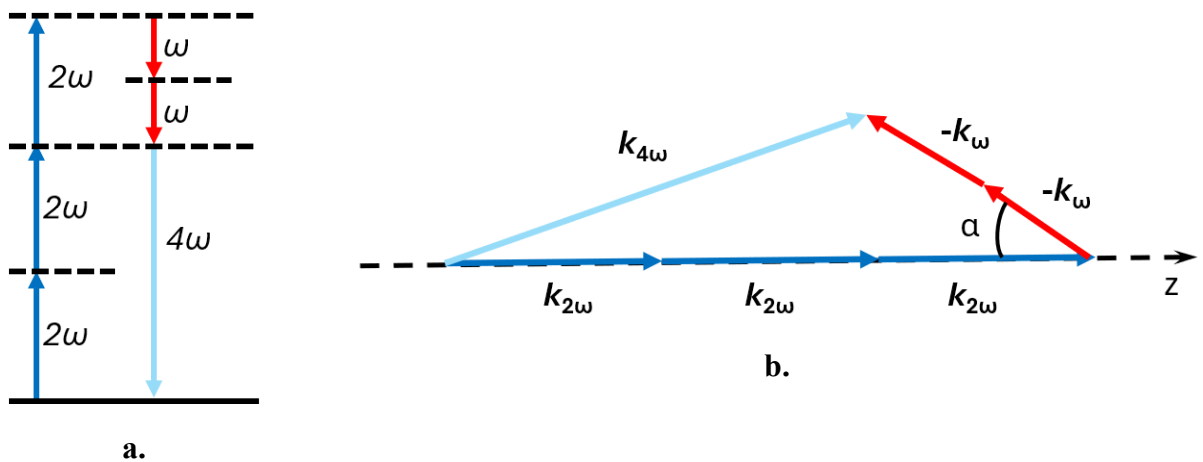
$$4\omega = 2\omega + \omega + \omega + \omega - \omega \quad (9)$$

per $\chi^{(5)}$ netiesinį optinį jautrį. Šiame straipsnyje⁹ gauta ketvirta Ti:Safyro lazerio harmonika per keturbangį dažnių maišymą. Parodyta, kad bichromatinio pluošto naudojimas leidžia gauti didesnius ketvirtos harmonikos efektyvumus, lyginant su atveju kai naudojama tik fundamentinė harmonika. Nustatyta, kad ketvirta harmonika efektyviausiai generuojasi kai fundamentinė harmonika yra neigiamai čirpuota ties 300 – 400 fs impulso trukme (originali trukmė – 48 fs). Tai yra nulemta geriausio persiklojimo laike tarp pirmos ir antros harmonikos impulsų. Patvirtinant, kad procesas vyko keturbangio maišymo būdu gauta ketvirtos harmonikos intensyvumo priklausomybė nuo pirmos harmonikos intensyvumo buvo beveik kvadratinė, o ketvirtos nuo antros priklausomybė – tiesinė

(5 formulė – ketvirtos harmonikos fotonas gaunamas iš dviejų pirmos ir vieno antros harmonikos fotono). Nustatyta, kad naudojant apskritiminę kaupinimo pluošto poliarizaciją, ketvirtos harmonikos efektyvumas sumažėjo 2 – 3 kartus. Generuojamos ketvirtosios harmonikos impulso energija buvo 4,5 μJ , o efektyvumas siekė 0,01%⁹. Naudojant schemą su vėlinimo linija ir atskirais pirmos bei antros harmonikos pluoštais su energijų santykiu 1:1 efektyvumas gali siekti ir 0,1%²⁷.

1.3. Optimalaus dviejų pluoštų sukirtimo kampo skaičiavimas

Kadangi šio darbo eksperimentinėje dalyje bus naudojami du Ti:Safyro lazerio pluoštai ketvirtos harmonikos generacijai, pabandykime apskaičiuoti reikiamus pluoštų sukirtimo kampus optimaliam faziniam sinchronizmui pasiekti. Kaip jau minėta, yra trys galimi variantai ketvirtos harmonikos generacijai per šešiabangį dažnių maišymą ($\chi^{(5)}$ netiesinį optinį jautrį, 7 – 9 formulės). Todėl paskaičiuosime reikiamą kampą kiekvienam atvejui. Pradėkime nuo pirmo varianto, kur ketvirtos harmonikos fotonas gaunamas iš trijų antros harmonikos fotonų viename pluošte (su pliuso ženklu) ir dviejų pirmos harmonikos fotonų kitame pluošte (su minuso ženklu).



1 pav. Fotonų energijos diagrama (a.) ir banginių vektorių diagrama (b.) pagal 7 formulę, čia ω – dažnis, k – banginiai vektoriai, α – pluoštų sukirtimo kampas.

1 paveikslėlyje pavaizduota šio atvejo energinė bei banginių vektorių diagrama. Pluoštų sukirtimo kampą pažymime α . Banginių vektorių užrašome taip:

$$k_{\omega} = \frac{n_{\omega}\omega}{c} = 2\pi \frac{n_{\lambda}}{\lambda}, \quad (10)$$

čia ω – dažnis, c – šviesos greitis, λ – bangos ilgis, n_{λ} – oro lūžio rodiklis λ bangos ilgiui.

Tolimesniuose skaičiavimuose visus bangos ilgius išreikšime per fundamentinę harmoniką, kurios bangos ilgis $\lambda = 800 \text{ nm}$. Iš šaltinio internete paimame lūžio rodiklius ore pirmai, antrai ir ketvirtai harmonikoms: $n_{\lambda} = 1,00027505$ ²⁸, $n_{\lambda/2} = 1,00028276$ ²⁸, $n_{\lambda/4} = 1,00032406$ ²⁹. Grįžkime prie 7 paveikslėlio, panaudodami trikampį, sudarytą iš banginių vektorių, ir kosinusų teoremą, užrašome:

$$(k_{4\omega})^2 = (2k_\omega)^2 + (3k_{2\omega})^2 - 2 \cdot 2k_\omega \cdot 3k_{2\omega} \cdot \cos(\alpha). \quad (11)$$

Tuomet banginius vektorius išreiškiame per bangos ilgius ir atitinkamus lūžio rodiklius (2π paprastumo dėlei praleidžiame, nes vėliau susiprastina):

$$\left(\frac{n_{\lambda/4}}{\frac{\lambda}{4}}\right)^2 = \left(2\frac{n_\lambda}{\lambda}\right)^2 + \left(3\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}}\right)^2 - 2 \cdot \frac{n_\lambda}{\lambda} \cdot 3\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} \cdot \cos(\alpha). \quad (12)$$

Tada perkeliame narį su α kampu į kairę lygybės pusę, o likusius narius į dešinę pusę:

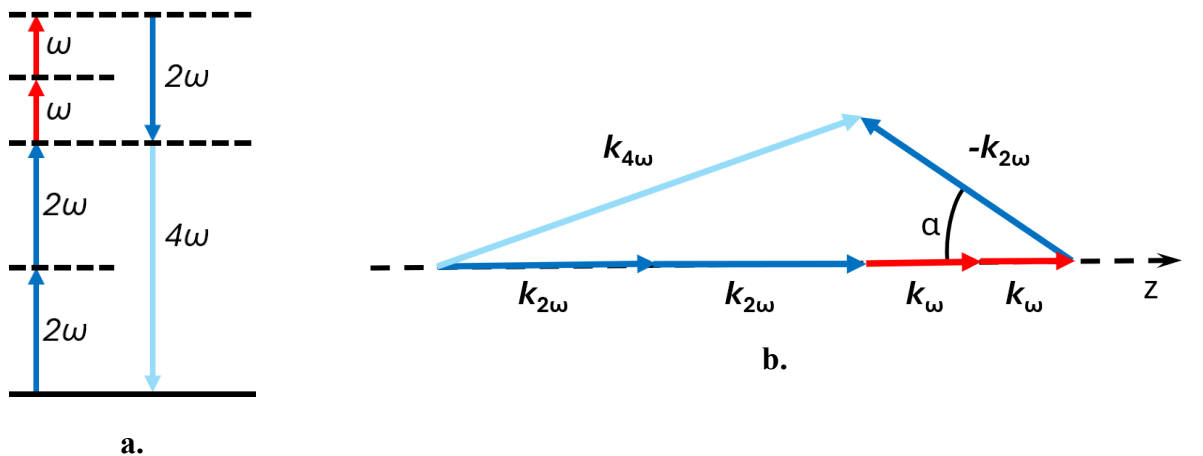
$$2 \cdot \frac{n_\lambda}{\lambda} \cdot 3\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} \cdot \cos(\alpha) = \left(2\frac{n_\lambda}{\lambda}\right)^2 + \left(3\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}}\right)^2 - \left(\frac{n_{\lambda/4}}{\frac{\lambda}{4}}\right)^2. \quad (13)$$

Tada išreiškiame $\cos(\alpha)$:

$$\cos(\alpha) = \frac{\left(2\frac{n_\lambda}{\lambda}\right)^2 + \left(3\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}}\right)^2 - \left(\frac{n_{\lambda/4}}{\frac{\lambda}{4}}\right)^2}{2 \cdot \frac{n_\lambda}{\lambda} \cdot 3\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}}}. \quad (14)$$

Įsirašius vertes ir apskaičiavus gaunasi $\cos(\alpha) = 0,99995$, tuomet $\alpha = 10,00$ mrad – toks turėtų būti pluoštų sukirtimo kampas šiuo atveju.

Toliau imkime antrą variantą, kur ketvirtos harmonikos fotonas gaunamas iš dviejų antros harmonikos bei dviejų pirmos harmonikos fotonų viename pluošte (su pliuso ženklu) ir vieno antros harmonikos fotono kitame pluošte (su minuso ženklu).



2 pav. Fotonų energijos diagrama (a.) ir banginių vektorių diagrama (b.) pagal 8 formulę, čia ω – dažnis, k – banginiai vektoriai, α – pluoštų sukirtimo kampas.

2 paveikslėlyje pavaizduota šio atvejo energinė bei banginių vektorių diagrama. Vėl turime pluoštų sukirtimo kampą α . Kaip ir prieš tai, panaudodami trikampį, sudarytą iš banginių vektorių, ir kosinusų teoremą, užrašome:

$$(k_{4\omega})^2 = (k_{2\omega})^2 + (2k_{2\omega} + 2k_{\omega})^2 - 2 \cdot k_{2\omega} \cdot (2k_{2\omega} + 2k_{\omega}) \cdot \cos(\alpha). \quad (15)$$

Tuomet vėl atliekame tuos pačius veiksmus:

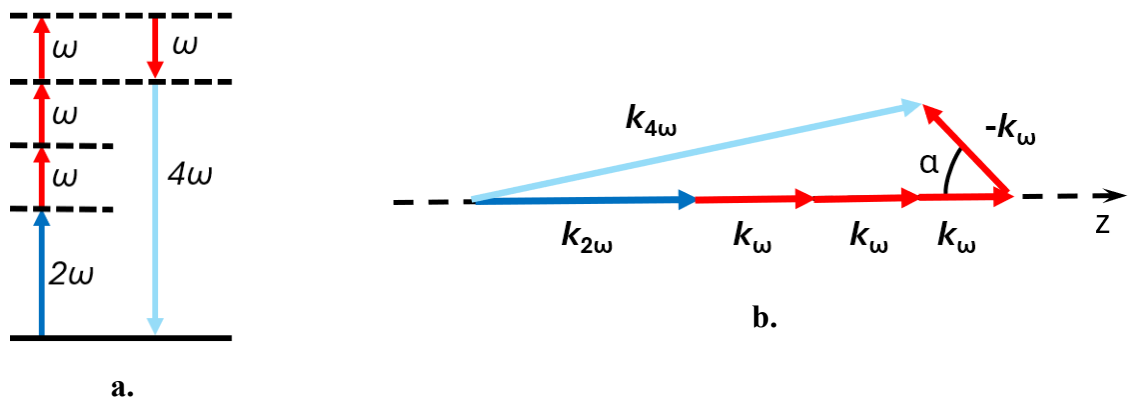
$$\left(\frac{n_{\lambda/4}}{\frac{\lambda}{4}}\right)^2 = \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}}\right)^2 + \left(2\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} + 2\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 - 2 \cdot \frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} \cdot \left(2\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} + 2\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right) \cdot \cos(\alpha), \quad (16)$$

$$2 \cdot \frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} \cdot \left(2\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} + 2\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right) \cdot \cos(\alpha) = \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}}\right)^2 + \left(2\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} + 2\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 - \left(\frac{n_{\lambda/4}}{\frac{\lambda}{4}}\right)^2, \quad (17)$$

$$\cos(\alpha) = \frac{\left(\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}}\right)^2 + \left(2\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} + 2\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 - \left(\frac{n_{\lambda/4}}{\frac{\lambda}{4}}\right)^2}{2 \cdot \frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} \cdot \left(2\frac{n_{\lambda/2}}{\frac{\lambda}{2}} + 2\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)}. \quad (18)$$

Įsirašius vertes ir apskaičiavus gaunasi $\cos(\alpha) = 0,99994$, tuomet $\alpha = 10,95$ mrad – toks turėtų būti pluoštų sukirtimo kampas šiuo atveju.

Galiausiai imkime trečią variantą, kur ketvirtos harmonikos fotonas gaunamas iš vieno antros harmonikos bei trijų pirmos harmonikos fotonų viename pluošte (su pliuso ženklu) ir vieno pirmos harmonikos fotono kitame pluošte (su minuso ženklu).



3 pav. Fotonų energijos diagrama (a.) ir banginių vektorių diagrama (b.) pagal 9 formulę, čia ω – dažnis, k – banginiai vektoriai, α – pluoštų sukirtimo kampas.

3 paveikslėlyje pavaizduota šio atvejo energinė bei banginių vektorių diagrama. Vėl turime pluoštų sukirtimo kampą α . Kaip ir prieš tai, panaudodami trikampį, sudarytą iš banginių vektorių, ir kosinusų teoremą, užrašome:

$$(k_{4\omega})^2 = (k_{\omega})^2 + (k_{2\omega} + 3k_{\omega})^2 - 2 \cdot k_{\omega} \cdot (k_{2\omega} + 3k_{\omega}) \cdot \cos(\alpha). \quad (19)$$

Tuomet vėl atliekame tuos pačius veiksmus:

$$\left(\frac{n_{\lambda/4}}{\lambda}\right)^2 = \left(\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 + \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\lambda} + 3\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 - 2 \cdot \frac{n_{\lambda}}{\lambda} \cdot \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\lambda} + 3\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right) \cdot \cos(\alpha), \quad (20)$$

$$2 \cdot \frac{n_{\lambda}}{\lambda} \cdot \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\lambda} + 3\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right) \cdot \cos(\alpha) = \left(\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 + \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\lambda} + 3\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 - \left(\frac{n_{\lambda/4}}{\lambda}\right)^2, \quad (21)$$

$$\cos(\alpha) = \frac{\left(\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 + \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\lambda} + 3\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)^2 - \left(\frac{n_{\lambda/4}}{\lambda}\right)^2}{2 \cdot \frac{n_{\lambda}}{\lambda} \cdot \left(\frac{n_{\lambda/2}}{\lambda} + 3\frac{n_{\lambda}}{\lambda}\right)}. \quad (22)$$

Įsirašius vertes ir apskaičiavus gaunasi $\cos(\alpha) = 0,99986$, tuomet $\alpha = 16,73$ mrad – toks turėtų būti pluoštų sukirtimo kampas šiuo atveju.

1 lentelė. Optimalūs pluoštų suvedimo kampai skirtingiems ketvirtos harmonikos generacijos procesams.

Nr.	Procesas	Kampas
1.	$4\omega = 2\omega + 2\omega + 2\omega - \omega - \omega$	10,00 mrad
2.	$4\omega = 2\omega + 2\omega - 2\omega + \omega + \omega$	10,95 mrad
3.	$4\omega = 2\omega + \omega + \omega + \omega - \omega$	16,73 mrad

Taigi, iš 1 lentelės galima matyti, kad visiems trims galimiems ketvirtos harmonikos generacijos procesams yra reikalingi labai maži pluoštų sukirtimo kampai – nuo dešimties iki beveik septyniolikos miliradianų. Tarp pirmojo ir antrojo proceso yra labai nedidelis optimalaus kampo skirtumas – tik ~1 miliradianas, tuo tarpu antras nuo trečio skiriasi jau per ~6 miliradianus. Kadangi darbo metu bus naudojami du pluoštai, iš kurių viename bus tik pirma harmonika, o kitame tik antra harmonika (naudojama optika išfiltruoja likutinę pirmąją harmoniką), tai pluoštai bus suvedami

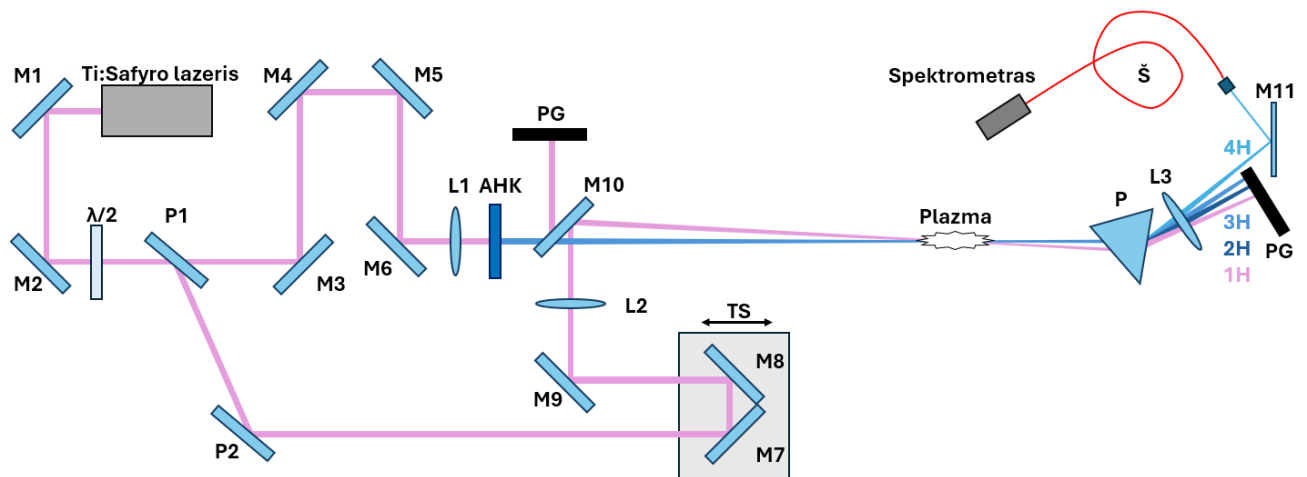
10 mrad kampų, nes turėtų vykti tik pirmasis procesas iš 1 lentelės, nes kitiems dviem yra reikalinga, kad antrasis pluoštas būtų sudarytas ir iš pirmos ir iš antros harmonikų.

2. Ketvirtos Ti:Safyro lazerio harmonikos generavimas ore naudojant du pluoštus

Šiame skyriuje aptariama atlikto darbo metodika, pateikiami rezultatai bei jų aptarimas.

2.1. Dviejų pluoštų eksperimento schema ir matavimų metodika

Eksperimentams atlikti buvo naudojamas *Coherent* firmos *Legend Elite Duo HE+* titano safyro lazeris. Lazerio parametrai: bangos ilgis – 800 nm, impulsų pasikartojimo dažnis – 1 kHz, impulso trukmė – 35 fs (matuojant FWHM). 4 pav. pateikta eksperimento schema. M1 ir M2 veidrodžiais lazerio spinduliuotė atvedama iki mano surinktos eksperimentinės schemos. Šie veidrodžiai taip pat buvo naudoti pakoreguoti pluošto užvedimą, nes kartais būdavo pasikeitusi lazerio pluošto kryptis. Pusės bangos ilgio fazinė plokštelė ($\lambda/2$) ir poliarizatorius (P1) sudaro pluošto daliklį, leidžiantį sukančią fazinę plokštelę pakeisti energiją (galių) santykį tarp dviejų pluošto šakų. Toliau sekant viršutinę pluošto šaką (pavadinkime ją antros harmonikos šaka, o apatinę – pirmosios harmonikos šaka) turime M3 – M6 veidrodžius, kurie reikalingi tam, kad pluoštas nueitų pakankamai kelio, kad būtų įmanoma surasti tinkamą vėlinimo padėtį tarp abiejų atšakų. Lęšis L1 fokusuoja pluoštą, o iš kart už jo stovi antros harmonikos kristalas (AHK), kuris išstatytas tokiu kampu, kad antros harmonikos signalas gautųsi maksimalus. Toliau yra M10 veidrodis. Kadangi jis turi atspindinčią dangą 800 nm, tai jis gerai išfiltruoja pirmą harmoniką ir atspindi ją į pluošto gaudyklę (PG). Deja, veidrodis nėra skaidrintas 400 nm (tiesiog neturėjome pakankamo dydžio tinkamos optikos), todėl tik dalis antros harmonikos spinduliuotės yra praleidžiama, o kita dalis atsispindi į gaudyklę, dėl ko susidaro nuostoliai. Grįžtant prie pirmos harmonikos šakos, joje turime dar vieną poliarizatorių (P2), kuris veikia tiesiog kaip veidrodis. Tuomet yra kompiuteriu valdoma vėlinimo linija, ant kurios yra M7 ir M8 veidrodžiai. M9 veidrodis nukreipia pluoštą link M10, prieš kurį dar yra lęšis L2, fokusuojantis pluoštą. Keičiant atstumą tarp pluoštų ant M10 paviršiaus galima derinti susikirtimo kampą. Pluoštas į M10 pataiko už 10 mm nuo antros harmonikos pluošto, o pats M10 sureguliuojamas, kad pluoštų filamentai susikirstų už 1 m, taip gaunamas 10 mrad pluoštų susikirtimo kampas, kuris reikalingas pirmajam procesui iš 1 lentelės. L1 ir L2 lęšių pozicijos sureguliuotos taip, kad susikirstų pluoštų plazmos filamentų centrai. Filamentų susikirtimo zonoje vyksta netiesinės sąveikos, per kurias generuojasi trečia ir ketvirta harmonikos.

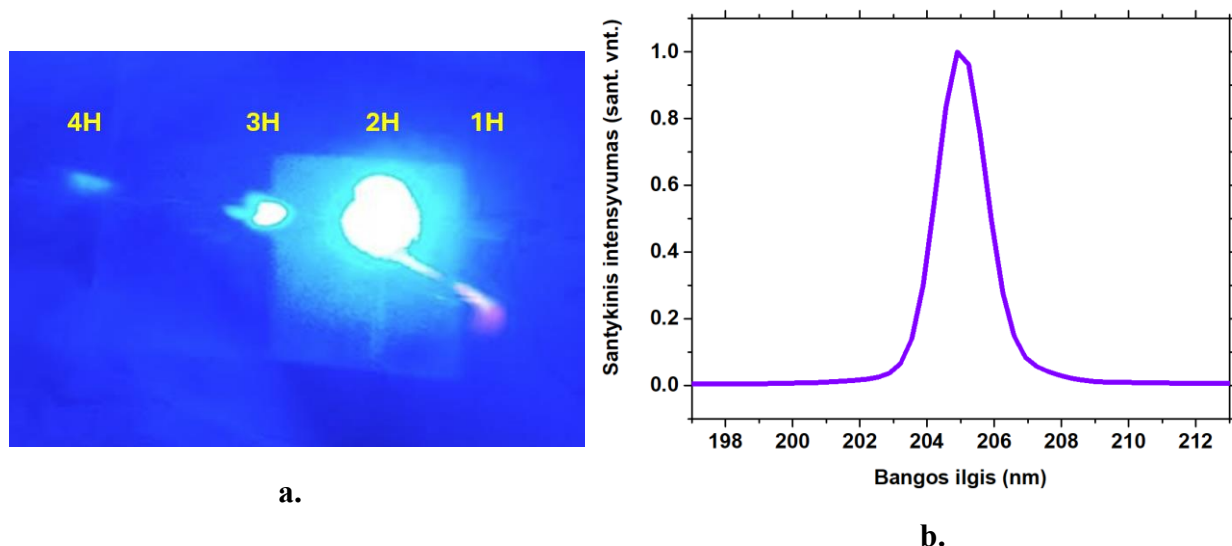


4 pav. Eksperimento schema. $\lambda/2$ – pusės bangos ilgio banginė plokštelė 800 nm; P1 ir P2 – poliarizatoriai; M1 – M10 – veidrodžiai atspindintys 800 nm; M11 – veidrodis atspindintis 200 nm; L1 – 1,2 m židinio nuotolio lęšis; L2 – 1 m židinio nuotolio lęšis; L3 – 15 cm židinio nuotolio lęšis; AHK – antrosios harmonikos kristalas (BBO); TS – transliacinis staliukas, ant kurio yra M7 ir M8; P – prizmė; PG – pluošto gaudyklė; Š – spektrometro šviesolaidis; 1H, 2H, 3H ir 4H – spinduliuotės harmonikos (800 nm, 400 nm, 267 nm ir 200 nm).

Nors ir visos keturios harmonikos (dvi jau esamos: 1H – 800 nm ir 2H – 400 nm bei dvi susigeneravusios: 3H – 267 nm ir 4H – 200 nm) už filamentą keliauja skirtingais kampais, tačiau jie yra labai nedideli, kad pluoštai pakankamai atsiskirtų erdvėje, todėl yra pastatoma prizmė, kurioje dėl nevienodo lūžio rodiklio skirtingiems bangos ilgiams visos keturios harmonikos lūžta skirtingais kampais. Pirmosios trys harmonikos yra užblokuojamos pluošto gaudykle (PG), o ketvirta harmonika fokusuojama lęšiu L3 ir veidrodžiu M11 įvedama į spektrometro šviesolaidį. Spektro registravimui buvo naudotas *Avantes* spektrometras, o spektras buvo atvaizduojamas kompiuteryje. Dėl silpno 4H signalo buvo naudojamas signalo integravimas nuo 15 ms iki 1 s (trukmė buvo parenkama pagal signalo stiprumą), dėl nestabilaus signalo naudotas 10 kartų vidurkinimas. Iš spektrometre rodomo signalo stiprumo buvo sprendžiama apie 4H intensyvumą, nes dėl labai mažos galios, jos nepavyko pamatuoti su paprastu galios matuokliu (turimas galios matuoklis mažiausiai galėjo matuoti 0,1 mW, o generuojamos 4H galia tiek nesiekė). Pirmos harmonikos galia (impulsų energija) buvo matuojama įstatant galios matuoklį už poliarizatoriaus P2, o antros harmonikos galia matuota už M10 esant uždengtam pirmos harmonikos pluoštui. Norint sumažinti bendrą abiejų pluoštų galią prieš M1 veidrodį buvo įdedamas apskritas filtras su tolygiai mažėjančiu pralaidumu, kurį sukant buvo parenkama norima galia. Filtras stovėjo nedideliu kampu į pluoštą, kad atsispindėjęs pluoštas negrižtų atgal į lazerį, jis buvo blokuotas pluošto gaudykle.

Ketvirtos harmonikos signalo radimas ir optimizavimas buvo darytas taip: iš pradžių parinktas toks galių santykis tarp abiejų pluoštų, kad abu filamentai būtų panašaus ryškumo ir matomi plika akimi.

Tada M10 veidrodis išstatytas taip, kad pluoštai susikirstų ir po to optimizuotos L1 ir L2 pozicijos kad už 1 m nuo M10 susikirstų filamentų centrai. Tada už prizmės pastačius ekraną ir stumdant vėlinimo liniją buvo ieškoma, kada atsiras ketvirtosios harmonikos signalas (5 pav. a. pavaizduotas harmonikų vaizdas ant ekrano, ketvirta harmonika – neryški melsva dėmelė kairėje pusėje). Kaip ir parodyta 1 pav., 4 H pluoštas buvo kairiau nuo 2H pluošto (paveikslėlyje aukščiau) ir dar didesniu kampu nei pirma harmonika.

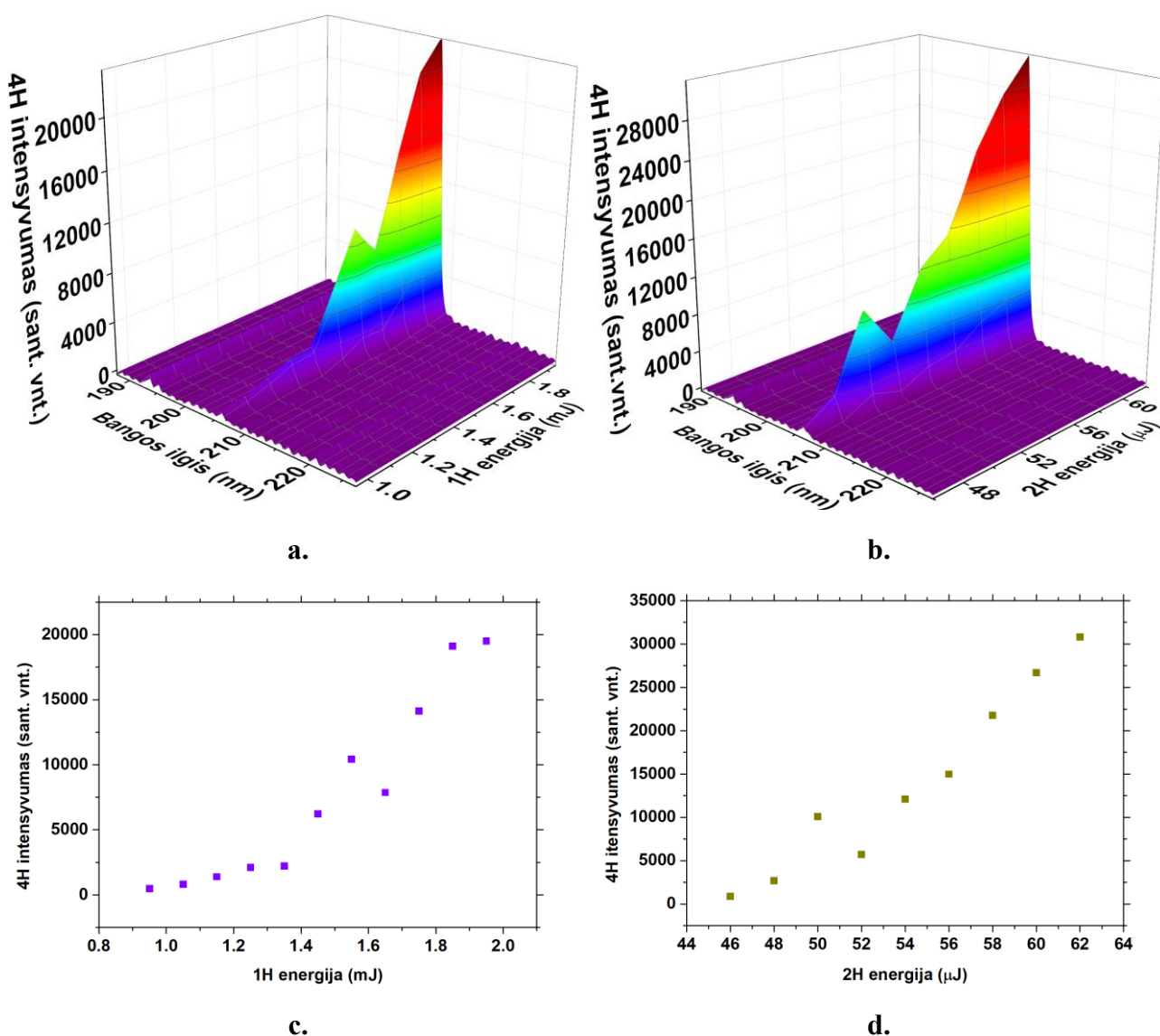


5 pav. a. – Gautų harmonikų vaizdas ant ekrano už prizmės, **b.** – spektrometru išmatuotas tipiškas ketvirtos harmonikos spektras.

Suradus 4H signalą, jos pluoštas pasinaudojant veidrodžiu M11 buvo įvestas į spektrometro šviesolaidį. Tuomet dar kartą švelniai optimizuotas pluoštų suvedimas ir antros harmonikos kristalo kampas, maksimizuojant 4H signalą. Apie signalo stiprumą buvo sprendžiama iš spektrometro rodomo spektro smailės intensyvumo. 5 pav. b. pavaizduotas tipiškas gaunamas spektras. Gautas centrinis bangos ilgis – 204,9 nm, spektro plotis – 428 cm^{-1} (pusės aukštyje, angl. „FWHM“). Visos eksperimentinės darbo dalies metu ir buvo matuojami 4H spektrai, t.y. jų priklausomybės nuo žadinimo spinduliuotės parametrų. Kai kur rezultatai pateikiami kaip 3D spektriniai žemėlapiai, bet dažniausiai imamos tik smailinės vertės.

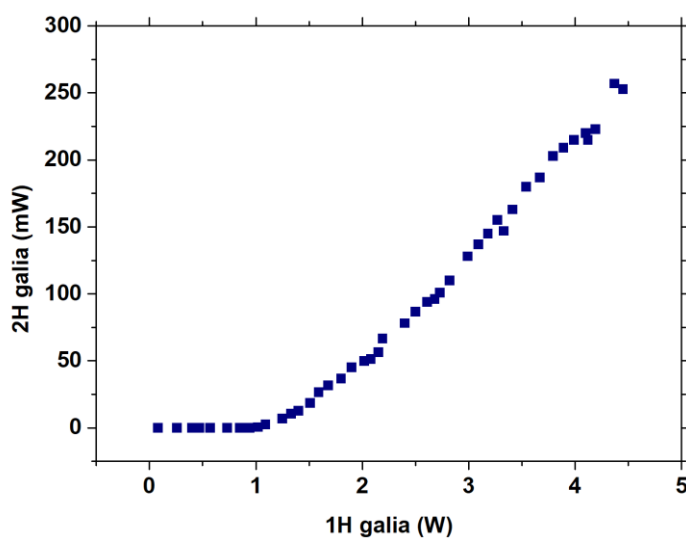
2.2. Ketvirtos harmonikos signalo priklausomybių nuo žadinimo impulsų parametrų matavimų rezultatai

Iš pradžių pamatuota kaip ketvirtos harmonikos intensyvumas priklauso nuo pirmos harmonikos impulsų energijos (6 pav. a. ir c. dalys) bei antros harmonikos impulsų energijos (6 pav. b. ir d. dalys). Matavimo metu schema buvo optimizuota maksimaliam 4H intensyvumui ir tada į vieną iš pluoštų buvo įdedamas apskritas filtras su tolygiai mažėjančiu pralaidumu, kuriuo buvo tolygiai mažinama vieno iš pluoštų galia. Matavimo nuo 1H impulsų energijos atveju filtras stovėjo tarp P2 ir M7 schemos elementų, o 1H galia matuota iš karto už filtro, o matavimo nuo 2H impulsų energijos filtras stovėjo tarp M5 ir M6 veidrodžių, o 2H galia matuota už M10.



6 pav. Ketvirtosios harmonikos spektrinio intensyvumo priklausomybė nuo pirmos harmonikos impulsų energijos (**a.**) ir nuo antrosios harmonikos impulsų energijos (**b.**) ir spektro smailės intensyvumo priklausomybė nuo pirmos harmonikos impulsų energijos (**c.**) ir antrosios harmonikos impulsų energijos (**d.**). **a.** ir **c.** atveju 2H energija buvo 62 μJ, **b.** ir **d.** atveju 1H energija – 1,95 μJ.

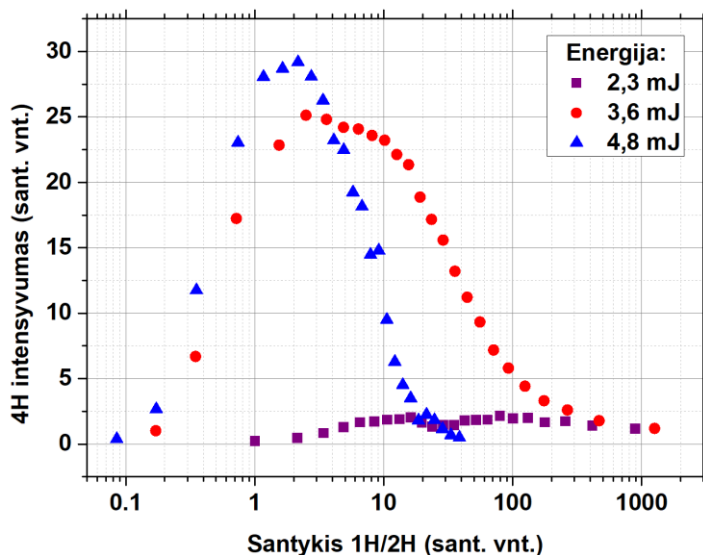
4H priklausomybė nuo 1H energijos turi dvi sritis - iš pradžių yra tiesinė priklausomybė su lėtu kilimu didėjant 1H energijai. Tada nuo maždaug 1,35 mJ 4H intensyvumo kilimas kelis kart paspartėja, tik ties 1,65mJ atsiranda nedidelė įduba. Tai gali būti nulemta ir pačio lazerio nestabilumo (apie tai šiek tiek vėliau), ir filamentų bei plazmos įtakos. Lėtesnio intensyvumo augimo zona yra ten kur dar nesigeneruoja filamentas. Jau atsiradus filamentui sąveika sustiprėja, o ta įduba grafike gali būti ir dėl paraleliai vykstančių konkuruojančių procesų, tokių kaip superkontinuumo generacija. Dar reikia paminėti, kad 4H intensyvumas nenulinę vertę įgauna tik ties 0,9mJ 1H energijos – tai yra slenkstinė vertė (pats procesas nėra slenkstinis, tačiau esant mažesnei energijai, 4H signalas yra silpnas už triukšmą). Toliau žvelgiant į 4H intensyvumo priklausomybę nuo 2H vėlgi matome, kad slenkstinė vertė yra ties 46 μ J, o pati priklausomybė irgi yra daugmaž tiesinė (bent jau žiūrint nuo 52 μ J ir į didesnių energijų pusę). Čia išsiskiria tik vienas taškas ties 50 μ J, kuris išsišoka kiek aukščiau. Tai vėlgi veikiausiai susiję su filamentų įtaka. Dar vienas dalykas, kurį galima pastebėti, yra tai, kad 1H energija yra 1 – 2 mJ srityje, o 2H energija tik keliasdešimties mikrodžiaulių srityje, kas reiškia kad 2H yra apie 20 – 40 kartų mažiau nei 1H. Viena priežastis, kodėl 2H yra tiek nedaug yra nedidelis AHK kristalo 2H generacijos efektyvumas, o taip pat dar ir nuostoliai nuo M10 veidrodžio.



7 pav. Antros harmonikos galios priklausomybė nuo pirmos harmonikos galios.

Pažiūrėjus į 7 pav. galima matyti kaip 2H galia (matuota už M10) priklauso nuo pirmos harmonikos galios (matuota prieš M6). Išmatuojamas kelių mW eilės 2H signalas už M10 veidrodžio pasirodo tik 1H galiai pasiekus 1 W (kaip minėta prieš tai dėl mažo efektyvumo ir nuostolių). Virš 1 W 1H energijos priklausomybė yra beveik tiesinė ir ties maksimalia 4,5 W 1H galia, 2H galia siekia 250 mW. Jeigu skaičiuojant 2H efektyvumą už M10 veidrodžio, tai jis siekia nuo 1% ties 1 – 2 W 1H galiomis iki 5% ties maksimalia 4,5 W galia. Visgi, iš pradžių eksperimentiškai, optimaliai 4H generacija gavosi kai 1H galia tarp dviejų pluoštų pasiskirsto daugmaž po lygiai, t.y. jeigu iš lazerio ateina maždaug 4,8 W, tai būtų po 2,4 W kiekviename iš pluoštų, o tai reiškia, kad 2H yra apie 70 mW

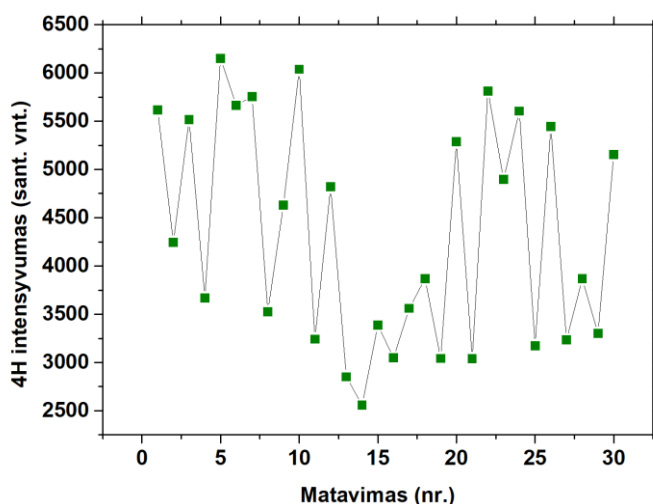
ir jos efektyvumas yra apie 3%. Iš viso šito galima daryti išvadą, kad 4H generacijai ore reikia pakankamai stipraus 1H signalo, o 2H signalas gali būti ir dešimtis kartų mažesnis ir to pakanka, kad vyktų šis netiesinis procesas. Visgi, 4H signalą būtų galima dar pastiprinti turint didesnio efektyvumo antros harmonikos kristalą bei naudojant M10 veidrodį, kuris būtų skaidrintas 400 nm bangos ilgiui.



8 pav. Ketvirtosios harmonikos spektro smailės intensyvumo priklausomybė nuo energijų santykio tarp 1H ir 2H pluoštų prie trijų iš lazerio ateinančių impulsų energijų (energija matuota prieš poliarizatorių P1).

Tuomet padaryti matavimai, kaip 4H intensyvumas priklauso nuo energijų santykio tarp pirmos ir antros harmonikų. Santykis buvo keičiamas sukant $\lambda/2$ pusės bangos ilgio banginę plokštelę, taip keičiant, kokia dalis energijos bus atspindima. Matavimai atlikti prie trijų skirtingų lazerio energijų (energija buvo mažinama su filtru prieš M1 veidrodį). Rezultatai pavaizduoti 8 paveikslėlyje. Galima pastebėti, kad, bent jau prie dviejų didesnių energijų optimalus santykis yra tarp 1 ir 5, o 4H intensyvumo maksimumas yra ties 2 (4,8 mJ energija) ir 2,5 (3,6 mJ energija). Tai reiškia, kad prie didesnių energijų optimaliai 4H generacijai reikia, kad 1H energija būtų maždaug du kartus didesnė už 2H energiją. Tuo tarpu prie mažos lazerio energijos ši priklausomybė ne tokia ryški - ties 2.3 mJ 4H generacijos efektyvumas beveik nekinta visame santykių diapazone (yra maksimalus tarp 8 ir 250 santykio). Tai reiškia, kad šiuo atveju yra beveik nesvarbu, kiek kartų 2H energija yra didesnė už 1H energiją, nes gaunamas 4H intensyvumas yra panašus. Iš tiesų, galima pastebėti ir tai kad, bendrai lazerio energijai didėjant siaurėja santykių diapazonas, ties kuriuo 4H intensyvumas yra maksimalus. Esant mažoms lazerio energijoms filamentas nesusidaro, todėl 4H generuojasi mažai efektyviai ir jos generacija mažai priklauso nuo antros harmonikos. Lazerio energijai didėjant pradeda formuotis filamentas, smarkiai padidėja generuojamos 4H intensyvumas ir antros harmonikos energijos dalis pradeda daryti didesnę įtaką 4H signalui. Dar daugiau padidinus lazerio energiją 4H signalas išauga jau daug mažiau, galimai dėl konkuruojančių procesų, o 2H energijos dalis pasidaro dar svarbesnė.

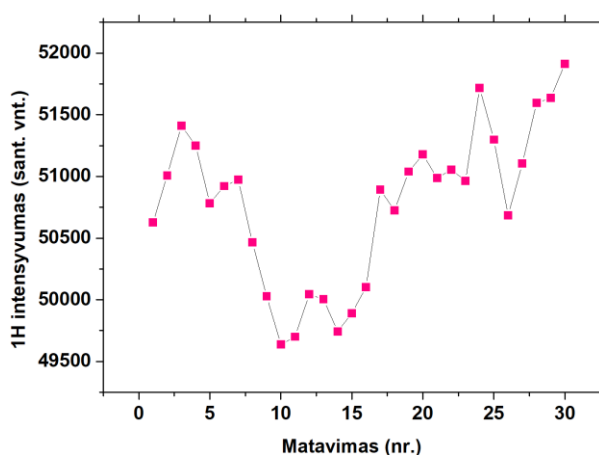
Atliekant matavimus buvo pastebėta, kad kartojant tą patį matavimą kelis kartus iš eilės gaunamas rezultatas skiriasi. Tai gerai iliustruoja 9 paveikslėlis, kuriame pavaizduota 30 iš eilės atliktų 4H spektro smailės verčių matavimų kiekvienam iš jų naudojant 1s ekspoziciją ir 10 kartų vidurkinimą. Galima pastebėti, kad minimali vertė nuo maksimalios skiriasi net apie 2 kartus. Vidutinė išmatuota intensyvumo vertė yra 4333. Maksimali vertė yra 6150, minimali – 2559, o tai reiškia, kad matuojamos vertės santykinai gali nukrypti nuo vidutinės vertės per 40 % tiek į didesnę tiek į mažesnę pusę. Toliau buvo bandoma aiškintis tokio matavimo verčių svyravimo priežastis. Viena iš galimų priežasčių buvo, kad galbūt laboratorijoje judančio oro srautai gali sukelti nestabilumą netiesinės sąveikos zonoje. Bandant bent kažkiek eliminuoti šį variantą, lazerio pluoštai tarp M10 veidrodžio ir prizmės buvo įdėti į vamzdį sumažinant judančio oro (kurį gali sukelti tiek žmogus, tiek tiesiog atsitiktinis skersvėjis) judėjimo įtaką. Tačiau tai menkai tepadėjo, vis tiek fiksuoti nesutapimai tarp pavienių matavimų.



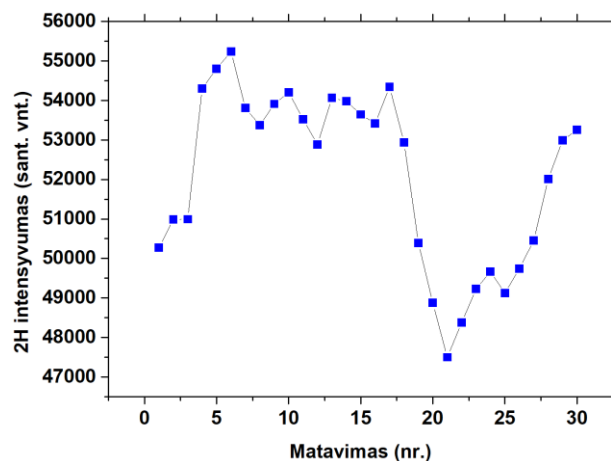
9 pav. Ketvirtosios harmonikos spektro smailės intensyvumo svyravimas atliekant 30 vienodų matavimų iš eilės.

Kita versija buvo, kad pats lazeris yra nestabilus, t.y. pakankamai reikšmingai kinta pavienio lazerio impulso energija ir/ar pluošto kryptis einant laikui. Pats lazeris jau yra gana senas (virš 10 metų) ir buvo ne kartą sugedęs ir taisytas (taip pat ir tuo laikotarpiu, kai buvo daryti eksperimentai). Ir šiaip titano safyro lazeriai nepasižymi tokiu geru stabilumu kaip pavyzdžiui Iterbio lazeriai. Bandant įvertinti lazerio nestabilumo hipotezę buvo pamatuota po 30 kartų 1H ir 2H su tuo pačiu spektrometru, taip pat, kaip prieš tai darant su ketvirta harmonika. Papildomai prieš spektrometrą pastatytas filtras signalui prisimažinti ir išvengti sotinimo. Matavimai atlikti su tais pačiais parametrais: 1s ekspozicija ir 10 kartų vidurkinimas. Matavimų rezultatai – 10 paveiksle. Galime matyti, kad ir čia yra svyravimų tarp pavienių matavimų, tačiau jie yra gerokai mažesni nei 4H atveju. 10 pav. a. dalyje pavaizduotas 1H matavimas, vidutinė trisdešimties matavimų vertė yra 50779, o tiek minimali, tiek maksimali vertės skiriasi nuo vidurkio tik per 2,2 %, tad skirtumas yra apie 20 kartų mažesnis nei 4H atveju.

Paveikslo b. dalyje pavaizduoti 2H rezultatai. Šiuo atveju vidurkis yra 52077, minimali vertė yra 8,8 % mažesnė už vidurkį, o maksimali – 6 %, tad skirtumas apie 3 – 4 kartus didesnis nei 1H atveju. Vienas dalykas kodėl 1H ir 2H verčių išsibarstymas nuo vidurkio yra mažesnis nei 4H gali būti tai, kad matuojant tiek 1H tiek 2H pluoštas nebuvo fokusuotas, kaip kad buvo 4H atveju. Esant fokusuotam pluoštui, nedidelis jo krypties pasikeitimas iškart turės įtaką signalui, bet kai pluoštas yra kolimuotas ir apie 1 cm skersmens, tai minimalus krypties pasikeitimas smarkiai nepakeis matuojamos vertės. Pagrindinė priežastis dalykas dėl ko 4H signalo paklaida galėjo būti didesnė yra tai, kad vienas 4H fotonas susidaro iš kombinacijos penkių 1H ir 2H fotonų ir kiekvieno iš jų paklaida susideda ir rezultate gaunasi, kad 4H turi didžiausią paklaidą.



a.



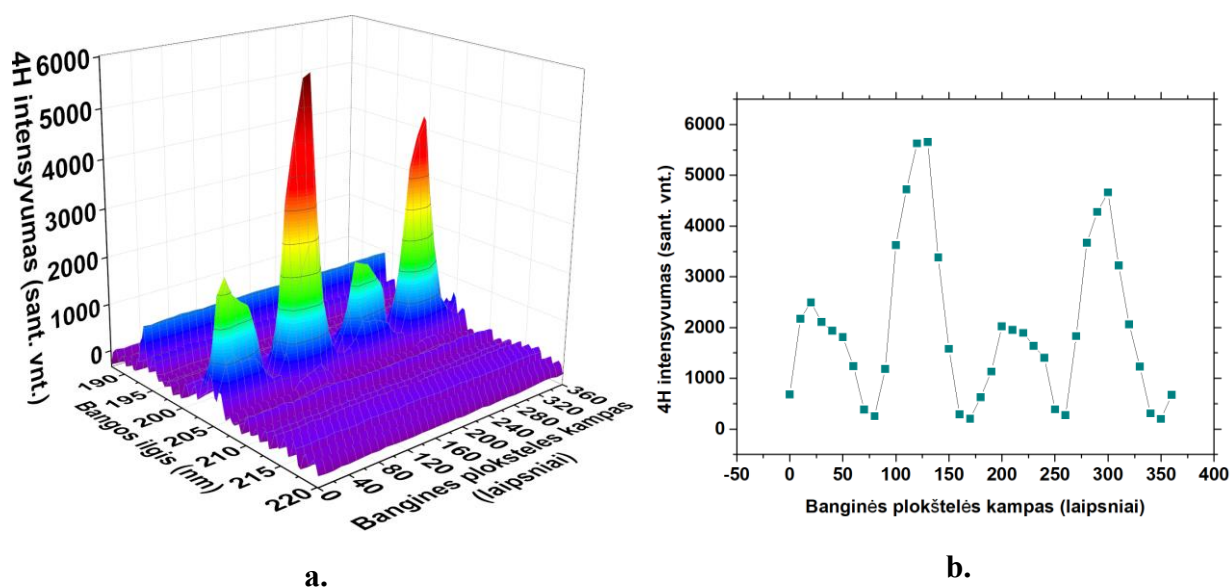
b.

10 pav. Pirmosios harmonikos (a.) bei antros harmonikos (b.) spektro smailės intensyvumo svyravimas atliekant 30 vienodų matavimų iš eilės.

Dar viena galima matavimo nestabilumą priežastis yra pats naudotas matavimo būdas – matuoti intensyvumą su spektrometru. Kadangi 4H galia buvo per maža, kad būtų galima išmatuoti ją ir jos pokyčius su turimu galios matuokliu, tai buvo pasirinkta matuoti su spektrometru. Tokio metodo pliusas yra tas, kad spektrometras leidžia visada užtikrintai pasakyti, kad yra generuojama ketvirta harmonika ir atskirti jos signalą nuo kitų harmonikų ar triukšmų (spektrinis selektyvumas). Tačiau spektrometras yra labai jautrus bet kokiems pluošto krypties pokyčiams, kadangi ketvirta harmonika yra fokusuojama į kelių šimtų mikronų skersmens šviesolaidžio įėjimą, tai bet koks kad ir nedidelis pluošto krypties pasikeitimas lems reikšmingą spektrometru matuojamo signalo sumažėjimą. Ankščiau paminėti dalykai, tokie kaip oro srauto judėjimas laboratorijoje, lazerio pluošto krypties nestabilumas gali lemti 4H pluošto pasislinkimą ir signalo sumažėjimą. Teoriškai galima matuoti 4H signalą jo nefokusuojant į šviesolaidį, tačiau praktiškai tada signalas yra per silpnas ir dar sunkiau kažką pamatuoti, todėl toks variantas netinka. Dar galvojant apie patį matavimą ir jo parametrus tai, kaip ir minėta, matavimo ekspozicija 1s ir 10 kartų vidurkis, o lazerio pasikartojimo dažnis 1 kHz, o

tai reiškia, kad per vieną matavimą paimama dešimt tūkstančių impulsų (suvidurkinama dešimt matavimų po tūkstantį impulsų). Tai atrodo, kad vienam matavimui yra paimama ir suvidurkinama pakankamai verčių, buvo galima vidurkinti ir daugiau, tačiau tada vieno taško pamatavimui reiktų nebe 10 s, o minučių, jei vidurkinimą padidintume dar 10 kartų (iki 100 pavyzdžiui). Taigi, reikia suprasti, kad visuose grafikuose, kur matuotas 4H intensyvumas gali būti pakankamai reikšmingų paklaidų.

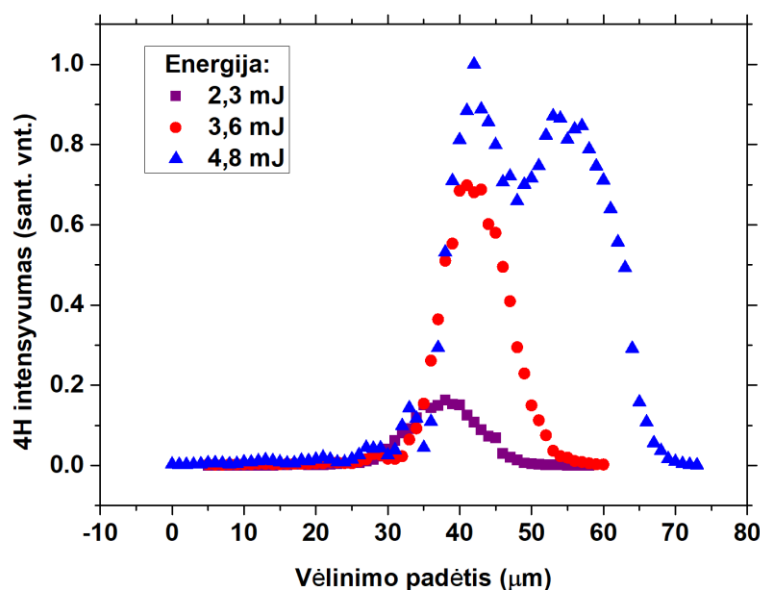
Vėliau pereita prie 4H intensyvumo matavimo nuo banginės plokštelės kampo, t.y. iš esmės nuo kampo tarp dviejų tiesinių 1H ir 2H pluoštų poliarizacijų (11 paveikslėlis). Matavimui naudota žemos eilės (angl. „*low-order*“) pusės bangos ilgio banginė plokštelė, kuri buvo įdėta į pirmos harmonikos pluoštą tarp P2 ir M7 schemos elementų.



11 pav. Ketvirtosios harmonikos spektrinio intensyvumo (a.) bei spektro smailės (b.) priklausomybė nuo pusės bangos ilgio banginės plokštelės pasukimo kampo. Plokštelė buvo įstatyta tarp P2 ir M7 schemos elementų.

Iš 11 pav. b. dalies galima aiškiai išvelgti keturias osciliacijas – keturi maksimumai ir keturi minimumai. Tai yra logiška, nes sukant pusės bangos ilgio banginę plokštelę 360 laipsnių kampu pluošto poliarizacija apsukama 720 laipsnių, o kadangi 4H signalas turi būti maksimalus abiejų pluoštų poliarizacijoms esant lygiagrečioms (tiesiog $\chi^{(5)}$ netiesiškumo tenzorius yra didesnis lygiagrečių poliarizacijų atveju), tai gaunami keturi maksimumai. Pasukus plokštelę 45 laipsniais nuo maksimumo pluoštų poliarizacijos pasidaro statmenos ir 4H generacijos efektyvumas krenta iki minimalios vertės (viena eile mažesnės nei maksimumai). Tiek gretimi maksimumai, tiek minimumai vienas nuo kito yra nutolę per ~ 90 laipsnių. Įdomu tai, kad gretimų maksimumų amplitudės skiriasi beveik dvigubai. Buvo tikimasi, kad visi maksimumai bus vienodi, nes ties kiekvienu iš jų poliarizacijos yra lygiagrečios ir atrodo, kad generacijos sąlygos turėtų būti tos pačios. Labiausiai

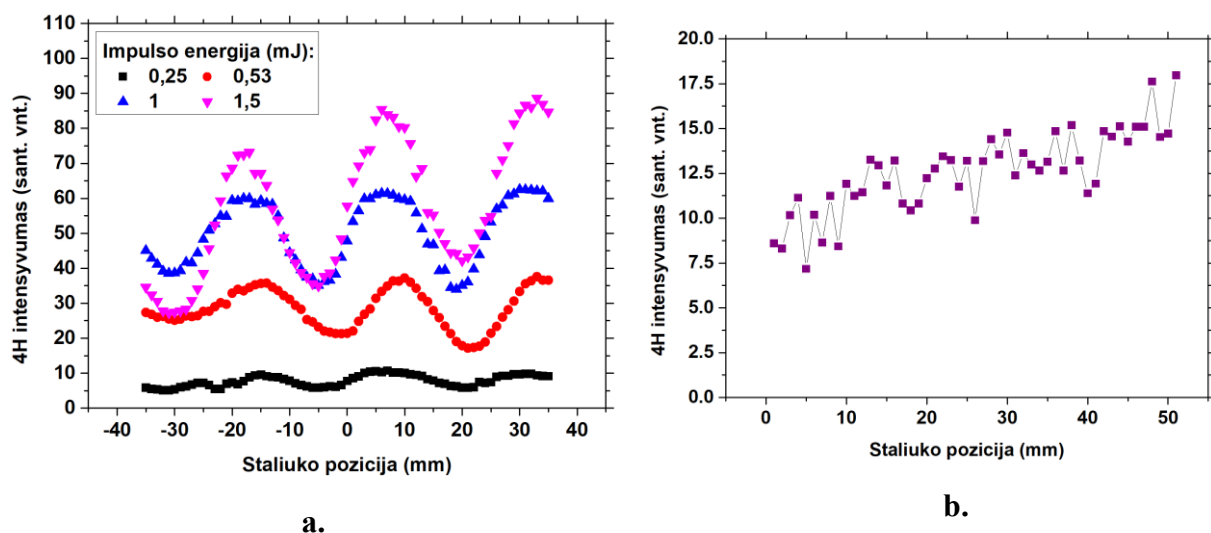
tikėtina, kad maksimumų amplitudės skiriasi dėl to, kad poliarizacijai sukti yra naudojama žemos eilės fazinė plokštelė, kuri dėl savo storio reikšmingai užvėlina 35 fs trukmės 1H impulsą (kai jis sutampa su lėtąja ašimi) 2H impulso atžvilgiu. 35 fs 800 nm impulse yra 13 elektrinio lauko svyravimų ir jeigu žemos eilės plokštelė užvėlina impulsą per, tarkim, 5 svyravimus, tai lemia, kad 1H ir 2H impulsai nebepersikloja laike taip gerai kaip prieš tai, todėl krenta 4H signalas. Ties 130 laipsnių (ir 310 laipsnių) 1H poliarizacija sutampa su greitąja ašimi (ties šia pozicija buvo optimizuotas vėlinimas tarp impulsų) ir abu impulsai persikloja optimaliai, o ties 40 ir 220 laipsnių poliarizacija sutampa su lėtąja plokštelės ašimi ir 1H impulsas yra reikšmingai užvėlinamas. Skirtumo tarp maksimumo amplitudžių būtų galima išvengti naudojant nulinės eilės fazinę plokštelę.



12 pav. Ketvirtosios harmonikos spektro smailės intensyvumo priklausomybė nuo vėlinimo linijos padėties prie trijų impulsų energijų (energija matuota prieš P1 schemos elementą). Pamatuotos 1H ir 2H energijos atitinkamai buvo: 0,64 mJ ir 50 μ J ties 2,3 mJ; 0,84 mJ ir 110 μ J ties 3,6 mJ; 1,49 mJ ir 127 μ J ties 4,8 mJ.

Tada pamatuota kaip ketvirtos harmonikos intensyvumas priklauso nuo vėlinimo tarp pirmos ir antros harmonikų impulsų. Gautas grafikas yra 12 paveikslėlyje. Matavimai atlikti prie trijų skirtingų lazerio energijų (4,8 mJ yra maksimali energija, o 2,3 mJ yra tokia energija, ties kuria dar pakankamai generuojasi 4H kad būtų galima pamatuoti priklausomybę). Matavimai daryti kas 1 μ m (pats pluoštas nueina 2 μ m kelio, nes keliauja pirmyn ir atgal), motorizuotą vėlinimo liniją pastumiant kompiuterio programos pagalba. Norint konvertuoti 1 μ m į femtosekundes reikia tiesiog jį padalinti iš šviesos greičio ore ir gaunasi, kad 1 μ m atitinka 3,33 fs ir dar reiktų padauginti iš dviejų, nes kelias yra dvigubas, tai galiausiai gaunasi, kad 1 μ m grafike atitinka 6,66 fs. Iš esmės čia yra pamatuota koreliacija tarp pirmos ir antros harmonikos impulsų. Ties 2,3 mJ ir 3,6 mJ energijomis gautos gauso formos funkcijos su vienu maksimumu, tačiau prie didžiausios energijos atsiranda dar vienas

maksimumas – į dešinę pusę nuo pirmojo. Antrasis maksimumas yra apie 13 % mažesnis nei pirmasis. Tai rodo, kad prie didelių energijų žadinimo impulsas dėl saviveikos suskyla ir atsiranda poimpulsis. Didėjant energijai, maksimumas slenkasi į dešinę pusę: prie 2,3 mJ jis yra ties 38 μm , prie 3,6 mJ – ties 41 μm ir prie 4,8 mJ – ties 42 μm , o antras maksimumas – ties 53 μm . Prie didesnės energijos formuojasi ilgesnis filamentas, o plazmoje 1H impulsas keliauja truputį greičiau nei ore dėl mažesnio lūžio rodiklio, todėl reikia kiek daugiau užvėlinti 1H impulsą, kad būtų pasiekta maksimali 4H vertė. Kitas dalykas yra tai, kad dešinėje grafiko pusėje vertės gana greitai pasiekia nulį, o kairėje pusėje (nuo 0 μm iki 30 μm) dar yra tokių minimalių pasvyravimų. Tai irgi gali rodyti, kad 1H impulsas yra asimetrinis, nes vyksta netolygus impulso plitimas, priekinio fronto statėjimas ir skilimas. Kažkas panašaus buvo stebėta ir šiame straipsnyje³⁰, kur buvo pademonstruotas penktosios eilės intensyvumo autokoreliacijos matavimas ore generuojant trečiąją Ti:Safyro lazerio harmoniką šešiabangio maišymo metu. Jau prie 0,6 mJ impulsų energijos dėl filamentacijos buvo matomas antro impulso atsiradimas, o prie 0,8 mJ impulsų energijos buvo stebimas impulso skilimas, atsirado subimpulsai ir užplokštėjo pagrindinė viršūnė.



13 pav. Ketvirtosios harmonikos spektro smailės intensyvumo priklausomybė nuo antrosios harmonikos kristalo pozicijos: **(a.)** naudojant vieno pluošto schemą su $f = 15$ cm fokusuojančiu veidrodžiu prie skirtingų 1H impulso energijų¹⁰ ir **(b.)** naudojant dviejų pluoštų schemą esant maksimaliai energijai.

Galiausiai buvo bandoma patikrinti ar yra kažkokia 4H intensyvumo priklausomybė nuo BBO kristalo atstumo iki filamento. Kadangi prieš tai darant mokslo tiriamąjį darbą, kuriame naudota schema su vienu bichromatiniu (1H ir 2H) pluoštu, kuris irgi buvo fokusuojamas generuojant 4H, buvo išmatuota sinuso formos 4H intensyvumo priklausomybė nuo kristalo padėties, tai norėta patikrinti kaip yra dviejų pluoštų schemas atveju. 13 pav. a. dalis vaizduoja anksčiau gautas vieno pluošto schemas sinusines 4H priklausomybes prie 5 kaupinimo impulso energijų. Šios

priklausomybės buvo paaiškintos tuo, kad vyko bent dviejų skirtingų netiesinių procesų, generuojančių 4H spinduliuotę interferencija. Stumdant kristalą (t.y., keičiant atstumą tarp AHK ir filamentų), sąveikos zonoje kinta ir 1H, ir 2H fazė, o skirtingų procesų generuojama 4H turi skirtingas fazes, aprašomomis pirmos ir antros harmonikos fazių kombinacijomis. Tad, kai fazės sutampa, gaunamas maksimumas, o kai yra priešingos – minimumas. Taigi, bandant patikrinti ar dviejų pluoštų atveju irgi gausis tas pats, BBO kristalas buvo pritvirtintas ant transliacinio staliuko ir pamatuotas 4H signalo kitimas stumiant staliuką 5 cm ruože (žr. 13 pav. b. dalį). Kaip ir vieno pluošto atveju, buvo matuota po 1 tašką kas 1 mm, tik diapazonas buvo ne 7 cm, o 5 cm, bet to turėjo visiškai pakakti, galimoms osciliacijoms pamatyti. Tačiau, žiūrint į grafiką, nėra jokių osciliacijų, yra tik 4H signalo augimas BBO kristalui artėjant link filamentų (didesnės staliuko pozicijos reikšmės reiškia mažėjantį atstumą) su atsitiktiniais pasvyravimais dėl triukšmo. Signalų augimą galima paaiškinti tuo, kad kristalui artėjant link filamentų jis tuo pačiu tolsta nuo lęšio L1 (kuris yra prieš kristalą), ir kadangi kristale pluoštas yra švelniai fokusuotas, tai tostant nuo lęšio didėja intensyvumas kristale, dėl ko išauga generuojamos 2H signalas ir atitinkamai didėja ir 4H signalas, ir atvirkščiai, artėjant link lęšio, intensyvumas kristale krenta, tada krenta ir 2H bei 4H signalas. O tai, kad nepasireškia osciliacijos, perša išvadą, kad 4H generacijos metu vyksta (arba dominuoja) tik vienas 4H generacijos mechanizmas.

Išvados

1. Naudojant dviejų pluoštų (pirmos ir antros femtosekundinio Ti:Safyro lazerio harmonikų) schemą buvo pademonstruota ir ištirta ketvirtosios optinės harmonikos generacija ore, vykstanti dėl penktosios eilės optinio oro netiesiškumo.
2. Ketvirtosios optinės harmonikos generavimo ore efektyvumas didėja, didinant tiek pirmosios, tiek ir antrosios lazerio impulsų harmonikos energiją, tačiau šis didėjimas nėra tolygus dėl sąveikos zonoje sklindančių žadinimo impulsų saviveikos, netiesiškai kintančio žadinimo intensyvumo bei susidarančios šviesos gijos ir joje atsirandančios plazmos įtakos fazinio sinchronizmo sąlygoms.
3. Ketvirtos optinės harmonikos galios maksimumai užregistruoti, esant lygiagrečioms pirmos ir antros harmonikų poliarizacijoms, tačiau generacijos efektyvumas taip pat priklauso ir nuo fazinės plokštelės padėties: ją pasukus 90 laipsnių registruojamo signalo lygis pasikeičia beveik du kartus. Lyginant su lygiagrečių poliarizacijų maksimumų padėtimis, statmenų poliarizacijų atveju ketvirtos harmonikos intensyvumas sumažėja apie 10 kartų.
4. Antros harmonikos kristalo pozicija netiesinės sąveikos zonos atžvilgiu neturi įtakos ketvirtos harmonikos generacijos efektyvumui naudojant dviejų atskirų pluoštų schemą. Osciliacijų nebuvimas keičiant atstumą tarp plazmos ir kristalo rodo, kad vyksta tik vienas ketvirtos harmonikos generacijos procesas.

Literatūros sąrašas

1. Aközbek, N. *et al.* Third-Harmonic Generation and Self-Channeling in Air Using High-Power Femtosecond Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 143901 (2002).
2. Murnane, M. M. *et al.* 16-fs, 1-μJ ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air. *Opt. Lett. Vol. 21, Issue 9, pp. 665-667* **21**, 665–667 (1996).
3. Hartinger, K. & Bartels, R. A. Enhancement of third harmonic generation by a laser-induced plasma. *Appl. Phys. Lett.* **93**, (2008).
4. Yang, X. *et al.* Noncollinear interaction of femtosecond filaments with enhanced third harmonic generation in air. *Appl. Phys. Lett.* **95**, (2009).
5. Suntsov, S., Abdollahpour, D., Papazoglou, D. G. & Tzortzakis, S. Filamentation-induced third-harmonic generation in air via plasma-enhanced third-order susceptibility. *Phys. Rev. A* **81**, 033817 (2010).
6. Suntsov, S., Abdollahpour, D., Papazoglou, D. G. & Tzortzakis, S. Efficient third-harmonic generation through tailored IR femtosecond laser pulse filamentation in air. *Opt. Express, Vol. 17, Issue 5, pp. 3190-3195* **17**, 3190–3195 (2009).
7. Vaičaitis, V., Jarutis, V. & Pentaris, D. Conical Third-Harmonic Generation in Normally Dispersive Media. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 103901 (2009).
8. Fuji, T., Horio, T. & Suzuki, T. Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in neon gas. *Opt. Lett. Vol. 32, Issue 17, pp. 2481-2483* **32**, 2481–2483 (2007).
9. Ganeev, R. A. *et al.* Fourth-order harmonic generation during parametric four-wave mixing in the filaments in ambient air. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **82**, 043812 (2010).
10. Bakanauskas, M. Ketvirtosios optinės harmonikos generacija ore femtosekundiniais lazerio impulsais (Magistro studijų mokslo tiriamasis darbas). *Vilniaus Univ.* (2025).
11. Aközbek, N., Scalora, M., Bowden, C. M. & Chin, S. L. White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air. *Opt. Commun.* **191**, 353–362 (2001).
12. Ilkov, F. A. *et al.* Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air. *Opt. Lett. Vol. 22, Issue 5, pp. 304-306* **22**, 304–306 (1997).
13. Korn, G. *et al.* Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air. *Opt. Lett.*

- Vol. 20, Issue 1, pp. 73-75* **20**, 73–75 (1995).
14. Nibbering, E. T. J. *et al.* Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air. *Opt. Lett. Vol. 21, Issue 1, pp. 62-64* **21**, 62–64 (1996).
 15. Lange, H. R. *et al.* Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air: moving focus or pulse self-guiding? *Opt. Lett.* **23**, 120 (1998).
 16. Mlejnek, M., Wright, E. M. & Moloney, J. V. Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. *Opt. Lett. Vol. 23, Issue 5, pp. 382-384* **23**, 382–384 (1998).
 17. Becker, A. *et al.* Intensity clamping and re-focusing of intense femtosecond laser pulses in nitrogen molecular gas. *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **73**, 287–290 (2001).
 18. Ringling, J., Korn, G., Squier, J., Kittelmann, O. & Noack, F. Tunable femtosecond pulses in the near vacuum ultraviolet generated by frequency conversion of amplified Ti:sapphire laser pulses. *Opt. Lett.* **18**, 2035 (1993).
 19. Heist, P. & Kleinschmidt, J. Measurement of ultraviolet subpicosecond pulses based on ultrafast beam deflection. *Opt. Lett.* **19**, 1961 (1994).
 20. Simon, P., Gerhardt, H. & Szatmari, S. A single-shot autocorrelator for UV femtosecond pulses. *Meas. Sci. Technol.* **1**, 637 (1990).
 21. Eichmann, H., Henking, R., Mossavi, K., Tünnermann, A. & Wellegehausen, B. Single-shot autocorrelator for KrF subpicosecond pulses based on two-photon fluorescence of cadmium vapor at $\lambda = 508$ nm. *Opt. Lett. Vol. 16, Issue 6, pp. 402-404* **16**, 402–404 (1991).
 22. Reintjes, J., Eckardt, R. C. & She, C. Y. Generation of Coherent Radiation in the XUV by Fifth- and Seventh-Order Frequency Conversion in Rare Gases. *IEEE J. Quantum Electron.* **14**, 581–596 (1978).
 23. Harris, S. E. Generation of Vacuum-Ultraviolet and Soft—X-Ray Radiation Using High-Order Nonlinear Optical Polarizabilities. *Phys. Rev. Lett.* **31**, 341 (1973).
 24. Schmid, W. E., Fuß, W., Trushin, S. A. & Kosma, K. Vacuum ultraviolet pulses of 11 fs from fifth-harmonic generation of a Ti:sapphire laser. *Opt. Lett. Vol. 33, Issue 7, pp. 723-725* **33**, 723–725 (2008).
 25. Vaičaitis, V., Jarutis, V., Steponkevičius, K. & Stabinis, A. Noncollinear six-wave mixing of femtosecond laser pulses in air. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **87**, 063825 (2013).
 26. Steponkevičius, K., Makauskas, B., Žeimys, E., Jarutis, V. & Vaičaitis, V. Optimization of third harmonic generation in air by noncollinear six-wave mixing. *Laser Phys. Lett.* **12**,

025402 (2015).

27. Fuji, T., Suzuki, T. & Horio, T. Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in neon gas. *Opt. Lett. Vol. 32, Issue 17, pp. 2481-2483* **32**, 2481–2483 (2007).
28. Peck, E. R. & Reeder, K. DISPERSION OF AIR. *J Opt Soc Am* **62**, 958–962 (1972).
29. Ciddor, P. E. Refractive index of air: new equations for the visible and near infrared. *Appl. Opt.* **35**, 1566 (1996).
30. Gaižauskas, E., Steponkevičius, K. & Vaičaitis, V. Fifth-order intensity autocorrelations based on six-wave mixing of femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **93**, 023813 (2016).

Higher-order harmonic generation in air by femtosecond laser pulses

Mykolas Bakanauskas

Summary

The aim of this work was to investigate the dependence of intensity of the fourth harmonic generated in air by a femtosecond Ti:Sapphire laser on the excitation radiation parameters, using a two-beam fourth harmonic generation scheme in which the fundamental and second harmonic beams are crossed in air at a small angle. First, the beam crossing angles were calculated for three possible six-wave mixing processes responsible for fourth harmonic generation in air. Depending on the process, the obtained values varied between 10 and approximately 17 milliradians. Next, a two-beam optical setup was assembled, a beam crossing angle of 10 mrad was selected, and after temporal overlap of the fundamental and second harmonic pulses, a fourth harmonic signal was obtained and measured using a spectrometer. Measurements of the fourth harmonic intensity as a function of the fundamental and second harmonic pulse energies and their ratio were performed. It was observed that increasing the laser energy resulted in a narrower range of energy ratios for which efficient fourth harmonic generation was achieved. During the measurements it was also noticed that the laser operated unstably, i.e. the beam direction and/or pulse energy changed over time, which affected the measurement uncertainties. The dependence of the fourth harmonic generation efficiency on the angle between the polarization directions of the excitation beams was also measured. A maximum signal was obtained for parallel polarizations, while a minimum was observed for perpendicular polarizations. It was noticed that every second maximum was larger; this was caused by the low-order wave plate used in the experiment, which introduced an additional pulse delay in one of the orientations. The dependence of the fourth harmonic intensity on the delay between the excitation pulses was also measured, corresponding essentially to a higher-order correlation function. It was found that at lower laser energies the obtained function had a Gaussian shape, whereas at the maximum energy (4.8 mJ) a second maximum appeared, indicating that the excitation pulse split due to filamentation. Finally, the dependence of the fourth harmonic signal on the distance between the second harmonic crystal and the filament was investigated. The purpose was to determine whether sinusoidal oscillations, similar to those observed in previous work due to phase differences and interference between several different fourth harmonic generation sources, could be measured. No oscillations were observed, indicating that only a single fourth harmonic generation process was present.

Aukštesniųjų optinių harmonikų generacija ore femtosekundiniais lazerio impulsais

Mykolas Bakanauskas

Santrauka

Šio darbo tikslas buvo ištirti ore generuojamos ketvirtosios femtosekundinio Ti:Safyro lazerio harmonikos priklausomybes nuo žadinimo spinduliuotės parametrų, tam naudojant dviejų pluoštų ketvirtos harmonikos generacijos schemą, kai pirmos ir antros harmonikos pluoštai yra sukertami ore nedideliu kampu. Pirmiausia buvo apskaičiuoti pluoštų suvedimo kampai trimis galimais šešiabangio maišymo ore ketvirtos harmonikos generacijos variantams. Gautos vertės priklausomai nuo proceso variavo tarp 10 ir ~17 miliradianų. Tuomet buvo surinkta optinė dviejų pluoštų schema, pasirinktas 10 mrad pluoštų sukirtimo kampas ir suvedus pirmos ir antros harmonikų impulsus laike buvo gautas ketvirtos harmonikos signalas, kuris buvo matuojamas spektrometru. Atlikti ketvirtos harmonikos intensyvumo matavimai nuo pirmos ir antros harmonikos impulsų energijų ir jų santykio. Pastebėta, kad didėjant lazerio energijai gaunamas siauresnis santykių diapazonas kur ketvirta harmonika generuojama efektyviai. Taip pat matavimų metu pastebėta, kad lazeris veikia nestabiliai, t. y. ilgainiui kinta pluošto kryptis ir/ar impulsų energija, kas įtakojo matavimų paklaidas. Taip pat pamatuota ketvirtos harmonikos generacijos efektyvumo priklausomybė nuo kampo tarp žadinimo pluoštų poliarizacijų. Esant lygiagrečioms poliarizacijoms gautas signalo maksimumas, o esant statmenoms – minimumas. Pastebėta, kad kas antras maksimumas yra didesnis – tai lėmė naudota žemos eilės fazinė plokštelė, įnešusi papildomą impulso vėlinimą vienoje iš savo orientacijų. Buvo matuojama ketvirtos harmonikos intensyvumo priklausomybė nuo vėlinimo tarp žadinimo impulsų – iš esmės aukštesnės eilės koreliacinė funkcija. Gauta, kad prie mažesnių lazerio energijų gaunama Gauso formos funkcija, tačiau esant maksimaliai energijai (4,8 mJ) atsiranda antras maksimumas, kas indikuoja, kad žadinimo impulsas suskyla dėl filamentacijos. Galiausiai pasižiūrėta kaip ketvirtos harmonikos signalas priklauso nuo antros harmonikos kristalo atstumo iki filamento – čia buvo tikrinama ar bus išmatuotos sinuso formos osciliacijos, tokios kaip buvo gautos ankstesniame darbe, dėl fazių skirtumo ir interferencijos tarp kelių skirtingų ketvirtos harmonikos generacijos šaltinių. Osciliacijos nebuvo fiksuojamos, o tai rodo, kad veikė tik vienas ketvirtos harmonikos generacijos procesas.