Lézerimpulzusok fázismodulációja kétutas frekvenciakétszerezésnél, valamint rezonáns közegben való terjedésnél

PhD értekezés

Írta:

Fülöp József András

Témavezetők:

Dr. Bor Zsolt akadémikus

Dr. Thomas Feurer

Szegedi Tudományegyetem

Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék

Szeged, 2003.

Tartalomjegyzék

BEVEZETÉS

A lézerek kifejlesztésével szinte egyidőben megindult az impulzusüzemű lézerek fejlesztése is. Az impulzusüzemű lézerekkel kapcsolatos, illetve ilyen lézereket alkalmazó kutatások mára rendkívül szerteágazó, önálló tudományágakká váltak, amelyek jelentőségét, hatását más tudományterületekre nehéz lenne túlbecsülni. A módusszinkronizált szilárdtest-lézerek kifejlesztésével lehetővé vált néhány femtoszekundum időtartamú impulzusok rutinszerű előállítása. Az ultrarövid impulzusok alkalmazásai között találunk olyan különböző területeket, mint például a femtokémia, a szemsebészet, vagy az optikai frekvenciák rendkívüli pontosságú mérése, amely előrevetíti az idő egységének eddiginél sokkal nagyobb pontosságú definícióját is. A lézerek fejlesztésének másik, a rövid lézerimpulzusok előállításától nem független, fontos iránya a minél szélesebb frekvenciatartományon hangolható, monokromatikus fényű lézerek konstruálása.

A rövid impulzusokat előállító, illetve a hangolható lézerek elsősorban a spektrum látható tartományának hosszúhullámú részén, valamint a közeli infravörösben sugároznak. Az alkalmazások egyre bővülő köre számára döntő fontosságú más, rövidebb hullámhosszú tartományok elérhetősége is. Frekvenciakonverzióra különböző nemlineáris optikai folyamatok használhatók; ezek közül az egyik leggyakrabban alkalmazott a nemlineáris kristályokban létrehozott frekvenciakétszerezés. Rövid impulzusok frekvenciakétszerezésénél a legfontosabb gyakorlati kritérium, hogy a felharmonikus impulzus időtartama jó közelítéssel megegyezzen a kiindulási impulzuséval. Ennek szükséges feltétele az impulzus teljes spektrumát átfogó, elegendően széles konverziós tartomány. A sávszélesség — amely döntő a hangolható lézerek frekvenciakétszerezésénél is — fordítva arányos a nemlineáris kristály hosszával, míg a konverziós hatásfok egyenesen arányos annak négyzetével. A sávszélességre kirótt kritérium tehát korlátozza a kristályhosszat, és ezen keresztül drasztikusan csökkenti az elérhető hatásfokot. Adott sávszélesség mellett a frekvenciakétszerezési hatásfok növelhető diszperzió-kompenzációval, amely lehetővé teszi vastagabb kristály használatát.

Jelen értekezés egyik célja egy új diszperziókompenzált frekvenciakétszerezési elrendezés vizsgálata, amely egyaránt alkalmas femtoszekundumos impulzusok, illetve széles sávban hangolható monokromatikus lézerek megnövelt hatékonyságú frekvenciakétszerezésére. Az általam javasolt elrendezés a kétutas frekvenciakétszerezési séma megfelelő diszperzív elemmel való kibővítésén alapul.

A femtoszekundumos impulzusokkal kapcsolatos legalapvetőbb folyamatok közé tartozik atomokkal való rezonáns kölcsönhatásuk, amelynek során az impulzusoknál meglehetősen komplex amplitúdó- és fázisszerkezet alakulhat ki. A rezonáns impulzusformálás kísérleti tanulmányozása sokáig spektrális és intenzitás-korrelációs mérésekre korlátozódott. Ezek a mérési módszerek azonban nem adnak közvetlen felvilágosítást az impulzusok térerősségéről. Az amplitúdó- és a fázisszerkezet ismerete elengedhetetlen viszont a kísérlet és elmélet közötti közvetlen összehasonlításhoz. Az utóbbi évtizedben a femtoszekundumos méréstechnikában végbement hatalmas fejlődésnek köszönhetően ma már rutinszerűen elvégezhető ultrarövid impulzusok szerkezetének amplitudóra és fázisra egyaránt kiterjedő, nagy pontosságú mérése.

Erre alkalmas módszer például a FROG (*Frequency Resolved Optical Gating*) technika.

Dolgozatom másik célja femtoszekundumos lézerimpulzusok rezonáns atomi közeggel való kölcsönhatásának vizsgálata az impulzusok térerősségének FROG technikán alapuló mérésével. A térerősség mérését a kölcsönhatás utáni impulzusok mellett kiterjesztettem a bemenő impulzusokra is, ami lehetővé teszi a kezdeti fázismoduláció hatásának tanulmányozását a rezonáns impulzusformálásra.

Az értekezés két fő részre tagolódik. Az első részben a diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezés tudományos előzményei között röviden áttekintem a lineáris impulzusterjedés elméletét, a prizmapár fázistolásának jellemzőit, az egyutas frekvenciakétszerezés legfontosabb tulajdonságait, valamint a monokromatikus lézerfény kétutas frekvenciakétszerezésével kapcsolatos eddigi eredményeket. Részletesebben foglalkozom a sávszélesség kérdésével, amely femtoszekundumos impulzusok, illetve széles sávban hangolható lézerek frekvenciakétszerezésénél alapvető fontosságú. Végül röviden áttekintem a femtoszekundumos impulzusok frekvenciakétszerezésére eddig használt diszperzió-kompenzáción alapuló elrendezéseket. A célkitűzések megjelölése után rátérek az új tudományos eredmények kifejtésére. Bemutatom az ebben a munkában javasolt, prizmapárral bővített kétutas frekvenciakétszerezési elrendezést. Meghatározom a diszperzív elemmel bővített kétutas elrendezés felharmonikus térerősségét és konverziós sávszélességét, megvizsgálom a diszperzió-kompenzáció feltételét. Numerikus számítások segítségével megmutatom, hogy a prizmapárral bővített kétutas elrendezés alkalmas megnövelt hatékonyságú frekvenciakétszerezésre, az egyutas sávszélesség megőrzése mellett. Megvizsgálom az elrendezés teljesítőképességét mind hangolható lézerek, mind femtoszekundumos impulzusok esetében.

Az értekezés második részében a tudományos előzmények között röviden áttekintem a rezonáns közegben való impulzusterjedéssel kapcsolatos eddigi kísérleti eredményeket, valamint szólok a femtoszekundumos impulzusok amplitúdó- és fázisszerkezetének FROG technikán alapuló méréséről. A célkitűzések megjelölését követően a femtoszekundumos impulzusok rezonáns közegbeli formálásával kapcsolatos új tudományos eredmények ismertetését a kísérleti elrendezés leírásával kezdem, majd rátérek a kísérleti eredmények modellezésénél alkalmazott elmélet bemutatására. A kísérleti eredmények tárgyalásánál először a kölcsönhatás előtti impulzusszerkezet rekonstruálásáról szólok. Végül a rezonáns kölcsönhatás utáni impulzusok mért és a számított térerősségének összevetésével megvizsgálom a kezdeti fázismoduláció hatását az impulzusformálásra.

Az értekezésben ismertetett eredmények részben a Szegedi Tudományegyetem Optikai és Kvantumelektronikai Tanszékén, részben a jenai Friedrich Schiller Egyetem Optikai és Kvantumelektronikai Intézetében (Friedrich-Schiller-Universität Jena, Institut für Optik und Quantenelektronik) születtek.

I. rész

Diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezés

TUDOMÁNYOS ELŐZMÉNYEK

1. Lineáris impulzusterjedés

Dolgozatomban femtoszekundumos lézerimpulzusok lineáris és nemlineáris közegben való terjedésével kapcsolatos jelenségeket vizsgálok. Először tehát célszerű röviden áttekinteni — a jelölések és a szóhasználat rögzítése végett — a lézerimpulzusok és azok lineáris terjedésének matematikai leírását. A fejezet második része a prizmapár fázistulajdonságait tekinti át, amelyeknek a kétutas frekvenciakétszerezésben való alkalmazásnál, valamint impulzuskompressziónál van jelentősége.

1.1. Impulzusterjedés diszperzív közegben

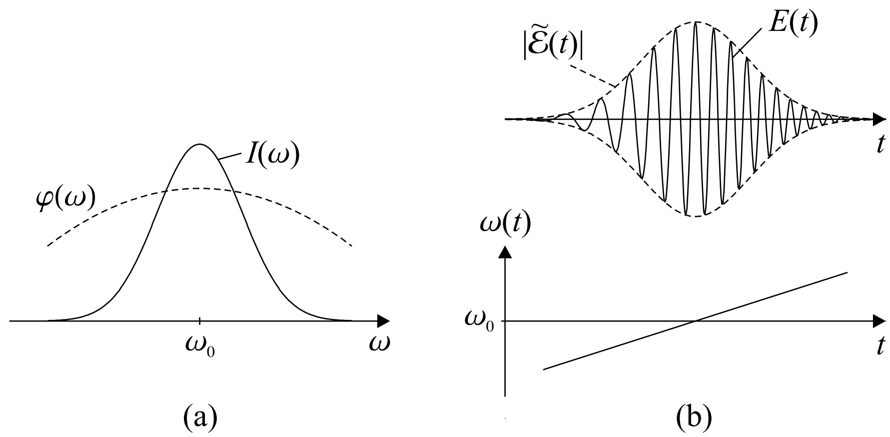
Egy lézerimpulzus leírható a frekvencia-képben vagy az idő-képben. A lineáris, diszperzív közegben való impulzusterjedés leírására gyakrabban használatos a frekvencia-kép. Itt, és a továbbiakban is, lineárisan polarizált impulzusokat tekintünk, ezért a vektoriális helyett az egyszerűbb skaláris jelölést használjuk.

Frekvencia-kép. Tekintsük az impulzus (valós) elektromos térerősségének $E(t)$ időfüggését, amely a monokromatikus komponensek segítségével az alábbi komplex Fourier-integrállal írható le [1–3]:

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega)^{i\omega t} d\omega. \tag{1}$$

Itt $\omega = 2\pi\nu$ a megfelelő spektrális komponens körfrekvenciája,

$$\tilde{E}(\omega) = \left|\tilde{E}(\omega)\right| e^{i\varphi(\omega)} \tag{2}$$



1. ábra. Spektrális intenzitáseloszlás és fázis (a), illetve elektromos térerősség és pillanatnyi frekvencia (b) egy lineáris frekvencia-modulációval rendelkező impulzusnál. A (b) esetben a szaggatott vonal a lassan változó burkolót jelöli.

a komplex térerősség-spektrum, $\varphi(\omega)$ a spektrális fázis. $E(t)$ valós, ezért $\varphi(\omega) = -\varphi(-\omega)$. $I(\omega) = c\varepsilon_0 n(\omega)|\tilde{E}(\omega)|^2/\pi$ a spektrális intenzitáseloszlás (1.a ábra), ahol c a vákuumbeli fénysebesség, ε_0 a vákuum-permittivitás, $n(\omega)$ a törésmutató. A komplex időfüggő térerősséget így definiáljuk:

$$\tilde{E}(t) = \frac{1}{\pi}\int_0^\infty \tilde{E}(\omega)e^{i\omega t}d\omega. \tag{3}$$

Ekkor $E(t) = \mathrm{Re}[\tilde{E}(t)]$.

Az általunk tekintett esetekben az impulzusok spektrális szélessége sokkal kisebb a bennük előforduló komponensek frekvenciájánál. Ekkor hasznos bevezetni az

$$\omega_0 = \frac{\int_0^\infty \omega I(\omega)d\omega}{\int_0^\infty I(\omega)d\omega} \tag{4}$$

összefüggéssel definiált központi frekvenciát. Az impulzusok fázisszerkezetének jellemzésénél gyakran célszerű a $\varphi(\omega)$ fázist ω_0 körül sorbafejteni:

$$\varphi(\omega) \quad = \quad \varphi(\omega_0) + \varphi' \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\varphi'' \cdot (\omega - \omega_0)^2 + \ldots, \tag{5}$$

$$\varphi' = \left.\frac{d\varphi}{d\omega}\right|_{\omega_0}, \ \varphi'' = \left.\frac{d^2\varphi}{d\omega^2}\right|_{\omega_0}, \ \ldots$$

Az impulzusterjedés szempontjából egy lineáris, diszperzív közeg az $A(\omega)e^{-i\Phi(\omega)}$ átviteli függvénnyel írható le. A közegben való terjedés során megváltozik a spektrális komponensek amplitúdóeloszlása az $A(\omega)$ amplitúdóátvitellel, valamint a kezdeti $\varphi(\omega)$ fázisuk eltolódik a $\Phi(\omega)$ fázisátvitellel. Egy z vastagságú, $k(\omega) = \omega \cdot n(\omega)/c$ diszperziójú közegen való áthaladásnál $\Phi(\omega) = k(\omega)z$. A közegen való áthaladás után a térerősség így írható:

$$E(t) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} A(\omega)\left|\tilde{E}(\omega)\right| e^{i[\varphi(\omega)-\Phi(\omega)]}e^{i\omega t}d\omega. \tag{6}$$

A $\Phi(\omega)$ fázisátvitel (5)-hez hasonló sorfejtésében Φ' a csoportkésleltetés, Φ'' pedig a csoportkésleltetés-diszperzió. Ha a magasabbrendű deriváltak elhanyagolhatók, Φ' megadja azt az időt, amely alatt az ω_0 központi frekvenciájú impulzus áthalad a közegen, Φ'' pedig az impulzus időbeli kiszélesedéséért felelős.

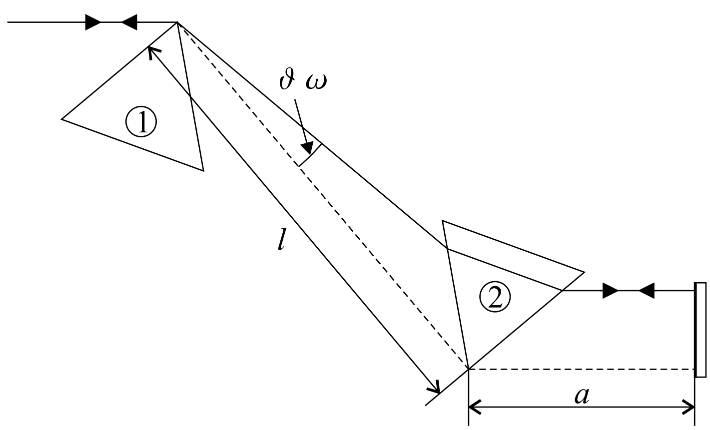
Idő-kép. Az időbeli leírásnál szokás bevezetni az

$$\tilde{E}(t) = \tilde{\mathcal{E}}(t)e^{i\omega_0 t} = \left|\tilde{\mathcal{E}}(t)\right| e^{i\varphi(t)}e^{i\omega_0 t} \tag{7}$$

összefüggéssel definiált $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ komplex térerősség-burkolót (1.b ábra), illetve $\varphi(t)$ időfüggő fázist, ahol ω_0 célszerűen a (4) egyenlettel adott központi frekvencia. Ez a leírás akkor hasznos, ha $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ az egy optikai ciklusnak megfelelő $T = 2\pi/\omega_0$ időtartományon csak kismértékben változik (lassan változó burkoló), ami az ω_0 bevezetésénél említett spektrális feltétel idő-képbeli megfelelője.

Az időfüggő fázis segítségével definiálható az impulzus pillanatnyi frekvenciája:

$$\omega(t) = \frac{d}{dt}[\omega_0 t + \varphi(t)] = \omega_0 + \frac{d\varphi}{dt}. \tag{8}$$



2. ábra. Prizmás impulzuskompresszor.

A fenti összefüggés alapján szemléletes jelentés adható a

$$\begin{aligned} \varphi(t) &= \varphi(t_0) + \dot{\varphi} \cdot (t - t_0) + \frac{1}{2}\ddot{\varphi} \cdot (t - t_0)^2 + \ldots, \\ & \dot{\varphi} = \left.\frac{d\varphi}{dt}\right|_{t_0}, \ \ddot{\varphi} = \left.\frac{d^2\varphi}{dt^2}\right|_{t_0}, \ \ldots \end{aligned} \tag{9}$$

sorfejtésben szereplő deriváltaknak. (A sorfejtésnél t_0 célszerűen az impulzus intenzitásmaximumához tartozó időpont.) Az első derivált frekvenciaeltolást jelent; a második a lineáris frekvencia-moduláció, az angol nyelvű szakirodalom kifejezésével a lineáris *chirp*. A magasabbrendű tagok nemlineáris frekvencia-modulációt jelentenek.

A továbbiakban a valós és a komplex mennyiségek jelölésbeli megkülönböztetését elhagyjuk, térerősségen mindig komplex térerősséget értünk.

1.2. A prizmapár, mint diszperzív elem

A femtoszekundumos optikában gyakran alkalmazott lineáris diszperzív elem a prizmapár (2. ábra). Egyik legelterjedtebb alkalmazásában impulzuskompresszorként szolgál [4–6].

A prizma üvegének anyagi diszperziója a prizma ék alakja miatt szögdiszperzióhoz vezet. Az első prizmába belépő impulzus egyes monokromatikus komponensei különböző szögek alatt hagyják el a prizmát. Az elsővel megegyező törőszögű és anyagú, 180°-kal elfordított helyzetű második prizma párhuzamosítja a spektrális komponensek útját. Egy tükörről visszaverődve a spektrális komponensek visszafelé újból befutják a már megtett utat.

A prizmapár teljes körbejárásra vonatkozó fázisátviteli függvényét Martinez a következő formulával adta meg [4, 5]:

$$\Phi(\omega) = \frac{\omega}{c} 2\{l \cos[\vartheta(\omega)] + a\}. \tag{10}$$

Itt l a prizmacsúcsok közötti távolság, $\vartheta(\omega)$ az ω frekvenciájú fénysugár és a prizmacsúcsokat összekötő egyenes által bezárt szög, a a második prizma csúcsának távolsága a tükörtől. A fenti összefüggés alapján a fázistolás deriváltjaira az alábbi kifejezések adódnak:

$$\Phi' = \frac{2l}{c}\left[\cos(\vartheta) - \omega\frac{d\vartheta}{d\omega}\sin(\vartheta)\right] + \frac{2a}{c}, \tag{11}$$

$$\Phi'' = -\frac{2l}{c}\left[\left(2\frac{d\vartheta}{d\omega} + \omega\frac{d^2\vartheta}{d\omega^2}\right)\sin\vartheta + \omega\left(\frac{d\vartheta}{d\omega}\right)^2\cos\vartheta\right]. \tag{12}$$

Ha ϑ kicsi, azaz ha a fénysugarak közel mennek a második prizma csúcsához, Φ'' kifejezésében a $\sin\vartheta$-ás tag elhanyagolható a $\cos\vartheta$-ás mellett, és a csoportsebesség-diszperzió negatív. Mivel az optikai anyagok csoportkésleltetés-diszpeziója általában pozitív, prizmapár használatával lehetőség van optikai elemek anyagi diszperziójának kompenzálására, impulzuskompresszióra. A kis ϑ esetén érvényes

$$\Phi'' \approx -\frac{2l}{c}\omega\left(\frac{d\vartheta}{d\omega}\right)^2\cos\vartheta \tag{13}$$

kifejezésből látható, hogy a negatív Φ'' az első prizma szögdiszperziójának köszönhető. A második prizma csak párhuzamosítja a sugarakat, illetve pozitív csoportkésleltetés-diszperziót hoz be azáltal, hogy anyagán keresztülhaladnak a fénysugarak.

2. Frekvenciakétszerezés

A következőkben a frekvenciakétszerezés néhány alapvető összefüggésének áttekintése után röviden bemutatom a monokromatikus lézerfény megnövelt hatékonyságú frekvenciakétszerezésére kifejlesztett kétutas elrendezést, amely alapját képezi a dolgozatomban vizsgált diszperziókompenzált kétutas módszernek is. Végül rátérek a rövid impulzusok, illetve szélessávú hangolható lézerek frekvenciakétszerezésének alapvető problémáira és néhány, a leküzdésükre kifejlesztett diszperziókompenzált elrendezés bemutatására.

2.1. Egyutas frekvenciakétszerezés

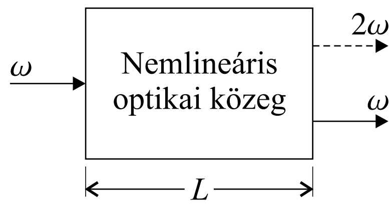
Frekvenciakétszerezés [7–10] (3. ábra) szimmetriacentrummal nem rendelkező optikai közegben lehetséges, ha a $\overline{d}$ effektív nemlineáris együttható nemzéró. A másodharmonikus mező $E_{2\omega} = \mathcal{E}_{2\omega} e^{i(k_{2\omega} z - 2\omega t)}$ térerősségének $\mathcal{E}_{2\omega}$ amplitúdóját az *állandó alapharmonikus térerősség közelítésben* a következő összefüggés adja [10]:

$$\mathcal{E}_{2\omega}(z) = i\omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_{2\omega}}} \overline{d} \mathcal{E}_{\omega}^2(0) z \operatorname{sinc}\left(\frac{\Delta k z}{2}\right) e^{i\Delta k z/2}. \tag{14}$$

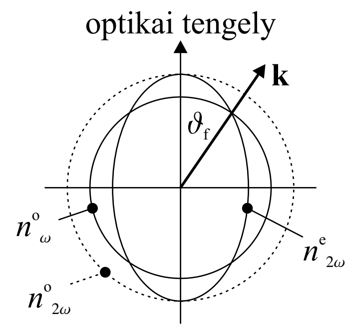
Itt $\mathcal{E}_{\omega}^2(0)$ az alapharmonikus térerősség a közegbe való belépésnél ($z = 0$). A sinc függvény definíciója: $\operatorname{sinc}(x) = \sin(x)/x$ ha $x \neq 0$, és $\operatorname{sinc}(0) = 1$.

$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c}[n(\omega) - n(2\omega)] \tag{15}$$

a hullámvektor-elcsúszás. L hosszúságú közegen való áthaladásnál a $\Delta k L$ mennyiség az ún. relatív fázistolás, ami az ω és a 2ω frekvenciájú komponensek között fellépő fáziskülönbséget fejezi ki. Megjegyezzük, hogy Δk tekinthető akár az ω alapharmonikus, akár a 2ω felharmonikus frekvencia függvényének is. Az állandó alapharmonikus térerősség közelítés kis konverziós hatásfok esetén érvényes, amikor $\mathcal{E}_{\omega}(z) \approx \mathcal{E}_{\omega}(0)$.



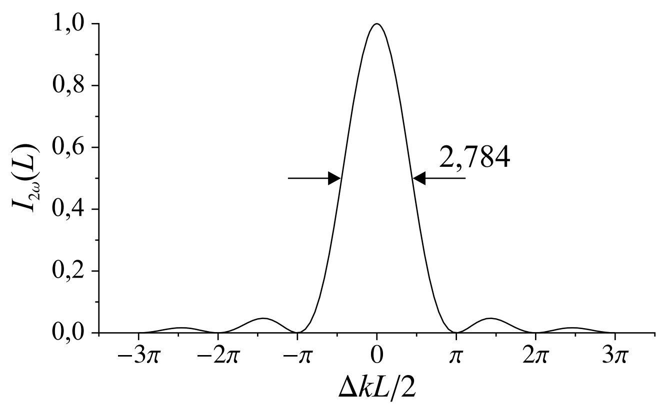
3. ábra. A frekvenciakétszerezés sémája.



4. ábra. Index-ellipsziodok negatív egytengelyű kristály esetében. ϑ_{f} a fázisillesztési irány.

$|\mathcal{E}_{2\omega}|$ maximális, ha $\Delta k = 0$, azaz ha az alap- és a felharmonikus a teljes kölcsönhatási szakaszon „fázisban van"; ez az ún. fázisillesztés. Fázisillesztésnél az egyes elemi, igen rövid Δz hosszúságú szakaszokon keltett felharmonikus térerősségek egymást maximálisan erősítve adódnak össze a közeg teljes hosszában. A fázisillesztési feltétel teljesíthető pl. kettőstörő kristályokban az alapharmonikus sugár haladási irányának és polarizációjának alkalmas megválasztásával. A 4. ábra a negatív egytengelyű kristályok esetében mutatja az ún. I. típusú (vagy ooe) fázisillesztést. Az alapharmonikus az ordinárius hullámterjedésnek megfelelő polarizációval lép be a kristályba, az optikai tengellyel ϑ_{f} szöget bezárva. A ϑ_{f} fázisillesztési szögnél az n^{o}_{ω} alapharmonikus ordinárius törésmutató éppen megegyezik az$n^{\mathrm{e}}_{2\omega}$ felharmonikus törésmutatóval. $E_{2\omega}$ ekkor extraordinárius polarizációjú lesz.

A (14) egyenlet alapján kiszámolható a másodharmonikus intenzitás egy



5. ábra. A felharmonikus intenzitás függése $\Delta kL/2$-től.

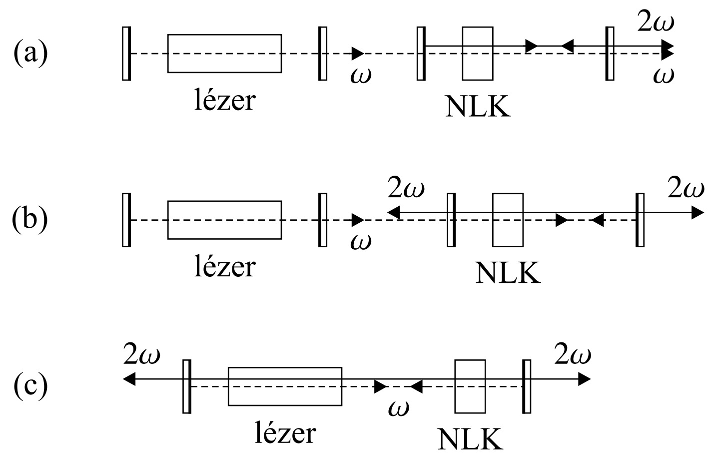
L hosszúságú kristályban [9, 10]:

$$I_{2\omega}(L) = 2\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}^3 \frac{\omega^2 \overline{d}^2}{n^2(\omega)n(2\omega)} I_\omega^2(0) L^2 \mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right). \tag{16}$$

$I_{2\omega}$-t $\Delta kL/2$ függvényében az 5. ábra mutatja. A felharmonikus intenzitás arányos a kristályhossz, illetve az $I_\omega(0)$ alapharmonikus intenzitás négyzetével. A konverziós sávszélesség azonban L-el fordítva arányos.

2.2. Monokromatikus kétutas frekvenciakétszerezés

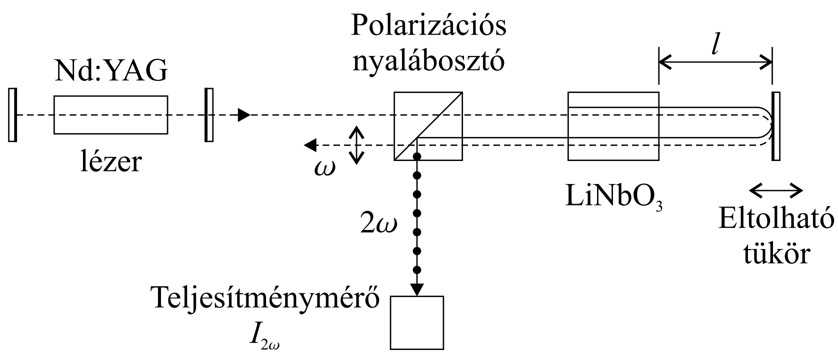
A másodharmonikus hatásfokának növelésére elterjedt technika a rezonátoron belüli frekvenciakétszerezés. A rezonátorból kicsatolható felharmonikus teljesítmény tipikusan öt–tízszerese a rezonátor nélküli 2ω teljesítménynek. A módszernek két fő változata van. Az egyiknél a nemlineáris kristály az alapharmonikust áteresztő, a felharmonikus számára nagy reflexiójú tükrök között van (6.a ábra) [11]. A másik változatnál a kristály alapharmonikus rezonátorban foglal helyet, ami lehet egy külső rezonátor (6.b ábra) [11], vagy maga a lézerrezonátor (6.c ábra) [12]. A rezonátoron belüli frekvenciakétszerezés komoly hátránya, hogy a konverziós hatásfok rendkívül érzékeny a



6. ábra. Rezonátoros frekvenciakétszerezési sémák: külső felharmonikus rezonátorban (a), külső alapharmonikus rezonátorban (b), illetve lézerrezonátoron belül (c). NLK: nemlineáris kristály

rezonátor beállítására: a rezonátor hosszát a hullámhossz tört részének megfelelő pontossággal kell beállítani [13].

A frekvenciakétszerezés hatásfokának rezonátor használata nélküli megnövelésére Yarborough és munkatársai a kétutas frekvenciakétszerezést javasolták [13]. Ennek az elrendezésnek alapvető előnye a rezonátoros módszerrel szemben az, hogy a komponensek beállítása nem kíván interferometrikus pontosságot; az elemek több milliméterrel is eltolhatók anélkül, hogy a konverziós hatásfok számottevően megváltozna. Az elrendezés vázlatát a 7. ábra mutatja. Yarborough és munkatársai egy Nd:YAG lézer 1,06 μm hullámhosszú sugarát egy $LiNbO_3$ nemlineáris kristályon küldték át. Az alapharmonikus a keletkező 0,53 μm-es felharmonikussal együtt egy eltolható tükörről visszaverődve ismét áthaladt a kristályon. A második áthaladásnál keletkező felharmonikus térerősség hozzáadódik az elsőhöz, az elrendezés kimenetén az eredő jelenik meg. A felharmonikus sugarat az alapharmonikustól egy polarizációs nyalábosztó kocka választja el.



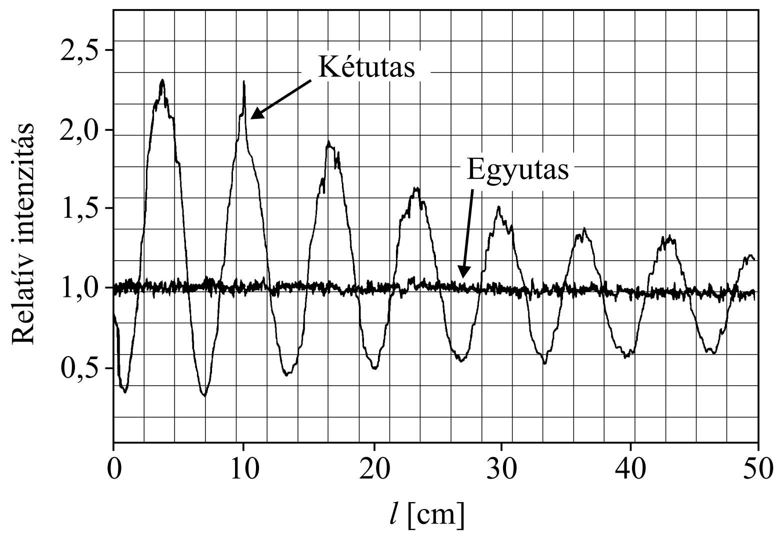
7. ábra. Kétutas frekvenciakétszerezési elrendezés [13].

A kétutas elrendezésben az $I_{2\omega}$ kimenő felharmonikus intenzitás a következő összefüggéssel írható le [13, 14]:

$$I_{2\omega} = \left|E_{2\omega}^{(1)} + E_{2\omega}^{(2)}\right|^2 = \left|E_{2\omega}^{(1)} + AE_{2\omega}^{(1)}e^{i\delta\varphi}\right|^2 = (1 + A^2 + 2A\cos\delta\varphi)I_{2\omega}^{(1)}. \quad (17)$$

Itt $E_{2\omega}^{(1)}$ illetve $E_{2\omega}^{(2)}$ a kristályon való első illetve második áthaladás során keltett felharmonikus térerőssége a kimeneten, $\delta\varphi$ a közöttük lévő fáziskülönbség. $I_{2\omega}^{(1)}$ az egyutas — tehát az $E_{2\omega}^{(1)}$-hez tartozó — felharmonikus intenzitás. Az A faktor $E_{2\omega}^{(2)}$ amplitúdójának $E_{2\omega}^{(1)}$-étől való esetleges különbözőségét írja le, ami származhat pl. reflexiós veszteségektől vagy a lézernyaláb kollimálatlanságából. $I_{2\omega}$ maximális, ha az egyes áthaladások során keltett felharmonikusok a kimeneten fázisban vannak, tehát ha $\delta\varphi = n2\pi$ ($n = 0, 1, 2, \ldots$). A kétutas elrendezéssel ideális esetben ($\delta\varphi = n2\pi$, $A = 1$) az egyutas frekvenciakétszerezéshez képest négyszeres intenzitású felharmonikus mező kelthető.

A levegő diszperzióját kihasználva, a kristály és a tükör l távolságának változtatásával a ϑ fáziskülönbség 29°/cm érzékenységgel változtatható. Ez 5–6 nagyságrenddel kisebb a rezonátoros frekvenciakétszerezés $360°/\lambda$ tükörbeállítási érzékenységénél (λ a rezonátor típusától függően az alap- vagy a felharmonikus hullámhossza). A jelentős különbség oka, hogy a kétutas

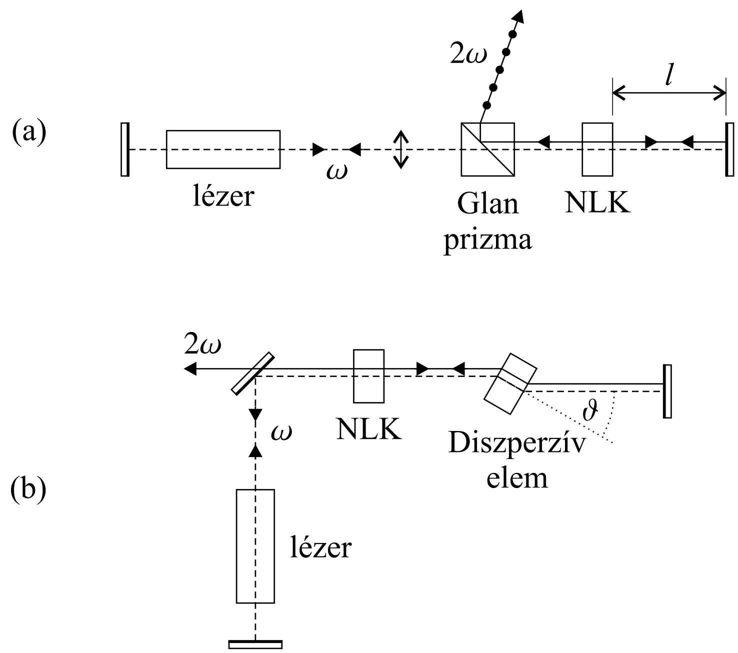


8. ábra. A kétutas frekvenciakétszerezés hatásfoka a tükör l pozíciójának függvényében, az egyutas hatásfokkal összehasonlítva [13].

elrendezésben mind az alap-, mind a felharmonikus ugyanarról a tükörről verődik vissza. A rezonátoros sémákkal ellentétben a tükör mozgatásakor így nem valamelyik harmonikus fáziseltolódása befolyásolja a hatásfokot, hanem csupán az alap- és a felharmonikus közötti relatív fáziseltolódás játszik szerepet.

A 8. ábra a kétutas elrendezéssel mért frekvenciakétszerezési hatásfokot mutatja a tükör helyzetének függvényében, összehasonlítva az egyutas hatásfokkal. Az ideális négyszeres intenzitásnövekedésnél kisebb értékek a kristály felületén fellépő reflexiós veszteségeknek tulajdoníthatók ($A < 1$). A kontraszt csökkenése a tükörtávolsággal ($dA/dl < 0$) a lézernyaláb divergenciájának következménye.

A kétutas frekvenciakétszerezés kombinálható lézerrezonátoron belüli frekvenciakétszerezéssel [15–18]; ekkor a lézerrezonátor egyik tükre mind az alap-, mind a felharmonikus frekvencián nagy reflexiójú. Az elrendezés egyesíti a két módszer előnyeit: a rezonátoron belüli frekvenciakétszerezés nagyobb



9. ábra. Két elrendezés rezonátoron belüli kétutas frekvenciakétszerezésre.

hatásfokát a kétutas módszer nagyobb beállítási toleranciájával. A 9.(a) ábra lineáris elrendezést mutat [15], ahol a felharmonikus kicsatolása egy Glan-prizma segítségével történik. A (b) ábra esetében a kicsatolás a középső tükrön keresztül történik. Az alap- és felharmonikus relatív fázisának változtatása a tükör eltolása helyett a kristály és a tükör közé helyezett diszperzív üveglemez forgatásával is lehetséges [17, 18].

Előrebocsátjuk azonban, hogy az itt vázolt kétutas módszerek szélessávú (hangolható vagy rövid impulzusú) lézerek frekvenciakétszerezésére nem alkalmasak, mert a kristály sávszélességét lényegesen leszűkítik (lásd a 3.3. fejezetet).

2.3. Rövid impulzusok frekvenciakétszerezése

Az ultrarövid impulzusok keltése és mérése terén tapasztalható hatalmas fejlődés reflektorfénybe állította ezen impulzusok frekvenciakonverzióját is. A legszélesebb körben használt, femtoszekundumos impulzusokat előállító források között találjuk a Ti:zafír lézereket. Az általuk keltett impulzusok spektruma a látható tartomány vörös részébe illetve a közeli infravörös tartományba esik. Sok alkalmazás szempontjából viszont kiemelkedő fontosságú a látható spektrum kék széle és a közeli ultraibolya tartomány, amely például a Ti:zafír lézerek impulzusainak frekvenciakétszerezésével érhető el.

Rövid lézerimpulzusok frekvenciakétszerezésénél — a megfelelő hatásfok elérése mellett — alapvető fontosságú, hogy a felharmonikus impulzus időtartama az alapharmonikuséval közel egyező legyen. A folytonos üzemű, monokromatikus lézerek esetében a hatékony frekvenciakétszerezéshez lényegében elegendő a fázisillesztési feltétel teljesítése. Rövid impulzusoknál azonban a széles spektrum és a fázisszerkezet fontossága miatt több más feltételnek is eleget kell tenni ahhoz, hogy a konverzió során az impulzushossz ne nőjön meg lényegesen.

Egy rövid impulzus széles spektrumának minden spektrális komponensére általában nem teljesíthető egyidejűleg a fázisillesztési feltétel [19–22]. A nemlineáris kristály így spektrális szűrőként viselkedik, csökkentve a felharmonikus spektrális szélességet, ami időbeli impulzuskiszélesedéshez vezet (lásd alább). Másrészt a kristálybeli lineáris hullámterjedés következtében a felharmonikus impulzus kiszélesedéséhez vezethet a kristály csoportsebesség-diszperziója is (angol elnevezéssel *intrapulse group-velocity dispersion*). Ez utóbbi kiszélesedés — a kristályok többnyire elegendően kicsi csoportsebesség-diszperziója miatt — csak a legrövidebb, ~20 fs alatti impulzusok esetében számottevő. Egyébként a csoportsebesség-diszperzió a frekvenciakétszerezési elrendezések jelentős részénél megfelelő impulzuskompresszor segítségével kompenzálható, tekintve hogy a kristályok általában normális anyagi diszperzióval rendelkeznek az átlátszósági tartományukon.

A frekvenciakonverzió sávszélesség-limitáló hatásának vizsgálatához tekintsük a (16) egyenlettel megadott felharmonikus intenzitást. A konverzió sávszélességét a $\mathrm{sinc}^2(\Delta k L/2)$ tényező határozza meg, amely Δk-n keresztül függ ω-tól. A frekvenciakétszerezés $\Delta\omega_{\mathrm{NL}}$ sávszélessége így az

$$\frac{L}{2}\Delta k(\omega_\pm) = \pm 1,39 \approx \pm 2\ln 2 \tag{18}$$

összefüggésből határozható meg: $\Delta\omega_{\mathrm{NL}} = |\omega_+ - \omega_-|$, ahol $\omega_\pm$ a $\mathrm{sinc}^2(\Delta k L/2)$ függvény félértékhelyei. Feltesszük, hogy az impulzus ω_0 központi frekvenciáján teljesül a fázisillesztés: $\Delta k(\omega_0) = 0$. Δk diszperzióját ekkor a

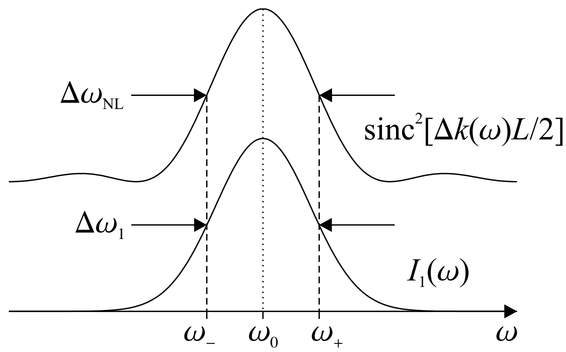
$$\Delta k(\omega) \approx \left.\frac{d\Delta k}{d\omega}\right|_{\omega_0} \cdot (\omega - \omega_0) \tag{19}$$

lineáris kifejezéssel közelíthetjük. Itt Δk-t az ω alapharmonikus frekvencia függvényének tekintettük, ezért $\Delta\omega_{\mathrm{NL}}$ alapharmonikus sávszélességet jelent. Δk fenti közelítése a leggyakrabban használt nemlineáris kristályokra kielégítő pontossággal teljesül, ha a sávszélesség nem túl nagy. Megjegyezzük, hogy kb. 20–30 fs-os impulzusok frekvenciakétszerezésénél, ahol a sávszélsség 30–50 nm, Δk diszperziójában a magasabbrendű tagokat is figyelembe kell venni. Az eddigiek alapján a frekvenciakétszerezés sávszélessége a

$$\Delta\omega_{\mathrm{NL}} \approx \frac{8\ln 2}{L\left|\left.\frac{d\Delta k}{d\omega}\right|_{\omega_0}\right|} \tag{20}$$

kifejezéssel becsülhető, amely természetesen általánosan érvényes, nem csupán impulzusokra.

Látható, hogy a frekvenciakétszerezés sávszélessége fordítva arányos a kristály L hosszúságával. A kristályhosszat elegendően kicsinek választva a



10. ábra. A kristályhossz megfelelő megválasztása esetén a frekvenciakétszerezés $\Delta\omega_{\mathrm{NL}}$ és az alapharmonikus impulzus $\Delta\omega_1$ sávszélessége megegyezik.

frekvenciakétszerezési sávszélesség a kétszerezni kívánt $\Delta\omega_1$ alapharmonikus sávszélességgel egyenlővé, vagy annál nagyobbá tehető. A $\Delta\omega_{\mathrm{NL}} = \Delta\omega_1$ feltételnek (10. ábra) eleget tevő L_{p} kristályhosszra fennáll, hogy

$$L_{\mathrm{p}} \approx \frac{8\ln 2}{\Delta\omega_1} \frac{1}{\left| \frac{d\Delta k}{d\omega}\Big|_{\omega_0} \right|}. \tag{21}$$

Ha figyelembe vesszük, hogy

$$\left.\frac{d\Delta k}{d\omega}\right|_{\omega_0} = 2\left.\frac{dk_\omega}{d\omega}\right|_{\omega_0} - 2\left.\frac{dk_{2\omega}}{d\omega}\right|_{2\omega_0} = 2\left(\frac{1}{u_1} - \frac{1}{u_2}\right), \tag{22}$$

ahol u_1 (u_2) az alapharmonikus (felharmonikus) impulzus csoportsebessége, akkor (21) az alábbi alakban írható:

$$L_{\mathrm{p}} \approx \frac{4\ln 2}{\Delta\omega_1} \frac{1}{\left| \frac{1}{u_1} - \frac{1}{u_2} \right|}. \tag{23}$$

Transzformáció-limitált Gauss intenzitáseloszlású alapharmonikus impulzus esetében a $4\ln 2/\Delta\omega_1$ faktor éppen az impulzus τ_1 időbeli félértékszélességével egyenlő:

$$L_{\mathrm{p}} \approx \frac{\tau_1}{\left| \frac{1}{u_1} - \frac{1}{u_2} \right|}. \tag{24}$$

Ez az összefüggés nem Gauss intenzitáseloszlású, de transzformáció-limitált impulzusokra is jó közelítéssel érvényes.

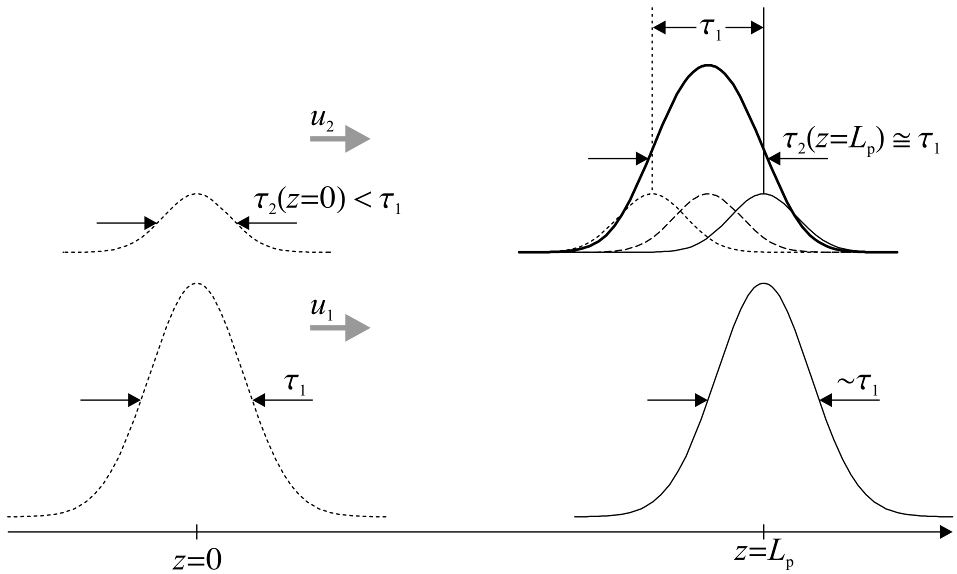
A (24) kifejezés segítségével, az u_1 és u_2 csoportsebességek különbözőségén alapuló szemléletes megfogalmazás adható a $\Delta\omega_{\mathrm{NL}} = \Delta\omega_1$ feltételnek az időképben is. Az alapharmonikus impulzus az u_1 csoportsebességgel végighalad az L_{p} vastagságú nemlineáris közegen (11. ábra). A kristályba lépés pillanatában keletkező felharmonikus impulzus az u_1-től általában különböző u_2 csoportsebességgel halad végig a kristályon, így az alapharmonikus impulzustól egyre jobban eltávolodik. Az alapharmonikus impulzus kristályból való kilépésének pillanatában a belépéskor, illetve a kilépéskor keltett felharmonikus impulzusok közötti késés

$$\Delta t = \left| \frac{L_{\mathrm{p}}}{u_1} - \frac{L_{\mathrm{p}}}{u_2} \right| = \tau_1. \tag{25}$$

A teljes kristályhossz befutása során az egyes rövid útszakaszokon keltett felharmonikus impulzusok a kimenetet tehát τ_1 időbeli szórással érik el; az eredő felharmonikus impulzus időtartamát jó közelítéssel τ_1 adja. Az L_{p} kristályhosszra $\tau_2 \approx \tau_1$ teljesül. A (24) összefüggés nagyon rövid ($\tau <\sim 20$ fs) impulzusokra nem érvényes, mert ott a csoportsebesség-diszperzió a lineáris terjedésnél is jelentős kiszélesedést okoz.

2.4. Diszperziókompenzált frekvenciakétszerezés

Az előző pontban láttuk, hogy a nemlineáris kristály ΔkL relatív fázistolásának elsőrendű diszperziója korlátozza a konverziós sávszélességet. A hagyományos, fázisillesztésen alapuló frekvenciakétszerezési módszereknél [23] ezért impulzusok esetében legfeljebb L_{p} hosszúságú kristály használható. Néhányszor 10 fs időtartamú impulzusoknál ez tipikusan 100μm körüli kristályhosszat jelent [24–27]. Ilyen vékony kristályok alkalmazása viszont je-



11. ábra. A felharmonikus impulzus kiszélesedése a csoportsebesség-diszperzió következtében egy L_p hosszúságú kristályban.

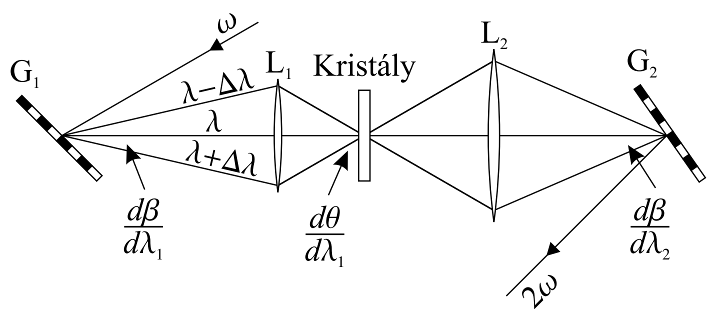
lentősen csökkenti a konverziós hatásfokot, amely a kristályhossz négyzetével arányos.

Egyik lehetséges megoldás a rezonátoron belüli frekvenciakétszerezés [24, 28], amelyet a monokromatikus eset kapcsán a 2.2. pontban már említettünk. A rezonátoron belüli alapharmonikus csúcsintenzitás tipikusan mintegy tízszerese a lézer kimeneti csúcsintenzitásának [24], ami jelentősen megnöveli a konverziós hatásfokot. A módszer komoly hátránya a nagy beállítási érzékenység: a konverziós hatásfok jelentősen csökken a rezonátor hosszának a hullámhossz tört részével való megváltoztatásakor.

A frekvenciakétszerezés hatékonyságát növelő elrendezések másik csoportja a diszperzió kompenzálásának elvén alapul, amellyel a kristály frekvenciakétszerezési sávszélessége növelhető meg. Ez vastagabb kristály használatát teszi lehetővé, így növelve a konverziós hatásfokot. Az alap- és felharmonikus közötti relatív fáziseltolódás kompenzálásával elérhető, hogy a frekvenciakétszerezési sávszélesség átfogja egy rövid impulzus teljes spektrumát. Ezen túlmenően az elrendezésnek azonban azt a feltételt is ki kell elégítenie, hogy az alapharmonikus impulzus időtartama megőrződjön.

A fázisillesztés széles spektrális tartományon való biztosítására Saikan javasolt egy szögdiszperzión alapuló módszert, eredetileg hangolható festéklézerek szélessávú frekvenciakétszerezése céljából [29, 30]. A módszer lényege, hogy megfelelő szögdiszperzió bevezetésével minden egyes alapharmonikus spektrális komponens a neki megfelelő fázisillesztési szög alatt halad át a kristályon (lásd még [31–33]). Martinez [34], valamint Szabó és Bor [35] hasonló, szögdiszperzión alapuló elrendezést fejlesztettek ki femtoszekundumos impulzusok frekvenciakétszerezésére (12. ábra). Az általuk javasolt elrendezésben optikai rács szögdiszperzióját felhasználva értek el elsőrendű relatív fáziskompenzációt; más szóval a központi frekvencián a fázisillesztés mellett az alap- és felharmonikus csoportsebességek illesztése is teljesült. Ennek eredményeképpen a kristályhossz jelentősen megnövelhető, és pl. 20 fs-os impulzusok 497 nm központi hullámhosszal frekvenciakétszerezhetők 1 mm vastagságú BBO kristályban. A módszer hátránya, hogy a rács veszteségei csökkentik a konverziós hatásfokot. Egyidejű fázis- és csoportsebesség-illesztés nem-kollineáris frekvenciakétszerezésnél is elérhető, ha az alapharmonikus impulzust előbb prizma segítségével spektrálisan szétbontjuk [36]. Ez a módszer azonban csak bizonyos típusú nemlineáris kristályokkal működik.

A diszperziókompenzált frekvenciakonverzió egy nem szögdiszperzión alapuló változatánál, ahol két ellentétes előjellel fázismodulált impulzus kelt felharmonikust, elvileg lehetőség van a relatív fázis magasabbrendű kompenzációjára is [37]. Kísérleti úton eddig az elsőrendű kompenzácót demonstrálták [38].



12. ábra. Nemlineáris kristály diszperziójának kompenzálása optikai rács szögdiszperziójának segítségével [35].

CÉLKITŰZÉSEK

1. Az első és a második átahaladásnál keltett felharmonikusok közötti fáziskülönbség vizsgálatával egyszerű kifejezést adok a diszperzív elemmel bővített kétutas frekvenciakétszerezési elrendezés hatásfokára. Meghatározom a diszperzió-kompenzáció feltételét, valamint az elrendezés konverziós sávszélességét és hatásfokát ideális diszperzió-kompenzáció esetén.

2. A szélessávú diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezés megvalósítására a kétutas elrendezés prizmapárral való kibővítését javaslom. Numerikus számítások segítségével megvizsgálom a prizmapárral bővített elrendezés sávszélességét és hatásfokát.

3. Numerikus számítások segítségével megmutatom, hogy a prizmapárral bővített kétutas elrendezés alkalmas femtoszekundumos impulzusok négyszeres hatékonyságú frekvenciakétszerezésére. Megvizsgálom az alkalmazhatóság határait az impulzusok időtartamának és intenzitásának tekintetében.

ÚJ TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK

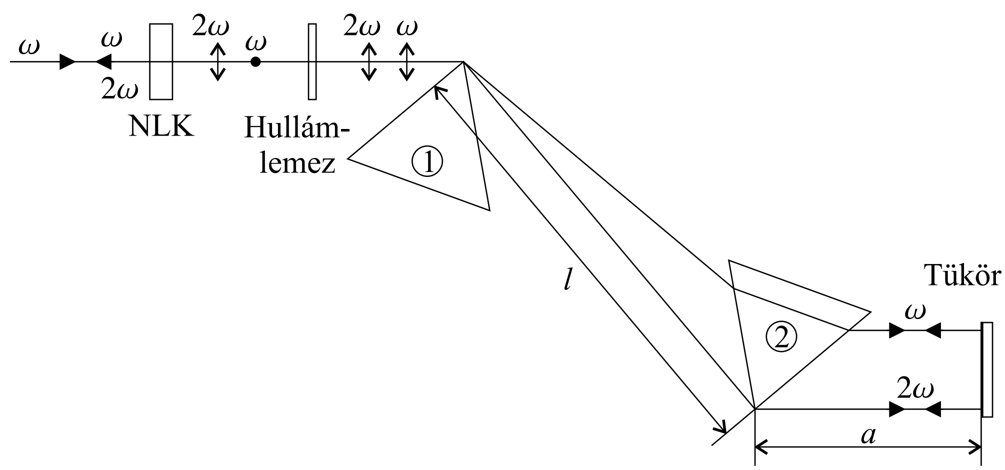
3. Kétutas frekvenciakétszerezés prizmapárral

Ebben a fejezetben bemutatom a diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezés megvalósítására általam javasolt, prizmapárral bővített kétutas elrendezést [39, 40]. Megadom az elrendezés kimeneti felharmonikus térerősségét. Megvizsgálom a módszer teljesítőképességét a konverziós hatásfok, valamint a sávszélesség tekintetében.

3.1. A prizmapárral bővített kétutas frekvenciakétszerezési elrendezés

A szélessávú, megnövelt hatékonyságú frekvenciakétszerezésre általam javasolt módszer az egyszerű kétutas elrendezés [13] prizmapárral való kibővítésén alapul (13. ábra). Szélessávú kétutas frekvenciakétszerezésnél az első és a második áthaladásnál keltett felharmonikusok közötti fáziskülönbségnek a teljes sávszélességen el kell tűnnie. Ezt a fáziskülönbséget a nemlineáris kristály és a tükör közé helyezett diszperzív elemmel — esetünkben a prizmapárral — befolyásolni lehet. A prizmapárral megvalósított diszperziókompenzáció segítségével kiküszöbölhető az egyszerű kétutas elrendezésnél fellépő sávszélesség-csökkenés.

Az elrendezésben a nemlineáris kristály és a tükör között foglal helyet a két egyforma törőszögű és anyagú prizma, amelyek csúcsai egymástól l távolságra vannak. A kristályon való első áthaladásnál keletkező felharmonikus



13. ábra. Prizmapárral bővített kétutas frekvenciakétszerezési elrendezés.

és az alapharmonikus az első prizma csúcsát érintve a prizma szögdiszperziója következtében szétválik, a levegőben és a második prizmában különböző utakat tesznek meg. A második prizma párhuzamosítja az egyes sugarakat, illetve a benne megtett útnak megfelelő anyagi diszperziót hoz be. A párhuzamos, de frekvencia szerint szétválasztott sugarak a tükörről visszaverődve visszafelé is befutják a már megtett utat. Az alapharmonikus a kristályon áthaladva ismét felharmonikust kelt.

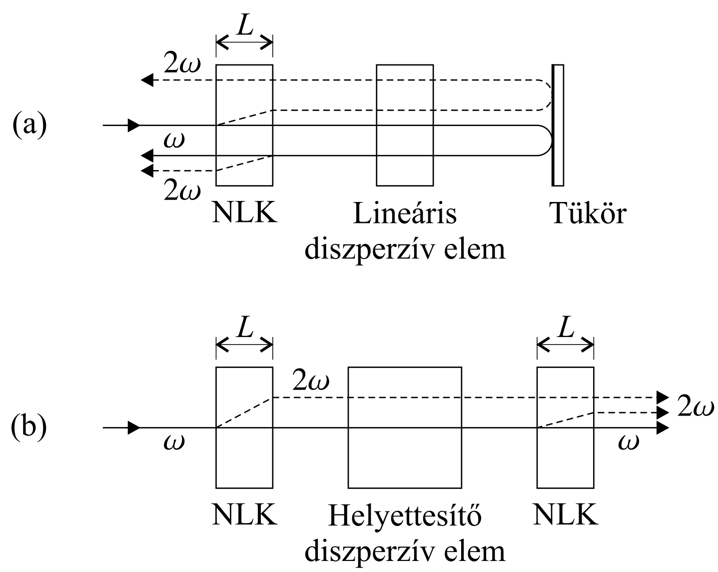
A fénysugarak a prizmapáron oda-vissza áthaladva nyolc levegő-üveg határfelületet kereszteznek, ami számottevő reflexiós veszteséget eredményez. A relatív fáziskompenzáció segítségével megőrzött egyutas sávszélességet a veszteségek ugyan nem befolyásolják, de az elrendezés hatékonysága számottevően romlik. A reflexiós veszteségek az egyik harmonikusra minimalizálhatók, ha a polarizáció a beesési síkban van és a prizmák törőszögét úgy válsztjuk meg, hogy minimális deviáció mellett a beesés Brewster-szögű legyen. Azonban a nemlineáris kristályban például ooe típusú fázisillesztés esetén az ordinárius sugárként haladó alapharmonikus és az extraordinárius felharmonikus egymásra merőleges polarizációjú. Az alapharmonikusra beállított Brewster-feltétel esetén a felharmonikus a beesési síkra merőlegesen polarizált, ami jelentős reflexiós veszteséget jelent.

A kristály és a prizmapár közé helyezett hullámlemez segítségével elérhető, hogy mind az alap- mind a felharmonikus polarizációja a beesés síkjába kerüljön. Egy, az alapharmonikusra $\lambda/2$ retardációjú hullámlemez a felharmonikusra jó közelítéssel λ retardációjú. Az alapharmonikus polarizációját a lemez $90°$-kal elforgatja, míg a felharmonikusét változatlanul hagyja, így a két polarizáció párhuzamos lesz, mindkettő a beesési síkba esik a prizmáknál. Megjegyezzük, hogy a hullámlemez behelyezésével megváltozik a prizmapár diszperzió-kompenzációt biztosító beállítása.

3.2. Felharmonikus térerősség

A kétutas diszprezió-kompenzáció feltételének megadásához szükséges az eredő felharmonikus térerősség ismerete [41]. Ennek felírásához tekintsük a 14.(a) ábrán látható általánosabb sémát, a diszperzív elemmel bővített kétutas elrendezést. A diszperzív elemről és a tükörről a továbbiakban feltesszük, hogy veszteségmentesek. A diszperzív elem fázistolásába beleértünk minden diszperzív hatást, ami egy konkrét elrendezésnél a kristályból való első kilépés és a második belépés között jelentkezik; így esetünkben a prizmapár, a levegő, a hullámlemez fázistolását, valamint a tükrön való visszaverődésnél fellépő fázistolást. A tükörnek így pusztán geometriai szerepe van, és az egész elrendezés helyettesíthető a 14.(b) ábrán látható egyutas, két kristályt tartalmazó elrendezéssel. A helyettesítő diszperzív elem az eredeti diszperzív elemen való kétszeri áthaladás együttes hatását foglalja magában. A továbbiakban gyakran használjuk ezt az egyutas helyettesítő képet is.

A kétutas elrendezés kimenő felharmonikus térerősségének kiszámításához az állandó alapharmonikus térerősség közelítést használjuk. AzL vastagságú



14. ábra. Diszperzív elemmel bővített kétutas frekvenciakétszerezési elrendezés (a), és a vele ekvivalens egyutas elrendezés (b).

kristály egyszeri befutása után a kristályból kilépő felharmonikus térerősséget a (14) egyenlet alapján az

$$E_{2\omega}(L) = i\omega\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_{2\omega}}}\bar{d}L\mathrm{sinc}\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)\mathcal{E}_\omega^2(0)e^{i\Delta kL/2}e^{ik_{2\omega}L} \tag{26}$$

kifejezés adja. Itt $\mathcal{E}_\omega(0) = |\mathcal{E}_\omega(0)|e^{i\varphi_\omega}$ az alapharmonikus komplex amplitúdója a kristály belépési oldalán ($z = 0$). $E_{2\omega}(L) = \mathcal{E}_{2\omega}(L)e^{ik_{2\omega}L}$ a felharmonikus komplex térerőssége (az egyszerűség kedvéért az $e^{-i2\omega t}$ időfüggő tényezőt elhagytuk). A (14) egyenletben nem szereplő $e^{ik_{2\omega}L}$ tényező a kristálybeli lineáris hullámterjedést írja le. A kétutas elrendezés kimenő felharmonikus térerőssége a kristályon való első és a második áthaladás során keletkező felharmonikusok eredője. Amennyiben a diszperzív elem veszteségei, valamint az alapharmonikus nyaláb esetleges divergenciájából származó intenzitáskülönbségek elhanyagolhatók, a kimeneten a két felharmonikus mező amplitúdója egyenlő lesz, és legfeljebb csak a fázisuk különbözik:

$$\begin{aligned} E_{2\omega} &= E_{2\omega}^{(0)}\left[e^{i\varphi_{2\omega}^{(1)}} + e^{i\varphi_{2\omega}^{(2)}}\right] \\ &= E_{2\omega}^{(0)} e^{i\varphi_{2\omega}^{(1)}}\left(1 + e^{i\delta\varphi_{2\omega}}\right) \\ &= 2E_{2\omega}^{(0)} e^{i\varphi_{2\omega}^{(1)}} e^{i\delta\varphi_{2\omega}/2}\cos\left(\frac{\delta\varphi_{2\omega}}{2}\right). \end{aligned} \tag{27}$$

Itt $E_{2\omega}(0)$ a felharmonikusok amplitúdója (egyenlő az L vastagságú kristályban történő egyszeri áthaladás során keletkező felharmonikus amplitúdóval), $\varphi_{2\omega}^{(1)}$ az első, $\varphi_{2\omega}^{(2)}$ a második kristályon való áthaladásnál keletkező felharmonikus fázisa a kimeneten. $\delta\varphi_{2\omega} = \varphi_{2\omega}^{(2)} - \varphi_{2\omega}^{(1)}$ az első és a második áthaladásnál keletkező felharmonikusok közötti fáziskülönbség. (26)-et a fenti képletbe helyettesítve a kétutas elrendezés kimenő felharmonikus intenzitására a következő kifejezés adódik:

$$I_{2\omega} = 4I_{2\omega}^{(0)}\mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)\cos^2\left(\frac{\delta\varphi_{2\omega}}{2}\right), \tag{28}$$

ahol $I_{2\omega}^{(0)} = c\varepsilon_0|E_{2\omega}^{(0)}|^2/2$ az egyutas frekvenciakétszerezés felharmonikus csúcsintenzitása. A diszperzív elemmel bővített kétutas elrendezés konverziós hatásfokának frekvenciafüggését tehát az egyutas frekvenciakétszerezés hatásfokának $\cos^2(\delta\varphi_{2\omega}/2)$ függvénnyel való modulációja adja.

(26) szerint az első áthaladásnál keletkező felharmonikus $\varphi_{2\omega}^{(1)}$ fázisa a kimeneten a következő:

$$\varphi_{2\omega}^{(1)} = \frac{\pi}{2} + 2\varphi_\omega + \frac{\Delta kL}{2} + k_{2\omega}L + \varphi_{2\omega}^{\mathrm{d}} + k_{2\omega}L, \tag{29}$$

ahol φ_ω az alapharmonikus fázisa a kristályba való első belépéskor, a második $k_{2\omega}L$ tag a felharmonikusnak a kristályon való másodszori áthaladásából származó lineáris fázistolás, a $\pi/2$ konstans (26)-ben az i faktortól származik. $\varphi_{2\omega}^{\mathrm{d}}$ a diszperzív elemen való oda-vissza haladás (vagy a helyettesítő diszperzív elemen való teljes végighaladás) során fellépő fázistolás. A kristályon való második áthaladás során keletkező felharmonikus $\varphi_{2\omega}^{(2)}$ fázisa az elrendezés kimenetén (26) szerint az alapharmonikus fázisától függ a kristályon való egyszeri és a diszperzív elemen való oda-vissza haladás után:

$$\varphi_{2\omega}^{(2)} = \frac{\pi}{2} + 2\left(\varphi_\omega + k_\omega L + \varphi_\omega^{\mathrm{d}}\right) + \frac{\Delta k L}{2} + k_{2\omega} L. \tag{30}$$

Az alapharmonikus fázisát a kristályba való másodszori belépés előtt a zárójelben lévő tagok adják. A (29) és (30) egyenletek alapján az első és a második áthaladás során keletkező felharmonikusok $\delta\varphi_{2\omega}$ fáziskülönbségére a következőt kapjuk:

$$\begin{aligned}
\delta\varphi_{2\omega} &= \varphi_{2\omega}^{(2)} - \varphi_{2\omega}^{(1)} \\
&= (2k_\omega - k_{2\omega})L + (2\varphi_\omega^{\mathrm{d}} - \varphi_{2\omega}^{\mathrm{d}}) \\
&= \Delta k L + \Delta\varphi^{\mathrm{d}}. \qquad (31)
\end{aligned}$$

A fáziskülönbség két relatív fázis összegeként írható, az egyik a kristályban való lineáris terjedéstől, a másik a diszperzív elemen való áthaladásból származik.

3.3. Diszperzió-kompenzáció és sávszélesség

Az eredő felharmonikus térerősség, illetve intenzitás ismeretében most már pontosan megadható a diszperzív elemmel bővített kétutas elrendezésre a diszperzió-kompenzáció feltétele, valamint a sávszélesség. A (28) összefüggés alapján világos, hogy adott kristályhossz mellett valamely ω frekvencián a kétutas felharmonikus intenzitás maximális, ha $\delta\varphi_{2\omega} = 0$ $(\pm n2\pi;\ n = 1, 2, \ldots)$ teljesül. Ekkor $\cos^2(\delta\varphi_{2\omega}/2) = 1$; az első és a második áthaladásnál keletkező felharmonikusok a kimeneten egymást maximálisan erősítve találkoznak, és a kétutas elrendezés felharmonikus intenzitása négyszerese a kristályon való egyszeri áthaladással kelthető felharmonikusénak.

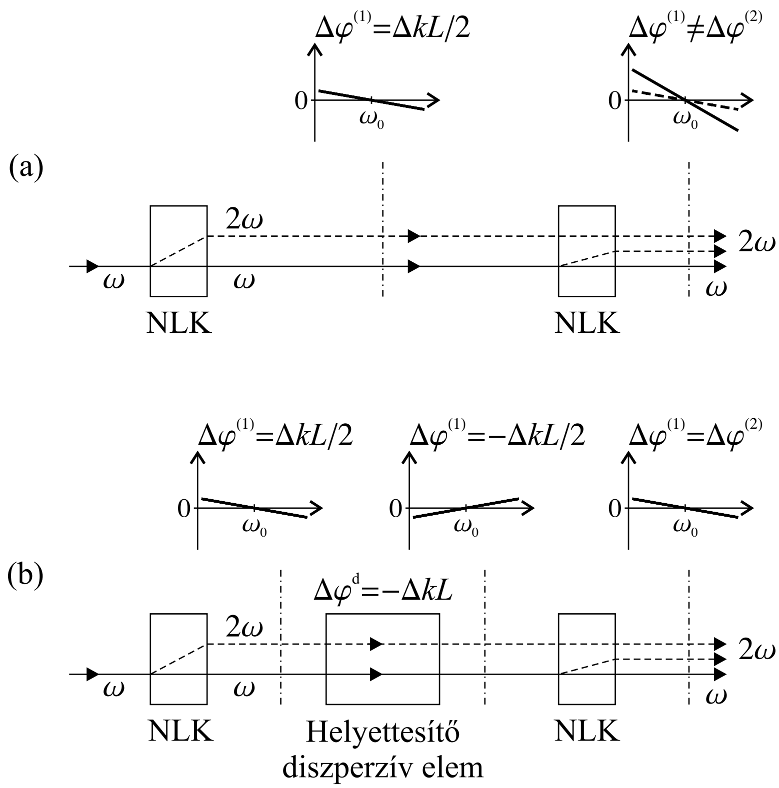
Szélessávú frekvenciakétszerezés esetében a $\delta\varphi_{2\omega} = 0$ feltételnek a kristály teljes (egyutas) frekvenciakétszerezési sávszélességén — az ω_0 fázisillesztési frekvencia körüli $\Delta\omega_{\mathrm{NL}} \approx 8\ln 2/(L|\Delta k'|)$ szélességű frekvenciatartományon — teljesülnie kell. A (31) összefüggés értelmében ez akkor áll fenn, ha a diszperzív elem $\Delta\varphi^{\mathrm{d}}$ relatív fázistolása éppen egyenlő nagyságú, de ellentétes előjelű a nemlineáris kristály ΔkL relatív fázistolásával, azaz ha a diszperzív elem relatív diszperziója éppen kompenzálja a kristályét. Ekkor a kristály egyutas frekvenciakétszerezési sávszélessége megőrződik a kétutas elrendezésben, és a felharmonikus intenzitás a teljes konverziós tartományon megnégyszereződik. A prizmapárral bővített elrendezésben tehát a prizmapár paramétereit úgy kell megválasztani, hogy a

$$\Delta kL + \Delta\varphi^{\mathrm{d}} = 0 \tag{32}$$

relatív fáziskompenzációs feltételt a lehető legjobban megközelítse.

A kétutas relatív fáziskompenzáció elvét jól szemlélteti a kétutas elrendezés összehasonlítása a kétszeres hosszúságú kristályban történő egyutas frekvenciakétszerezéssel. Célszerű az összehasonlításhoz a kétutas elrendezés 3.2. pontban bevezetett helyettesítő sémáját tekinteni; valamint ehhez hasonlóan a $2L$ hosszúságú kristályt két különálló L hosszú részre bontani, amelyek között vákuum van (15. ábra). Ez utóbbi tekinthető diszperzív elem nélküli kétutas elrendezésnek is.

Tekintsük először a diszperzív elem nélküli esetet (15.a ábra). Az első áthaladásnál keltett felharmonikus alapharmonikushoz viszonyított $\Delta\varphi^{(1)} = 2\varphi_\omega - \varphi_{2\omega}^{(1)}$ relatív fázisa a második áthaladás előtt a (26) összefüggés alapján $\Delta kL/2$ (a $\pi/2$ konstans itt elhagyható); ehhez adódik a másodszori áthaladásnál ΔkL. A második áthaladásnál keltett felharmonikus relatív fázisa a kimeneten $\Delta\varphi^{(2)} = \Delta kL/2$. A felharmonikusok közötti $\delta\varphi_{2\omega}$ fáziskülönbség így ΔkL. Hasonló gondolatmenettel végigkövethető a relatív fázisok ala-

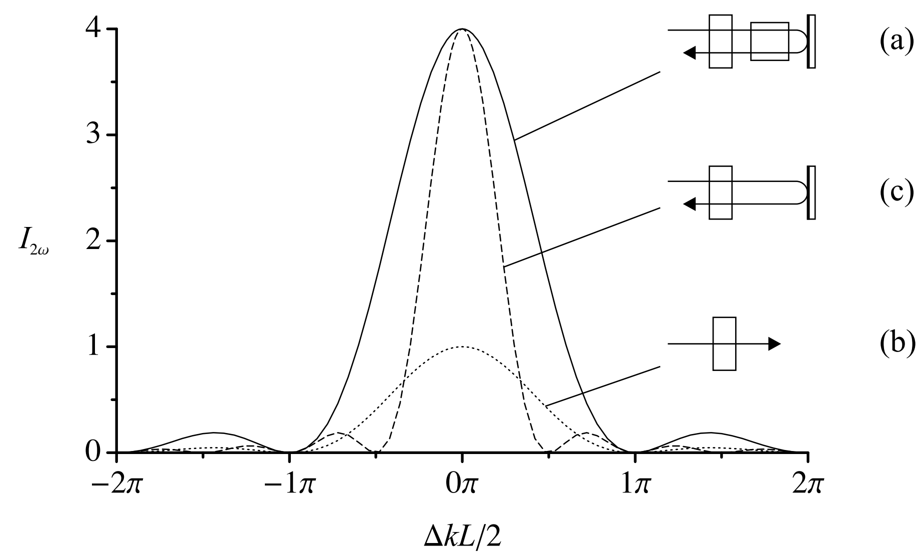


15. ábra. Az alap- és a felharmonikus közti $\Delta\varphi$ relatív fázis frekvenciafüggésének változása az egyes optikai elemeken való áthaladás során. (a): diszperzív elem nélküli kétutas elrendezésben, (b): a diszperzív elemmel bővített kétutas elrendezésben tökéletes relatív fáziskompenzálás esetén. Az ábra mindkét esetben az ekvivalens egyutas elrendezést mutatja. Mindegyik kristály azonos L hosszúságú.

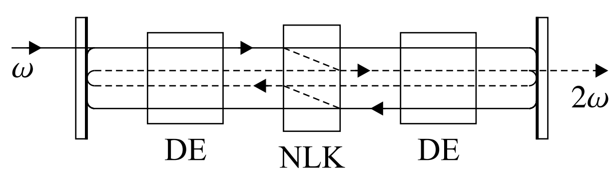
kulása a diszperziókompenzált elrendezésnél is (15.b ábra). Tökéletes kompenzációnál $\Delta\varphi^{\mathrm{d}} = -\Delta kL$, és a kimeneten $\delta\varphi_{2\omega} = \Delta\varphi^{(1)} - \Delta\varphi^{(2)} = 0$; a két áthaladásnál keltett felharmonikusok fázisban vannak. A kétutas diszperziókompenzáció tehát a relatív fázis két áthaladás közti alkalmas eltolásán alapul.

A 16. ábra a felharmonikuskeltés sávszélességével kapcsolatos megállapításokat foglalja össze, összehasonlítva három, azonos L kristályhosszú elrendezést. A diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezés (a) sávszélessége megegyezik az egyutas frekvenciakétszerezés sávszélességével, a felharmonikus intenzitás pedig négyszerese az egyutasénak (b). A diszperzív elem nélküli kétutas elrendezés (c) — amely egyenértékű a kétszeres hosszúságú kristályban történő egyutas frekvenciakétszerezéssel — megnégyszerezi ugyan a felharmonikus csúcsintenzitást az L hosszú kristálybeli egyutas módszerhez képest, de a sávszélesség közben a felére csökken. Szélessávú vagy rövid impulzusú frekvenciakétszerezés hatékonyságának növelésére tehát a diszperziókompenzált módszer alkalmas.

Itt jegyezzük meg, hogy a diszperziókompenzált kétutas elrendezés többutassá bővíthető például úgy, hogy közös alap- és felharmonikus rezonátorba helyezzük, és kibővítjük egy második diszperzív elemmel (17. ábra). Mindkét diszperzív elemre a (32) kompenzációs feltétel érvényes. A rezonátort az alapharmonikusra beállítva a relatív fáziskompenzáció miatt automatikusan teljesül a rezonancia feltétele a felharmonikusra is. Ha az alapharmonikus a kristályon N-szer halad át, a felharmonikus intenzitás N^2-szer nagyobb az egyutasénál. Ez az elrendezés főleg vékonyabb kristályoknál lehet hasznos, ahol az alapharmonikus gyengülése viszonylag nagy N-értékekre sem számottevő.



16. ábra. A diszperziókompenzált kétutas elrendezés (a) sávszélessége az egyutas (b) és a diszperzív elem nélküli kétutas (c) elrendezésekkel összehasonlítva.



17. ábra. Diszperziókompenzált többutas elrendezés közös alap- és felharmonikus rezonátorban. DE: diszperzív elem.

4. Szélessávú diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezés

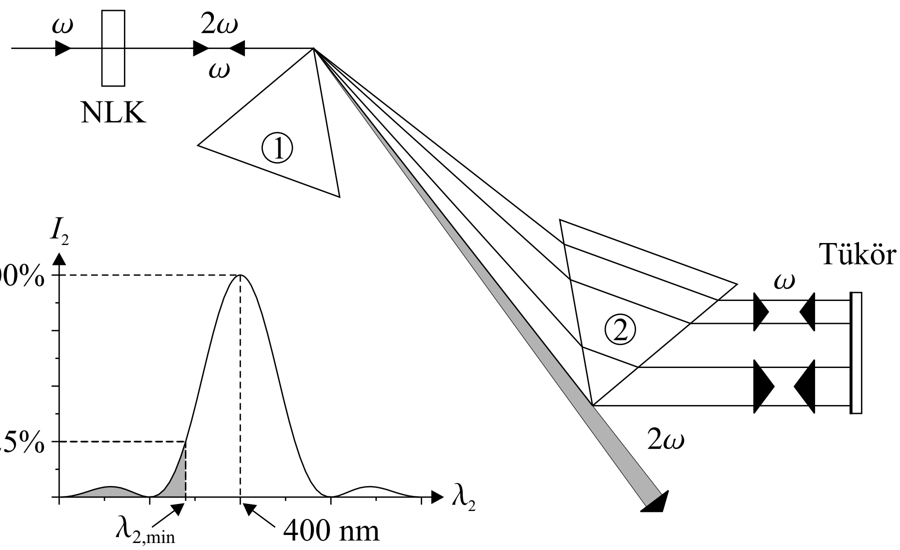
Az előző fejezetben megadtam a diszperzió-kompenzáció feltételét a diszperzív elemmel bővített kétutas elrendezésre. Ebben a fejezetben numerikus számítások segítségével megmutatom, hogy a prizmapárral bővített kétutas elrendezéssel biztosítható a diszperzió-kompenzáció, és a módszer alkalmas megnövelt hatékonyságú szélessávú frekvenciakétszerezésre [40].

A számolásokat a 3.2. pontban tárgyaltak szerint, saját fejlesztésű számítógépprogrammal végeztem. A frekvenciakétszerezés leírására az állandó alapharmonikus térerősség közelítést alkalmaztam. A sugárkövető program az egyes optikai elemek fázistolását lineáris hullámterjedésnél $\varphi(\omega) = \omega n(\omega) d/c$ szerint számolja, ahol d a közegben megtett geometriai út és n a törésmutató. A reflexiós és egyéb veszteségeket, valamint az alapharmonikus nyaláb esetleges kollimálatlanságát elhanyagoltam; ebből következően az első és a második áthaladásnál keltett felharmonikusok intenzitása egyenlő volt.

A nemlineáris kristályt β-BaB_2O_4 (BBO) típusúnak választottam, amely frekvenciakétszerezésre széles körben használt negatív egytengelyű kristály. Az alapharmonikus merőlegesen esett a kristályra, amelyben 800 nm-re ooe-típusú fázisillesztés teljesült. Az ordinárius és az extraordinárius energiaterjedési irányok közötti eltérés következtében az alap- és a felharmonikus sugarak a kristályt egymáshoz képest oldalirányban kissé eltolódva hagyják el. Ez az angol nyelvű szakirodalomban *walk-off*-nak nevezett jelenség a kis kettőstörési szög $(3,7^\circ)$ miatt a szélessávú frekvenciakétszerezés szempontjából fontos vékony kristályokra elhanyagolható. Mivel az itt bemutatott számítások elsődleges célja a prizmapár relatív fáziskompenzációjának vizsgálata volt, a hullámlemez hatását elhanyagoltam. Az impulzusok frekvenciakétszerezésének tárgyalásánál, a következő fejezetben azonban a hullámlemez fázistolását is figyelembe vettem.

A két egyforma prizma anyagát kvarcüvegnek választottam. Az első prizmán a beesési szög a 800 nm-es alapharmonikushoz tartozó Brewster-szöggel volt egyenlő, a beeső nyaláb a prizmának éppen a csúcsát érintette. A prizmák törőszöge $69,1°$-nak adódott abból a feltételből, hogy a Brewster-szög alatt beeső 800 nm-es sugár minimális deviációban haladjon át a prizmákon. Ez a feltétel az itt egyébként elhanyagolt reflexiós veszteségeket minimalizálja. Az elsővel párhuzamos oldalú, de fordított állású második prizma helyét úgy határoztam meg, hogy a legjobban eltérített, legrövidebb hullámhosszú felharmonikus spektrális komponens éppen érintse a csúcsát. Ennek a szélső spektrális komponensnek a $\lambda_{2,\mathrm{min}}$ hullámhosszát tetszőlegesen úgy választottam meg, hogy a hozzá tartozó egyutas konverziós hatásfok 25%-a legyen a 400 nm-nél (fázisillesztés) lévő hatásfokmaximumnak. Vegyük észre, hogy ez a feltétel meghatározza a $\vartheta(\lambda)$ szöget, amelyet egy tetszőleges λ hullámhosszú sugár a prizmacsúcsokat összekötő egyenessel bezár (lásd 2. ábra). A $\lambda_{2,\mathrm{min}}$-nél rövidebb hullámhosszú komponensek nem lépnek be a 2. prizmába (18. ábra). Ilyen mértékű spektrális levágás szélessávú frekvenciakétszerezésnél gyakorlati szempontból nem jelentős. Előrebocsátjuk azonban, hogy rövid impulzusok esetében már kismértékű spektrális levágás is számottevő impulzuskiszélesedéshez vezethet, ezért ott körültekintőbben kell eljárni. A fenti feltételek mellett a prizmapárnak egyetlen szabad paramétere maradt: a prizmacsúcsok l távolsága.

A tükrön való visszaverődésből származó esetleges fázistolást, valamint a levegő diszperzióját elhanyagoltam. Utóbbi miatt az elrendezés további szabad paramétere, a tükör és a 2. prizma csúcsának a távolsága nem befolyásolja a relatív fázistolást. a értéke a leghosszabb hullámhosszú alapharmoni-



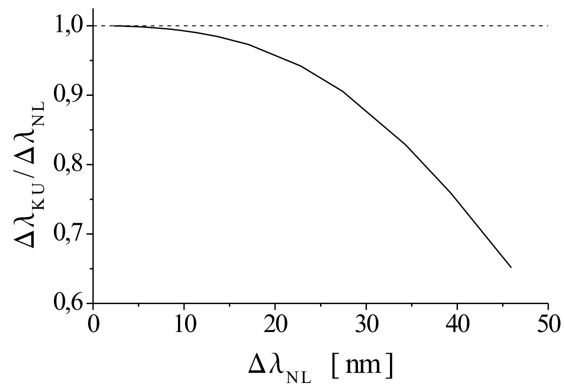
18. ábra. Felharminkus spektrális levágás a prizmapárnál. A grafikon az egyutas felharmonikus spektrumot mutatja. A 2. prizma által levágott tartományt satírozás jelöli.

kus sugár helyzete által meghatározott minimum felett tetszőlegesen választható. A fenti egyszerűsítések figyelembevételével a prizmapárral bővített kétutas elrendezés diszperzív elemének eredő fázistolását a

$$\begin{aligned} \varphi_\omega^{\rm d} = \varphi_\omega^{\rm p} &= \varphi_\omega^{\rm lev} + \varphi_\omega^{\rm kv} \\ &= \frac{\omega}{c} d_\omega^{\rm lev} + \frac{\omega}{c} n_\omega^{\rm kv} d_\omega^{\rm kv} \end{aligned} \tag{33}$$

kifejezés adja, ahol $d_\omega^{\rm lev}$ a levegőben, $d_\omega^{\rm kv}$ pedig a prizmák kvarc üvegében az oda-vissza haladás során megtett összes geometriai út. Vegyük észre, hogy $d_\omega^{\rm lev}$ és $d_\omega^{\rm kv}$ frekvenciafüggését a (levegőben most elhanyagolt) anyagi diszperzió mellett a szögdiszperziótól származó különböző d_ω úthosszak is befolyásolják. A relatív fázist a $\Delta\varphi^{\rm d} = \Delta\varphi^{\rm p} = 2\varphi_\omega^{\rm p} - \varphi_{2\omega}^{\rm p}$ összefüggésből kapjuk.

A számításokat különböző L kristályhosszakra, és ezzel a $\Delta\omega_{\rm NL} = 8\ln 2/(L|\Delta k'|)$ egyutas sávszélesség különböző értékeire végeztem el. Adott L kristályhossz-



19. ábra. A prizmapárral kompenzált kétutas elrendezés $\Delta\lambda_{\mathrm{KU}}$ sávszélessége a $\Delta\lambda_{\mathrm{NL}}$ egyutas sávszélességhez viszonyítva ez utóbbi függvényében. $\Delta\lambda_{\mathrm{KU}}$ és $\Delta\lambda_{\mathrm{NL}}$ alapharmonikus hullámhosszban értendők.

hoz megkerestem a prizmapár olyan beállítását, amely a kétutas elrendezésben a legjobb relatív fáziskompenzációt — és így a legnagyobb kétutas sávszélességet — biztosította. Az optimális kompenzációval elérhető $\Delta\lambda_{\mathrm{KU}}$ kétutas sávszélességet a 19. ábrán láthatjuk a $\Delta\lambda_{\mathrm{NL}} \approx \Delta\omega_{\mathrm{NL}}\lambda_{1,0}^2/(2\pi c)$ egyutas sávszélességhez viszonyítva, ez utóbbi függvényében. Itt $\lambda_{1,0} = 800$ nm az alapharmonikus központi (fázisillesztési) hullámhossz, $\Delta\lambda_{\mathrm{NL}}$ és $\Delta\lambda_{\mathrm{KU}}$ alapharmonikus hullámhosszban értendők. Egy bizonyos határig a kétutas elrendezés lényegében megőrzi a kristály sávszélességét, az arány ~30 nm sávszélességnél csökken 90% alá. A prizmapár ennél nagyobb hullámhossztartományon már nem képes a kristály relatív fázisát megfelelően kompenzálni. Megjegyezzük, hogy a maximális kétutas intenzitás a sávszélességtől függetlenül minden esetben négyszerese az egyutasénak.

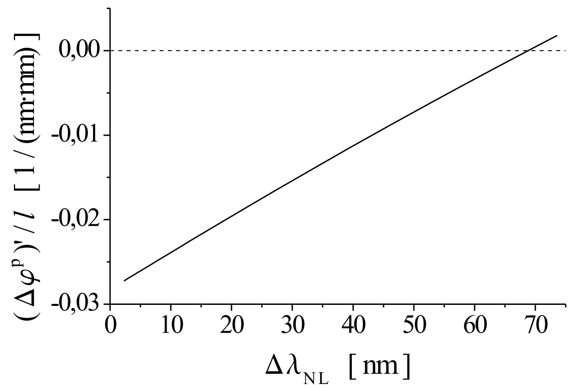
Mivel a számításba jövő kristályhosszaknál a ΔkL relatív fázistolás hullámhosszfüggése a konverziós tartományban jó közelítéssel lineáris, a prizmacsúcsok távolságát a (32) relatív fáziskompenzációs feltétel elsőrendű közelítéseként adódó

$$(\Delta kL)' + (\Delta\varphi^{\mathrm{d}})' = (\delta\varphi)' = 0 \qquad (34)$$

összefüggésből határoztam meg. Itt $\delta\varphi$ az első és a második áthaladásnál keltett felharmonikusok közti fáziskülönbség. Az alábbiakban ábrázolt numerikus értékek a λ_2 felharmonikus hullámhossz szerinti deriváltakra vonatkoznak a $\lambda_{2,0} = \lambda_{1,0}/2 = 400$ nm központi hullámhossznál, ezért (34)-ben $\delta\varphi' = (d\varphi/d\lambda_2)|_{\lambda_{2,0}}$ értendő. (Ez a választás esetleges, éppúgy vehető λ_1, ω vagy 2ω szerinti derivált is.) Itt jegyezzük meg, hogy a nulladrendű kompenzáció legegyszerűbben a levegő diszperzióját kihasználva, a tükör mozgatásával biztosítható. A levegő diszperziójának elhanyagolása miatt a nulladrendű feltétellel itt nem foglalkozunk, erről kissé részletesebben a következő fejezetben esik szó.

A prizmák üvegének elsőrendű relatív diszperziója azonos előjelű a kristályéval (pozitív), ezért az elsőrendű kompenzáció — amely a számítások szerint a kristályhosszak széles skáláján lehetséges, és amely ellentett előjelet kíván — egyedül annak tulajdonítható, hogy az egyes spektrális komponensek a prizmák anyagában illetve a levegőben különböző úthosszakat futnak be. A kompenzáció tehát a szögdiszperzió következménye. Valóban, a (11) kifejezés alapján könnyen belátható, hogy a prizmapár relatív fázistolásának $(2\varphi^{\mathrm{p}}_{\omega} - \varphi^{\mathrm{p}}_{2\omega})'$ elsőrendű tagját előjel tekintetében a $\vartheta(\lambda)$ szögdiszperzió határozza meg, l csupán az abszolútértéket befolyásolja. A $(\Delta\varphi^{\mathrm{p}})'/l$ mennyiség — amelyet különböző sávszélességekre a 20. ábra mutat — csak a szögdiszperziótól függ. Előjele ~70 nm-nél kisebb sávszélességekre negatív; ebben a tartományban lehetséges elsőrendű kompenzáció.

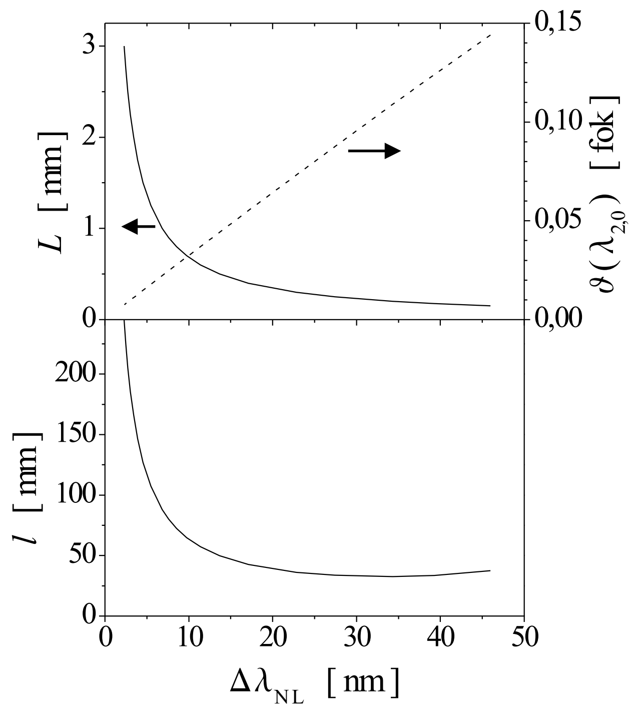
A prizmacsúcsok l távolságának elsőrendű kompenzációhoz tartozó értékeit a kristály sávszélességének függvényében a 21. ábra mutatja, a kristályhosszal és a $\vartheta(\lambda_{2,0})$ szöggel együtt. Növekvő sávszélességgel l egyre kisebb



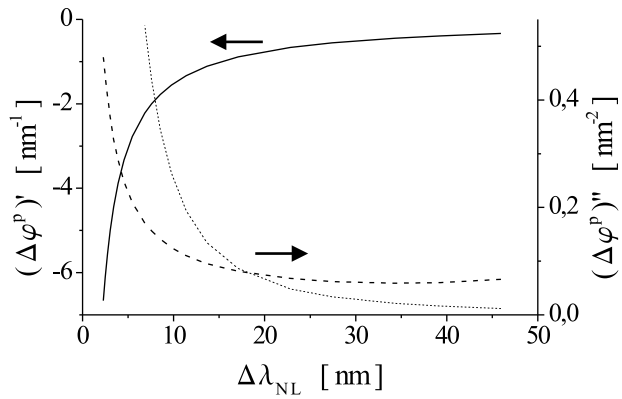
20. ábra. Elsőrendű relatív fáziskompenzáció a $\Delta\lambda_{\rm NL}$ sávszélesség olyan értékeinél lehetséges, ahol a $(\Delta\varphi^{\rm p})'/l$ mennyiség — amely csak az első prizma szögdiszperziójától függ — negatív.

mértékben csökken, 30 nm körül enyhén nőni kezd. Ez a viselkedés arra vezethető vissza, hogy növekvő sávszélességgel az alap- és a felharmonikus komponensek egyre nagyobb utat tesznek meg a 2. prizma anyagában, ami megnöveli a kompenzálandó elsőrendű relatív fázist.

Láttuk, hogy elsőrendű kompenzáció ~70 nm sávszélességig lehetséges; ugyanakkor a kétutas elrendezésben már ennél lényegesen kisebb $\Delta\lambda_{\rm NL}$ értékeknél jelentős sávszélesség-csökkenés tapasztalható (19. ábra). Ennek oka az eddig figyelmen kívül hagyott másodrendű relatív fázis, amelyre szintén felírható egy, a (34) kifejezéshez hasonló kompenzációs feltétel. Az elsőrendű kompenzáció azonban meghatározza a prizmacsúcsok l távolságát, és — egyéb szabad paraméter hiányában — a prizmapár relatív diszperziójának másodrendű tagját, $(\Delta\varphi^{\rm p})''$-t is. Ezért $(\Delta\varphi^{\rm p})''$ általában nem teljesíti a másodrendű kompenzáció feltételét, és az egymást követő áthaladásoknál keletkező felharmonikus komponensek közötti fáziskülönbség másodrendben már nem tűnik el: $(\delta\varphi)'' \neq 0$. Nemzéró $(\delta\varphi)''$ a spektrum szélei felé $(\delta\varphi)'' \cdot (\lambda - \lambda_0)^2/2$



21. ábra. A prizmapárral bővített kétutas elrendezés paraméterei a kristály $\Delta\lambda_{\mathrm{NL}}$ sávszélességének függvényében. A $\vartheta(\lambda_{2,0})$ szög jó közelítéssel a sávszélességgel, az L kristályhossz annak reciprokával arányos. A prizmacsúcsok l távolsága az elsőrendű relatív fáziskompenzációhoz tartozó érték.



22. ábra. A prizmapár relatív fázistolásának első és második deriváltja a kristály sávszélességének fügvényében, elsőrendű relatív fáziskompenzáció esetében. A pontozott vonal $(\Delta\varphi^{p})''$ legnagyobb megengedhető értékét mutatja, amely még nem vezet a kétutas sávszélesség számottevő csökkenéséhez.

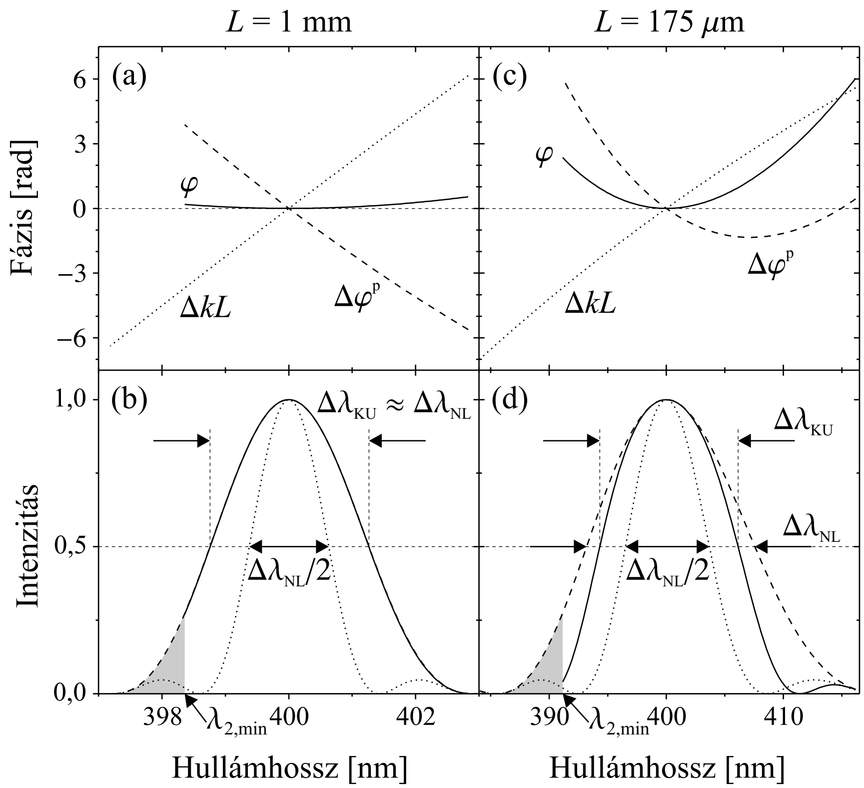
szerint növekvő fáziskülönbséghez vezet, ami a kétutas sávszélesség csökkenését vonja maga után. A sávszélesség-csökkenés $(\delta\varphi)''$ adott értéke mellett annál nagyobb, minél nagyobb maga a sávszélesség; másként szólva: kisebb $\Delta\lambda_{\mathrm{NL}}$ sávszélesség (vastagabb kristály) nagyobb $(\delta\varphi)''$-t tolerál.

Említettük, hogy ΔkL másodrendű tagja a kristály konverziós tartományában nem jelentős, ezért jó közelítéssel $(\delta\varphi)'' \approx (\Delta\varphi^{\mathrm{p}})''$, elegendő tehát $(\Delta\varphi^{\mathrm{p}})''$-t vizsgálni. A 22. ábrán látható, hogy $\sim$20 nm sávszélesség felett ez a másodrendű derivált meghaladja a sávszélesség által tolerált értéket, ami összhangban van a $\Delta\lambda_{\mathrm{KU}}$ kétutas sávszélesség 19. ábrán látható csökkenésével.

A 23. ábra a kristályvastagság két különböző értékére mutatja a relatív fáziskompenzációt, illetve a felharmonikus intenzitást. Nagy kristályvastagság ($L = 1$ mm), azaz kicsi $\Delta\lambda_{\mathrm{NL}}$ esetén (a és b grafikonok) a kompenzáció gyakorlatilag tökéletes, $\Delta\lambda_{\mathrm{KU}} = \Delta\lambda_{\mathrm{NL}}$ jó közelítéssel teljesül. Az elsőrendű kompenzáció itt elegendő, a prizmapár $(\Delta\varphi^{\mathrm{p}})''$ másodrendű relatív diszperziója elhanyagolható ilyen kis sávszélességnél. Vékony, $L = 200$ μm-es kristálynál (c és d grafikonok) azonban a jóval szélesebb egyutas spektrum szélein $(\Delta\varphi^{\mathrm{p}})''$ hatása számottevő, jelentős sávszélesség-csökkenést eredményezve.

5. Femtoszekundumos impulzusok diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezése

Femtoszekundumos impulzusok diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezésének modellezésére az előző fejezetben leírt számításokat továbbfejlesztettem [39, 40]. A numerikus számításoknál $\lambda_{1,0} = 800$ nm központi frekvenciájú, transzformáció-limitált Gauss impulzusokból indultam ki; az impulzusok τ_1 időtartamát változtattam. Az előző fejezethez hasonlóan a nemlineáris kristályt BBO-nak választottam, merőleges beesésnél 800 nm-re teljesített fázisillesztéssel. A lineáris impulzusterjedés és a frekvenciakétszerezés számítását az impulzusok spektrális komponensekre bontásával végeztem. Az impulzushossz megválasztása után a kristályhosszat tetszőlegesen úgy választottam meg, hogy $\tau_1 \approx \tau_2$ teljesüljön (ún. *pulse-width-preservation length* [20, 22, 23]), ahol τ_2 a felharmonikus impulzus időtartama. A 2.3. pontban láttuk, hogy ekkor — ha az impulzus nem nagyon rövid — $L \approx L_{\mathrm{p}}$ és $\Delta\omega_1 \approx \Delta\omega_{\mathrm{NL}}$ ($\Delta\omega_1$ az alapharmonikus impulzus spektrális félértékszélessége). Könnyen belátható, hogy nagyon vékony kristálynál, amikor a konverziós sávszélesség nagyon nagy, a felharmonikus impulzus spektrális szélességére $\Delta\omega_2 \approx \sqrt{2}\Delta\omega_1$, időtartamára $\tau_2 \approx \tau_1/\sqrt{2}$ teljesül. A kristályhossz előbbi megválasztása tehát a felharmonikus impulzus $\sqrt{2}$-szeres kiszélesedését engedi meg, és gyakorlati szempontból megfelelő kompromisszumot jelent hatásfokcsökkenés és impulzuskiszélesedés között. (Megjegyez-



23. ábra. Relatív fáziskompenzáció (a,c) és felharmonikus intenzitás (b,d) a kétutas elrendezésben, az L kristályvastagság két különböző értékére. Az intenzitásnál a folytonos vonal a prizmapárral kompenzált elrendezésre, a szaggatott a tökéletesen kompenzált kétutas elrendezésre vonatkozik; a pontozott vonal egyutas esetre vonatkozik $2L$ kristályhosszal. A satírozás a 2. prizma által okozott spektrális levágást jelzi.

zük, hogy ha egy adott alkalmazásnál a hatásfokcsökkenés nem kritikus, a kristály vékonyabbra is választható.) $\lambda_{1,0} = 800$ nm fázisillesztési hullámhosszra BBO-ban $1/|u_1^{-1} - u_2^{-1}| \approx 6,5\ \mu$m/fs, így a kristályhosszra a fentiek alapján $L \approx L_\mathrm{p} \approx \tau_1 \cdot 6{,}5\ \mu$m/fs.

Impulzusok esetében figyelembe vettem a hullámlemez fázistolását is. Feltettem, hogy a kvarc hullámlemez 800 nm-en félhullám ($\lambda/2$) retardációjú. Azért, hogy a hullámlemez hatása a prizmapárral bővített kétutas elrendezés relatív fázistolására minimális legyen, a lemezt 0-ad rendűnek választottam, ami 45 μm-es vastagságnak felel meg.

A prizmák tekintetében az előző fejezetben leírtak szerint jártam el. A különbség csupán annyi volt, hogy a második prizma $\lambda_{2,\mathrm{min}}$ spektrális levágási hullámhosszát tetszőlegesen úgy választottam meg, hogy a hozzá tartozó egyutas konverziós hatásfok 4%-a legyen a 400 nm-nél lévő hatásfokmaximumnak. Az így okozott kismértékű spektrális levágás csupán elhanyagolható impulzuskiszélesedést, és kb. 0.5% -os energiaveszteséget jelent a felharmonikus számára.

A számolásokban a levegő diszperzióját is figyelembe vettem. Az eredő fázistolást így (33) helyett a hullámlemez, a levegő és a prizmák üvege által az oda-vissza út során okozott fázistolások összegeként kapjuk:

$$\varphi_\omega^\mathrm{d} = \varphi_\omega^\mathrm{hl} + \varphi_\omega^\mathrm{lev} + \varphi_\omega^\mathrm{kv}. \tag{35}$$

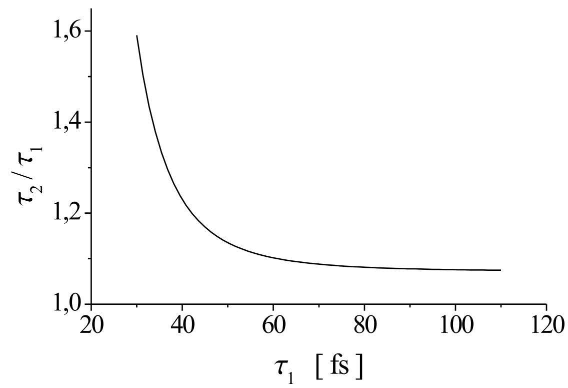
Itt $\varphi_\omega^\mathrm{hl}$ a hullámlemez fázistolása. A levegő diszperziója miatt a tükör és a 2. prizma csúcsának a távolságát változtatva változik a relatív fázistolás is. Az elrendezésnek ezzel két szabad paramétere van, l és a, amelyek szerepet játszanak a relatív fáziskompenzációnál. A prizmacsúcsok távolságát az elsőrendű relatív fáziskompenzáció feltétele határozta meg. Az előző fejezet eredményei ebben az esetben is érvényesek. Különbséget csupán a hullámlemez jelentett, amely kissé megnövelte a prizmapár által kompenzálandó anyagi eredetű relatív fázistolást. Az elsőrendű kompenzációhoz adott kristályhossznál így kissé nagyobb l távolságra volt szükség, mint a hullámlemez nélkül. A levegő hatása hasonló, de még kisebb.

Figyelembe véve, hogy a központi hullámhossznál $\Delta k(\lambda_{2,0}) = 0$ a fázisillesztés miatt, a nulladrendű kompenzáció feltétele a következő:

$$\Delta\varphi^{\mathrm{d}}(\lambda_{2,0}) = 0 \pm n2\pi \quad (n = 0, 1, 2, \ldots). \tag{36}$$

Ez legegyszerűbben a tükör mozgatásával, tehát az a távolság változtatásával teljesíthető. A levegő diszperziója $6,9°/\mathrm{mm}$ relatív fázistolást okoz a 800 nm-es alapharmonikus és annak 400 nm-es felharmonikusa között. A kétutas elrendezésben így kevesebb mint 13 mm tüköreltolás elegendő a nulladrendbeli kompenzációhoz. A tüköreltolás hatására kismértékben megváltozik $\Delta\varphi^{\mathrm{d}}$ elsőrendű tagja is, de a levegő gyenge diszperziója miatt ez elhanyagolható hatással van az előzőleg beállított elsőrendű kompenzációra.

A prizmapárral bővített kétutas elrendezés teljesítőképességét femtoszekundumos impulzusok esetében a 24. ábra mutatja. Az alapharmonikus impulzusok időtartamának csökkenésével sávszélességük nő, és a prizmapár másodrendű relatív fázistolásának konverziós sávszélességet limitáló hatása egyre nagyobb szerepet játszik (lásd előző fejezet). A konverziós sávszélesség csökkenése csökkenti a felharmonikus impulzusok sávszélességét, ami egyre nagyobb időbeli kiszélesedéshez vezet. A számítások szerint $\sim$40 fs-nál hosszabb alapharmonikus impulzusoknál nem lép fel nagymértékű felharmonikus időbeli kiszélesedés. A kiszélesedés $\sim$40 fs-nál haladja meg a 20% -ot. Az alapharmonikus impulzusok időtartamát 40 fs alá csökkentve azonban a felharmonikusok kiszélesedése gyorsan nő. Mivel a kristályhossz megválasztása miatt az alap- és a felharmonikus csoportsebességek különbsége csupán $\sqrt{2}$-szeres kiszélesedést okoz, valamint az egyes impulzusok kiszélesedése a csoportsebesség-diszperzió következtében csak $\sim$20 fs-nál rövidebb impulzu-



24. ábra. A felharmonikus impulzus τ_2 időtartama a bemenő alapharmonikus impulzus τ_1 időtartamához viszonyítva, ez utóbbi függvényében.

soknál válik számottevővé, a ∼40 fs alatti impulzusok jelentős kiszélesedését a prizmapár másodrendű relatív fázistolása okozza.

Tehát ∼40 fs-nál hosszabb impulzusok esetében az elrendezés alkalmas a frekvenciakétszerezés hatásfokának megnégyszerezésére az impulzushossz megőrzése mellett.

Femtoszekundumos lézereknél az impulzusok csúcsintenzitása általában sokkal nagyobb a folytonos üzemű lézerek nyalábintenzitásánál. Nagy intenzitásoknál az itt alkalmazott állandó alapharmonikus térerősség közelítés érvényét veszti. Ez a közelítés az ún. nemlineáris kölcsönhatási hossznál [23] kisebb kristályhosszakra megfelelő, amely függ az alapharmonikus amplitúdótól. Az itt tekintett, 1 mm-nél rövidebb kristályokra az említett közelítés 10^7–10^8 V/m alapharmonikus térerősségekig alkalmazható, ami tipikus kimeneti érték Ti:zafír oszcillátoroknál, 100 fs alatti impulzushosszakra. A frekvenciakétszerezési folyamat pontosabb leírását adja az ún. állandó alapharmonikus intenzitás közelítés [23], amely az alapharmonikus esetleges intenzitásfüggő fáziseltolódásáról is számot ad. Ez az effektus azonban az eddigiekben tekintett esetekben kicsi, és az alapharmonikus (komplex) amplitúdója állandónak tekinthető. Az alapharmonikus intenzitásfüggő fázistolását eredményezheti a $\Delta n = n_2 |E_\omega|^2$ nemlineáris törésmutató is [9]. n_2 értéke tipikusan 10^{-22} m^2/V^2 nagyságrendű, így Δn az itt tekintett, 1 mm-nél rövidebb kristályokra, és az állandó alapharmonikus térerősség közelítés által megengedett intenzitásokra elhanyagolható.

Végül megemlítem, hogy a diszperziókompenzált kétutas elrendezésben a prizmapár helyett elvileg lehetséges megfelelő relatív diszperziójú dielektrikumtükör használata [42]. A tükör diszperziójának ekkor egyrészt ki kell elégítenie azt a feltételt, hogy az alapharmonikus impulzus időtartama megőrződjön, másrészt a relatív fáziskompenzáció feltételének is teljesülnie kell, lehetőleg minél magasabb rendben. Ez a diszperzióra több, mint egy oktávot átfogó spektrális tartományon jelent megkötést. Nyitott kérdés azonban, hogy a jelenleg rendelkezésre álló módszerekkel készíthető-e megfelelő diszperziójú tükör [43].

II. rész

Fázismoduláció hatása femtoszekundumos lézerimpulzusok formálására rezonáns közegben

TUDOMÁNYOS ELŐZMÉNYEK

6. Mérések rezonáns impulzusterjedésre

A rezonáns fény-anyag kölcsönhatás a legalapvetőbb fizikai jelenségek közé tartozik, amelynek fontos speciális esete a (rövid) lézerimpulzusok és atomok közötti rezonáns kölcsönhatás. Rezonáns impulzusterjedésnél — amikor a közegnek, amelyben az impulzusok haladnak, abszorpciós vonala (esetleg szélesebb sávja) esik az impulzus spektrumára — igen komplex amplitúdó- és fázisszerkezet alakulhat ki. Az impulzusformálást befolyásolja többek között a rezonáns atomok sűrűsége, az atomi energianívók populációja, az impulzusok intenzitása és kezdeti fázismodulációja is.

A terület elméleti vizsgálata meglehetősen régen kezdődött. H. A. Lorentz 1900. körül tette közzé a klasszikus mechanikán és elektrodinamikán alapuló ún. elektron oszcillátor modelljét [10, 44]. A klasszikus modell (bizonyos kiegészítéssel) kitűnően használható a rezonáns impulzusterjedés leírására addig, amíg az impulzusok intenzitása elegendően alacsony. A modell érvényét veszti nagyobb intenzitásoknál, ahol az atomi energiaszintek populációja a kölcsönhatás következtében számottevően megváltozik. Nagyobb intenzitásoknál az atomokat kvantummechanikai rendszernek tekintő szemiklasszikus elmélet alkalmazható [44, 45].

A rezonáns impulzusterjedés kísérleti vizsgálata jóval később, a lézerek felfedezésével indult meg. McCall és Hahn [46] önindukált átlátszóságot tárgyaló alapvető munkája óta a terület mind kísérleti, mind elméleti téren az érdeklődés homlokterében van. Kezdetben a méréseket viszonylag hosszú, nanoszekundumos impulzusokkal végezték [47], amelyek spektrális szélessége

($\sim$100 MHz) az atomi abszorpciós vonalak inhomogén szélességének nagyságrendjébe esett (^{85}Rb-ban $5s$–$5p$ átmenetre 660 MHz). A pikoszekundumos lézerek megjelenése könnyen elérhetővé tette az ún. éles vonal tartományt (*sharp-line limit*, SLL) [48], ahol az impulzusok spektrális szélessége az atomi vonalszélesség többszöröse. Ehhez korábban atomnyaláb alkalmazására volt szükség, ami az abszorpciós vonal inhomogén kiszélesedését csökkentette le [49]. Az egyre rövidebb impulzusok előállítása folyamatosan tágította a kísérleti vizsgálatok horizontját. A módusszinkronizált Ti:zafír lézerekkel, amelyek spektrális szélessége 10^4–10^5-szerese az atomi vonalszélességnek, elérhető az ún. extrém SLL tartomány [50–53]. Alacsony intenzitású impulzusoknál ebben a tartományban is erős impulzusformálás figyelhető meg, annak ellenére, hogy az abszorpció az impulzus spektrumához képest csupán egy rendkívül keskeny spektrális sávra korlátozódik. Az impulzusformálást ugyanis az impulzus széles spektrumán erősen nemlineáris frekvenciafüggést mutató (anomális) törésmutató határozza meg [50, 51]. Az extrém SLL tartományban általában elhanyagolható a spektrumvonalak hiperfinom felhasadása is [51], amely rendszerint sokkal kisebb az impulzus spektrális szélességénél (^{85}Rb-ban alapállapotra 3 GHz).

Az ultrarövid impulzusok előállítása terén az utóbbi évtizedben végbement hatalmas fejlődés lehetővé tette néhány optikai ciklusból álló (10 fs-nál rövidebb) impulzusok keltését. Ennek hatására az elméleti vizsgálatokat újabban kiterjesztették ilyen impulzusok kétszintes atomokkal való kölcsönhatására is [54]. Walmsley és munkatársai analitikus megoldást adtak a kezdeti polarizációval rendelkező többszintes atomi közegben terjedő ultrarövid impulzusok problémájára [55].

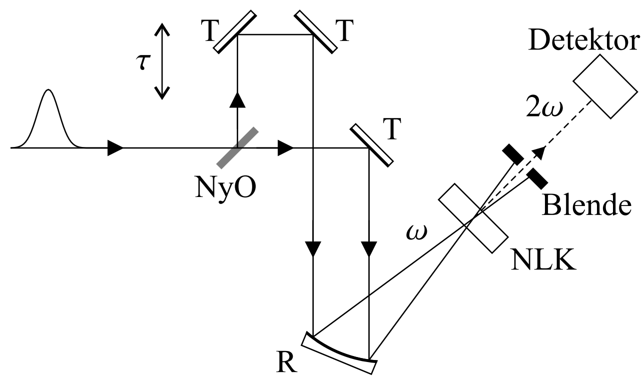
A kísérleti erőfeszítések egészen a legutóbbi időkig spektrális [53], illetve korrelációs mérésekre szorítkoztak. Noha a méréseket nagy pontossággal végezték, és az eredmények többnyire jól reprodukálhatók voltak elméleti számításokkal, a fenti mérési módszerek nem adnak közvetlen felvilágosítást az impulzusok térerősségéről. Kísérlet és elmélet ennél közvetlenebb összehasonlításához az impulzusok teljes, amplitúdóra és fázisra egyaránt kiterjedő karakterizálása szükséges. Az impulzusterjedési folyamatok az impulzus kezdeti amplitúdó- és fázisszerkezetétől is függenek, ezért a terjedési jelenségek modellezéséhez és megértéséhez mindkettő pontos ismerete szükséges.

A femtoszekundumos impulzusok közvetlen időbeli mérése elegendően nagy időfelbontású detektorok híján nem lehetséges. Közvetett időbeli mérésre nyújtanak lehetőséget a korrelációs technikák, amelyek a laboratóriumban könnyen elérhető, egyetlen megfelelően gyors jelenséget: magát az impulzust használják fel annak mérésére. Az $E(t)$ időfüggő térerősséggel jellemzett impulzus másodrendű autokorrelációs függvénye a következő:

$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} |E(t)E(t-\tau)|^2 \, dt. \tag{37}$$

$A(\tau)$ autokorrelátorral mérhető, amely egy nemlineáris detektorral ellátott interferométer (25. ábra). Az interferométer nyalábosztója előállítja az impulzus duplikáltját, az úthosszkülönbség adja a τ késleltetést a megkettőzött impulzus két példánya között, a másodrendű nemlineáris kristály előállítja a szorzatot; végül a hagyományos, az impulzushoz képest lassú, intenzitásra érzékeny fotodetektor az abszolútérték-négyzetet és az integrált.

Intenzitás-korrelációs méréssel nagyjából megbecsülhető az impulzus burkolójának időbeli alakja. Ilyen mérés sok esetben elegendő az impulzus időtartamának becsléséhez, vagy egy impulzussorozat egyes impulzusai között lévő időkülönbség meghatározásához, ami gyakran szükséges pl. impulzusformálási folyamatoknál. Ha rendelkezésre áll megfelelő referencia-impulzus, a keresztkorreláció pontosabb mérést tesz lehetővé. Könnyen meghatározható például egy impulzussorozat egyes impulzusainak pontos időbeli sorrendje és



25. ábra. Háttérmentes intenzitás-autokorrelátor. NyO: 50 %-os nyalábosztó, NLK: frekvenciakétszerező nemlineáris kristály, T: síktükör, R: fókuszáló tükör.

relatív intenzitása, ami autokorrelációnál nem mindig egyértelmű. Keresztkorrelációnál a mérendő impulzus nem saját replikájával találkozik a nemlineáris kristályban, hanem a referencia-impulzussal, amely általában egyszerű szerkezetű.

A korreláció mellett az impulzus spektrumának mérése az esetleges fázismodulációra utalhat, de kvantitatív megállapításokat nem tesz lehetővé. Az impulzus fázisszerkezete tehát ismeretlen marad. Sok gyakorlati szempontból fontos esetben a lézerimpulzusok komplex fázisstruktúrával bírnak — ami származhat pl. a lézererősítő kompenzálatlan magasabbrendű diszperziójától —, és ez befolyásolhatja a lézer-atom kölcsönhatást. Ilyen esetekben az impulzus időbeli alakjának és a fázismodulációnak a durva becslése gyakran elégtelen, a kísérletek és a számítások között lényeges eltéréshez vezethet. Például alacsony energiájú impulzusok rezonáns kölcsönhatásának modellezésénél a ténylegestől eltérő kezdeti fázismoduláció feltételezése az utóimpulzusoknál a megfigyelhetőtől jelentősen eltérő relatív intenzitásokat eredményezhet, amely főleg az impulzussorozat elején nagymértékű [48, 56].

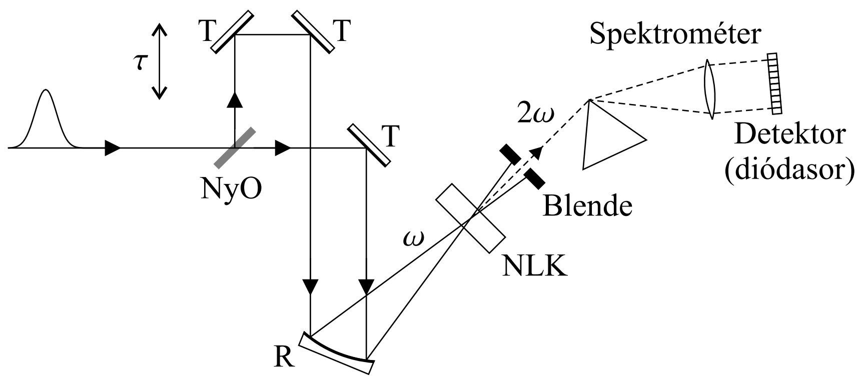
Számítások és mérések közvetlen összehasonlítását tehát csak a kiindulási és a kölcsönhatás utáni impulzusok teljes — amplitúdóra és fázisra egyaránt kiterjedő — karakterizálása teszi lehetővé.

7. Spektrálisan bontott autokorreláció (FROG)

Az utóbbi évtized hatalmas fejlődést hozott az ultrarövid impulzusok mérési technikáinak terén. Ennek köszönhetően ma már rutineljárásnak számít ultrarövid lézerimpulzusok elektromos terének teljes — amplitúdót és fázist is magában foglaló — időfüggését mérni. A teljes impulzuskarakterizálás egyik módszere a spektrálisan bontott autokorreláció [57], amelyre az angol elnevezés (*frequency-resolved optical gating*) alapján a FROG rövidítés használatos.

A FROG idő-frekvencia tartománybeli mérési technika, amely lényegében tetszőlegesen bonyolult szerkezetű impulzusra nagy biztonsággal alkalmazható. Egyik rendkívül kedvező tulajdonsága az igen egyszerű megvalósíthatóság. Nem kíván speciális eszközöket, csupán egy spektrométert és egy autokorrelátort, amelyek femtoszekundumos optikai laboratóriumokban általában kéznél vannak. Az impulzus teljes időbeli karakterizálásához magán a mérőberendezésen kívül szükséges még egy ún. fázisrekonstrukciós algoritmus.

A másodharmonikus FROG berendezés felépítése a 26. ábrán látható. A FROG jelet az autokorrelátornál követett egyszerű gondolatmenethez hasonlóan kaphatjuk meg. Az impulzust a nyalábosztó kettéosztja, a két rész egymáshoz képest változtatható τ késleltetéssel a nemlineáris kristályba jut, ahol térbeli átfedésbe kerülnek. Az így kapott $E(t)E(t-\tau)$ felharmonikus impulzus a spektrométerbe jut, amely a frekvencia-tarományba való Fourier-transzformációt és a spektrális intenzitáseloszlás detektálását végzi. A FROG



26. ábra. Másodharmonikus FROG berendezés.

jel így a következő:

$$S(\tau,\omega) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)E(t-\tau)e^{i\omega t}dt \right|^2 . \tag{38}$$

A rekonstrukciós algoritmus feladata a mért $S(\tau,\omega)$ jelből visszanyerni az impulzus időfüggő térerősségét, $E(t)$-t. Részletek tekintetében Trebino és munkatársai kitűnő áttekintő cikkére [58] és az ott található hivatkozásokra utalnék. A rekonstrukciós probléma matematikai megfogalmazásával kapcsolatban itt röviden csak a következőket jegyzem meg. A feladat egyenértékű a kétdimenziós Fourier-transzformáció fázisrekonstrukciós problémájával: Egy (meglehetősen általános feltételeknek eleget tevő) kétváltozós függvény Fourier-transzformáltjának ismert az abszolútértéke; meghatározandó annak spektrális fázisa. A jól ismert egydimenziós esettel ellentétben, ahol a spektrális intenzitás méréséből nem adható meg egy impulzus spektrális fázisa, a kétdimenziós feladat megoldható.

FROG mérésnél fontos, hogy a felvett FROG kép a teljes jelet tartalmazza, azaz azt a tartományt, ahol $S(\tau,\omega)$ gyakorlatilag nemzéró. Csonkolt FROG jel helytelen térerősség-rekonstrukcióhoz vezethet. Másodharmonikus FROG mérésnél az alapharmonikus spektrum mérése független ellenőrzési lehetőséget jelent, amellyel a FROG mérés esetleges szisztematikus hibái jó eséllyel kiszűrhetők [59]. A FROG képből kapható $M(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} S(\tau,\omega)d\tau$ ún. frekvencia-marginális ugyanis konvolúció segítségével adódik az alapharmonikus spektrumból is.

A teljes impulzus-karakterizáláson túl a FROG technika további fontos előnye az intenzitás-korrelációs mérésekkel szemben, hogy az időbeli feloldást nem korlátozza az impulzus hossza. A másodharmonikus FROG-nak a magasabbrendű nemlineáris folyamatokon alapuló FROG-változatokkal szemben nagy előnye, hogy ez utóbbiaknál több nagyságrenddel érzékenyebb. Hátránya viszont, hogy az idő iránya nem egyértelmű ($E(t)$ és $E(-t)$ ugyanahhoz az $S(\tau,\omega)$-hoz vezet); valamint hogy különálló impulzusok sorozatának egymást követő impulzusai közötti relatív fázist csak egy π additív konstans erejéig képes meghatározni. Alapvető jelentőségű, hogy a nemlineáris kristály frekvenciakétszerezési sávszélessége elegendően nagy legyen az impulzus teljes spektrumának konverziójához.

FROG méréseket rezonáns atomi abszorpcióval kapcsolatban Zhou és munkatársai végeztek [60] Rb-mal kölcsönható femtoszekundumos impulzusokkal. Az abszorpciós vonal detektálásán túl azonban az impulzusfomálás kérdését nem érintik. Yabushita és munkatársai [61] a jelen dolgozatban ismertetett eredmények közlésével körülbelül egyidőben szintén abszorbeáló közegben terjedő impulzusok FROG illetve XFROG (spektrálisan bontott keresztkorreláció) módszerekkel való térerősség-méréséről számoltak be. Méréseiket Nd^{3+} ionokkal adalékolt vékony üveglemezzel végezték, amely lézerek aktív közegeként használatos, és két széles abszorpciós sávja esett a lézerimpulzusok spektrumára. A bemenő impulzusok mért térerősségéből kiinduló számításaik szintén jó egyezést mutattak mind amplitúdó, mind fázis tekintetében a mért kimenő impulzusszerkezettel.

CÉLKITŰZÉSEK

1. Felépítek és tesztelek egy háttérmentes másodharmonikus intenzitás-autokorrelátort; az autokorrelátort kibővítem FROG berendezéssé. FROG méréseket végzek femtoszekundumos lézerimpulzusokkal rubídiumgőzzel való rezonáns kölcsönhatásuk előtt és után különböző szerkezetű és intenzitású impulzusokkal.

2. A FROG mérések alapján rekonstruálom a rezonáns kölcsönhatás előtti és utáni impulzusok amplitúdóját és fázisát. Megmutatom, hogy a rezonáns impulzusformálás pontos modellezéséhez a bemenő lézerimpulzusok szerkezetének amplitúdóra és fázisra egyaránt kiterjedő részletes ismeretére van szükség. Megvizsgálom a bemenő impulzusok fázismodulációjának hatását a rezonáns impulzusformálásra.

ÚJ TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK

A következőkben ismertetett eredményeket a Friedrich Schiller Egyetemen, Jénában dolgozva értem el. A kísérleti munkát Dr. Thomas Feurer irányításával egyedül kezdtem el, az autokorrelátor felépítésével és tesztelésével, majd FROG berendezéssé való bővítésével. A FROG méréseket, az adatok analizálását és az elméleti modellezést Ralf Netz kollégámmal közösen végeztük.

8. Kísérleti elrendezés

A Rb-gőzben haladó impulzusok rezonáns kölcsönhatás előtti és utáni teljes karakterizálásának [62, 63] mérési elvét a 27. ábra mutatja. A mérések során felvettük az impulzusok FROG képét a rezonáns közeggel való kölcsönhatás után. FROG mérést végeztünk továbbá a bemenő impulzusokon is; az így rekonstruált kiindulási amplitúdó- és fázisszerkezet az elméleti számítások alapjául szolgált. Két méréssorozatot végeztünk: az egyiket alacsony, 3 nJ energiájú, a másikat nagy, 1 mJ energiájú impulzusokkal. Az első esetben a bemenő impulzusok központi hullámhosszát és fázismodulációját, valamint a Rb-gőz abszorpciós hosszát változtattuk. A második méréssorozatnál a nagy energiájú impulzusokat különböző mértékben gyengítettük, így változtatva az atomi rendszerrel kölcsönható impulzusok intenzitását.

Alacsony (3 nJ) impulzusenergiáknál három különböző lézer-konfigurációt használtunk, amelyek az alábbi impulzusokat adták:

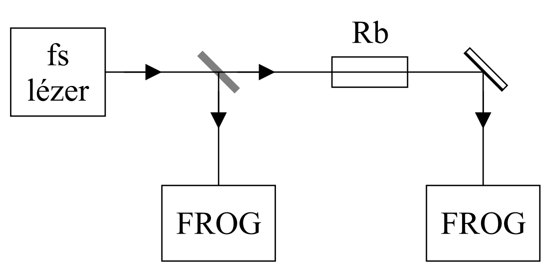
(a) 803 nm központi hullámhosszú, 32 nm spektrális félértékszélességű, közel transzformáció-limitált impulzusok, 38 fs időbeli félértékszélességgel.

(b) 803 nm központi hullámhosszú, 32 nm spektrális félértékszélességű impulzusok, 4,4·10^{-4} fs^{-2} másodrendű fázismodulációval (*chirp*) és 113 fs időbeli félértékszélességgel.

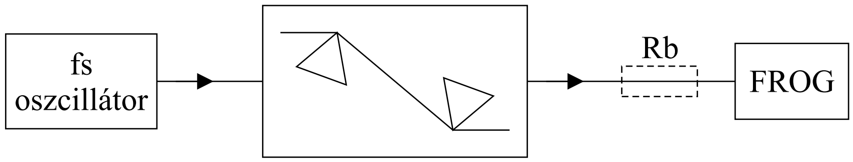
(c) 793 nm központi hullámhosszú, 24 nm spektrális félértékszélességű, közel transzformáció-limitált impulzusok, 60 fs időbeli félértékszélességgel.

Az (a) és (b) impulzusokat egy Coherent gyártmányú, Vitesse típusú módusszinkronizált Ti:zafír oszcillátor szolgáltatta, amelynek kimenő teljesítménye 240 mW volt 80 MHz ismétlési frekvenciánál. Az oszcillátort egy integrált dióda-pumpált, frekvenciakétszerezett Nd:YVO_4 Verdi típusú lézer pumpálta 532 nm hullámhosszon, 2 W teljesítménnyel. A femtoszekundumos oszcillátorban — amelynek felépítése a teljes oszcillátor-erősítő rendszert bemutató, későbbi 29. ábrán látható — a Ti:zafír kristály pozitív csoportkésleltetés-diszperzióját negatív diszperziójú dielektrikumtükrök kompenzálták. A (b) impulzusok másodrendű fázismodulációja részben a kicsatoló tükör anyagi diszperziójára vezethető vissza. Közvetlenül a kimenetnél az impulzusok időtartama 96 fs volt, ami a levegőben megtett több méteres út során kissé megnőtt.

Az (a) impulzusokat úgy kaptuk, hogy az oszcillátor kimenő impulzusait egy prizmás impulzuskompresszorral összenyomtuk, ami a másodrendű spektrális fázis kompenzálását jelentette (28. ábra). A prizmapár diszperziója



27. ábra. A rezonáns atomi rendszerrel (Rb) való kölcsönhatás előtti és utáni teljes impulzuskarakterizálás mérési elve.



28. ábra. A másodrendű spektrális fázis kompenzálása prizmás impulzuskompresszorral a rezonás közeggel való kölcsönhatás előtt.

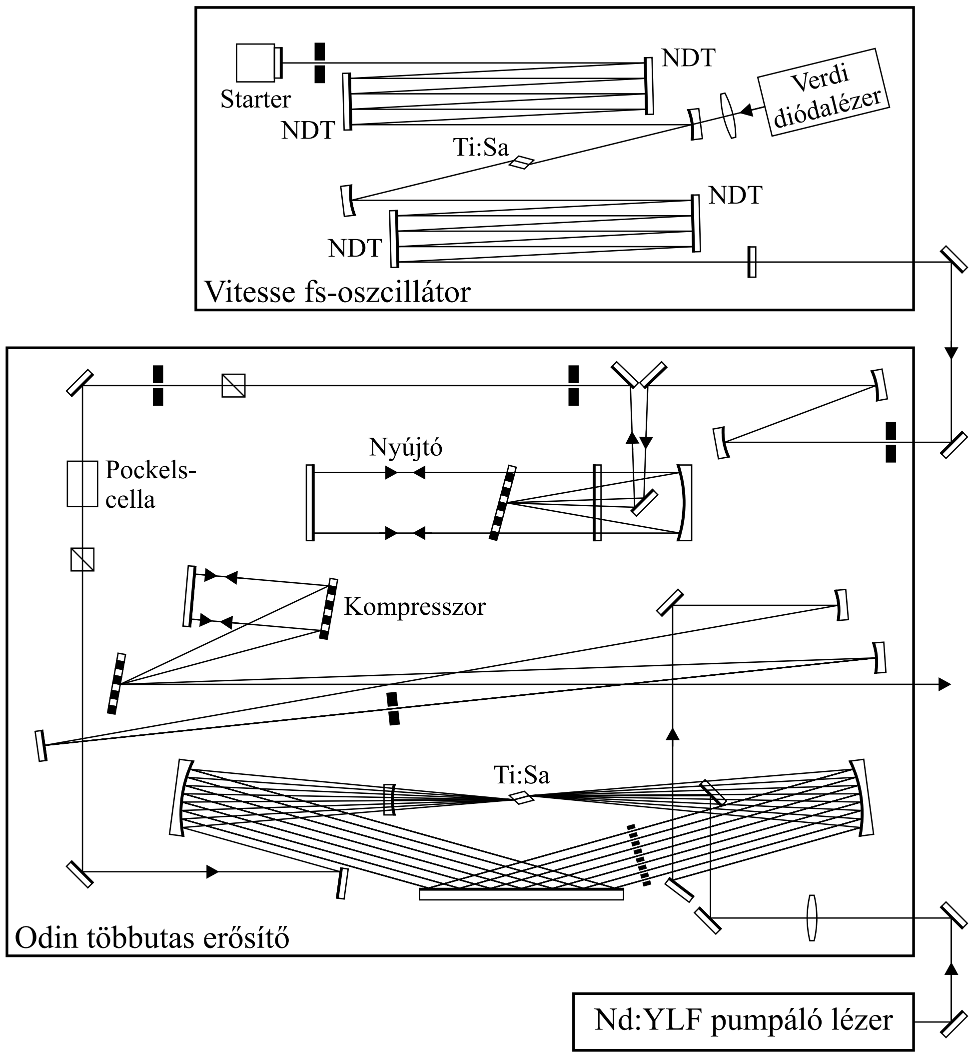
$2{,}1 \cdot 10^3$ fs^3 értékű harmadrendű fázistolást okozott, ami miatt az impulzusok szerkezete harmadrendben már eltért a transzformáció-limitált esettől. A (c) impulzusokat egy Coherent gyártmányú, Mira típusú hangolható femtoszekundumos oszcillátor erősített impulzusainak legyengítésével kaptuk. Az erősítő (29. ábra) kompresszora a spektrális fázist másodrendben kompenzálta. A kompenzálatlan harmadrendű fázis $6{,}9 \cdot 10^3$ fs^3 volt. Az (a)–(c) impulzusok paramétereiről a későbbi 1. táblázat ad áttekintést.

A nagy (1 mJ) energiájú impulzusokat a Vitesse femtoszekundumos oszcillátor impulzusainak erősítésével [64, 65] állítottuk elő. Az erősítés ún. CPA (*chirped pulse amplification*) technikával történt, amihez egy Quantronix gyártmányú, Odin típusú többutas Ti:zafír erősítőt használtunk. Az oszcillátor-erősítő rendszer felépítését a 29. ábra mutatja. Az oszcillátorból érkező 96 fs-os impulzusokat a nyújtó kb. ezerszeresre nyújtja. A Pockels-cella az ismétlési frekvenciát 80 MHz-ről 1 kHz-re csökkenti. A többutas erősítőfokozat a kezdeti 3 nJ-ról 1 mJ energiára erősíti az impulzusokat. A kompresszor az erősített impulzusok időtartamát kb. ezredrészére nyomja össze. Az erősítés következtében a kezdetben 803 nm-es központi hullámhossz 805 nm-re tolódott el. Az erősítő kimeneti impulzusainak időtartama 45 fs volt, spektrális sávszélességük 27 nm. Az erősítőt egy szintén Quantronix gyártmányú, Q-kapcsolt, rezonátoron belüli kétutas módszerrel frekvenciakétszerezett Nd:YLF lézer pumpálta. A pumpáló lézer teljesítménye 11 W, ismétlési frekvenciája 1 kHz volt, ami 11 mJ energiát jelent impulzusonként. A pumpáló hullámhossz 527 nm volt.

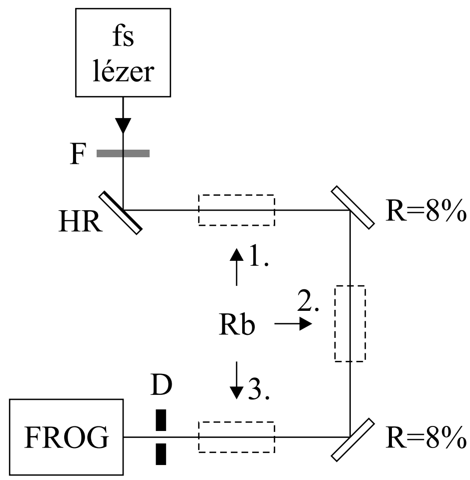
Az intenzitásfüggő impulzusterjedési kísérleteket a 30. ábrán látható elrendezésben végeztük. Hogy a Rb-cellába bemenő impulzus energiája könnyen változtatható legyen, az elrendezést három lehetséges cellapozícióval építettem fel, amelyeket 45°-os beesésű reflexióra beállított üveglemezek választottak el egymástól. Az üveglemezek reflexiós tényezője 8 % volt, tehát egyenként nagyjából egy nagyságrenddel csökkentették az intenzitást. Így néhány, 10 % és 100 % közé eső transzmissziójú neutrális szűrővel és a Rb-cella pozíciójának változtatásával a cellába belépő intenzitás három nagyságrenden keresztül kis lépésekben volt változtatható. Az elrendezés előnye, hogy a FROG berendezés bemenetén az impulzusok energiája csupán egy nagyságrenden belül változott, a három nagyságrendet átfogó változás helyett. Az impulzusok maximális energiája 1 mJ, az ehhez tartozó intenzitás 110 GW/cm^2 volt.

Mivel nagyobb energiájú impulzusoknál az impulzusterjedési folyamatok intenzitásfüggőek, a rubídiumgőzben haladó impulzusok időbeli alakja a nyaláb keresztmetszetében változik. A nyaláb inhomogén intenzitáseloszlása így szisztematikus hibát okozhat a FROG mérésnél. Hogy ezt a hibaforrást kiküszöböljem, a FROG berendezés elé változtatható apertúrát helyeztem, amelyet úgy állítottam be, hogy csak a lézernyaláb középső, homogénnek tekinthető részét engedje át. Alacsony energiájú impulzusoknál, a lineáris lézer-atom kölcsönhatás tartományában a nyaláb inhomogenitásának hatása elhanyagolható volt.

A kísérletek során használt rubídium-cella 5 cm hosszúságú volt, 2 mm vastagságú kvarcüveg belépő és kilépő ablakokkal. A rubídium természetes izotópösszetételű volt (72 % ^{85}Rb és 28 % ^{87}Rb). A cella a Rb-on kívül



29. ábra. A femtoszekundumos oszcillátor és a többutas erősítő felépítése. NDT: negatív csoportkésleltetés-diszperziójú dielektrikumtükör.



30. ábra. Kísérleti elrendezés intenzitásfüggő impulzusterjedés méréséhez. F: változtatható transzmissziójú neutrális szűrő, HR: nagy reflexiós tényezőjű dielektrikumtükör, R=8% : 8 % reflexiójú üveglemez, D: diafragma. A szaggatott téglalapok a Rb-cella három lehetséges pozícióját jelölik.

1 mbar nyomású argon puffergázt is tartalmazott. A rubídiumgőz sűrűségét, és ezzel az abszorpciós hosszat a cella hőmérsékletének 20–200°C közötti változtatásával lehetett szabályozni.

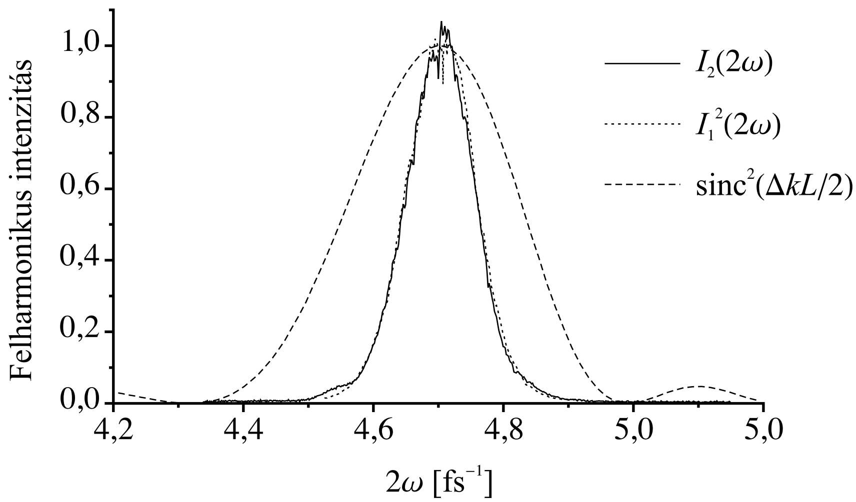
8.1. FROG berendezés

A FROG mérésekhez egy többlövéses, másodharmonikus, háttérmentes intenzitás-autokorrelátort építettem. Az autokorrelátor felépítése megegyezett a 25. ábrán láthatóval. A másodharmonikus-keltő kristály 100 μm vastagságú BBO volt; ilyen kicsi kristályvastagságra az impulzusok széles spektruma miatt volt szükség. A kristály optikai tengelyének és felületi normálisának ϑ szöge 29,9° volt, ami merőleges beesés esetén 781,6 nm-en jelent fázisillesztést. A kristály beállítását a femtoszekundumos oszcillátor impulzusaival végeztem el, amelyek központi hullámhossza 803 nm volt. Hogy a fázisillesztés ezen a hullámhosszon teljesüljön ($\vartheta = 29,13°$), a kristályt kissé meg kellett dönteni. Az autokorrelátor két karjából érkező impulzusokat egy 10 cm fókusztávolságú gömbtükör fókuszálta a kristályba.

Másodharmonikus autokorrelátornál alapvető követelmény a megfelelően beállított és elegendően széles konverziós tartományú nemlineáris kristály. Ellenkező esetben az impulzus spektruma torzul a frekvenciakonverzió során, ami hibás autokorrelációhoz, illetve FROG jelhez vezethet. A megfelelő frekvenciakonverzió ellenőrzésére összehasonlítottam az autokorrelátor zérus késleltetésénél felvett $I_2(2\omega)$ felharmonikus spektrumot a függetlenül mért $I_1(\omega)$ alapharmonikus spektrummal. Ideális frekvenciakétszerezés esetén a 2ω felharmonikus frekvencia függvényének tekintett alapharmonikus spektrum $I_1^2(2\omega)$ négyzetének, meg kell egyeznie $I_2(2\omega)$-val. A 31. ábrán látható, hogy az $I_1^2(2\omega) = I_2(2\omega)$ feltétel nagy pontossággal teljesült. Az ábrán látható még a BBO kristály számított frekvenciakétszerezési hatásfok-görbéje is. Látható, hogy az alkalmazott kristályvastagság megfelelően széles konverziós tartományt biztosít az impulzus teljes spektrumának frekvenciakétszerezéséhez.

Az autokorrelátor karjainak megfelelő beállítását a felvett autokorrelációs és FROG nyomok $\tau = 0$ késleltetésre vonatkozó szimmetriájával ellenőriztem. Ehhez mellékimpulzusokkal rendelkező impulzusokat használtam, amelyeket a Rb-gőzőn való átbocsátással állítottam elő.

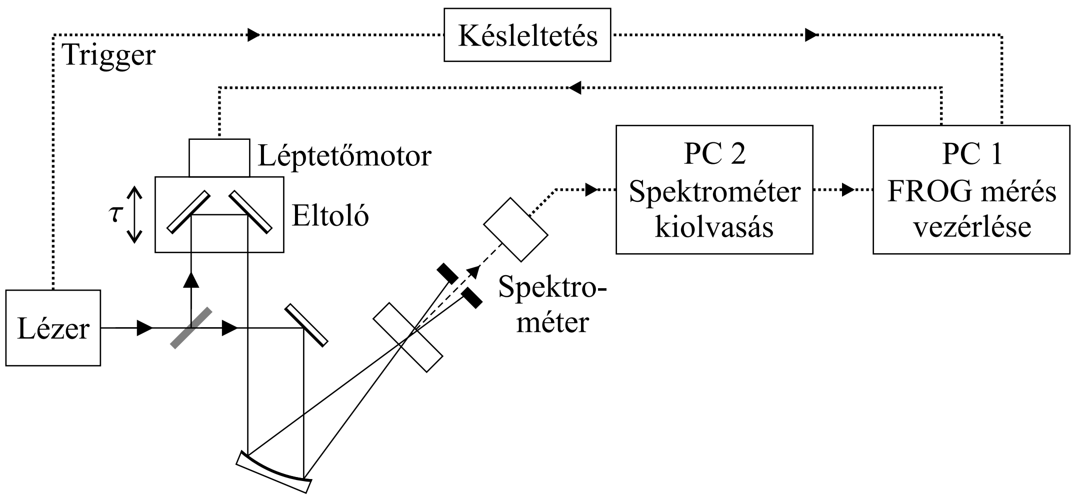
Az autokorrelátor egyik karjának hosszúságát egy léptetőmotorral meghajtott eltoló segítségével lehetett nagy pontossággal változtatni. A FROG berendezéshez egy (Bestec POC4M típusú) rácsos spektrométert használtam, amelynek a detektora egy diódasor volt. A FROG mérések vezérléséhez számítógépes programot készítettünk; a vezérlésről a 32. ábra ad áttekintést. A LabView-ban kódolt vezérlőprogram irányította a spektrométer dióda-



31. ábra. Az autokorrelátor zérus késleltetésénél mért felharmonikus spektrum és az alapharmonikus spektrum összehasonlítása a (b) jelű impulzusoknál. A $\mathrm{sinc}^2(\Delta kL/2)$ konverziós görbe a kristály L=100 μm és $\vartheta = 29,13°$ paramétereivel számított.

sorának kiolvasását (egy technikai okokból közbeiktatott másik számítógépen keresztül), a léptetőmotor vezérlésével az autokorrelátor késleltetésének beállítását, valamint a mérési adatok rögzítését.

Az impulzusok térerősségét egy fázisrekonstrukciós program (Femtosoft Technologies) segítségével kaptuk a mért FROG jelekből. A rekonstrukcióhoz a FROG képet interpolációval megfelelő frekvencia-idő rácsra kellett áttenni, mert a rekonstrukciós algoritmushoz a frekvenciabeli és az időbeli lépésköz adott aránya szükséges. A rács lépésközeit úgy kell megválasztani, hogy az ne okozzon információvesztést.

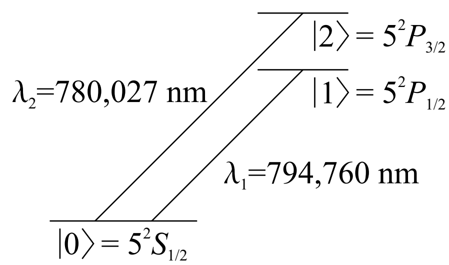


32. ábra. A FROG mérések számítógépes vezérlése.

9. Elméleti modellek

A bemenő impulzusok energiájától függően két különböző elméleti modellt használtunk a lézerimpulzusok és a Rb atomok kölcsönhatásának leírására. Alacsony energiájú impulzusok esetében, amikor a rezonáns kölcsönhatás során fellépő impulzusformálás gyakorlatilag független az impulzusenergiától, a lineáris diszperzió klasszikus elméletét alkalmaztuk. Ez a leírás a fénnyel kölcsönható atomi elektront az atomtörzshöz kötött harmonikus oszcillátornak tekinti. Nagyobb energiájú impulzusoknál szemiklasszikus elméletet használtunk, ahol az impulzusterjedést a Maxwell–Bloch-egyenletek írják le, amelyeket a kísérleti eredmények modellezésére numerikusan oldottunk meg.

A számításoknál a Rb-nak mind a $\lambda_1 = 794.760$ nm-es, mind a $\lambda_2 = 780.027$ nm-es hullámhosszú elnyelési vonalát figyelembe vettük, mert a kísérletekben használt lézerimpulzusok széles spektruma miatt mindkét átmenet szerepet játszott a lézer-atom kölcsönhatásban. Az említett spektrumvonalak a rubídium $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{1/2}$, illetve $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2}$ átmenetéhez tartoznak. A lézerimpulzusok sávszélessége 10^4–10^5-szerese a spektrumvonalak



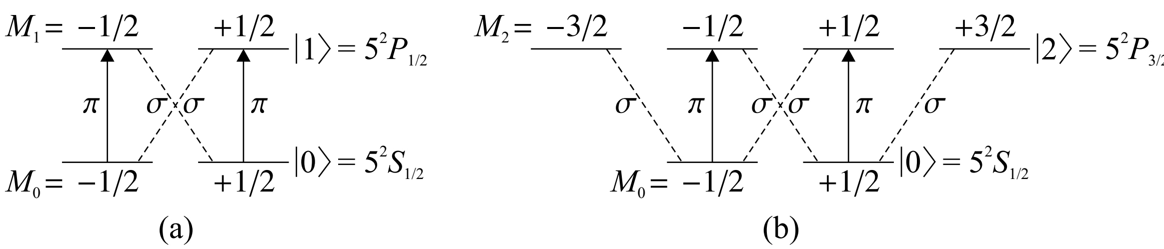
33. ábra. A ^{85}Rb lézerimpulzusokkal való kölcsönhatásnál szerepet játszó energiaszintjei és átmenetei.

szélességének (extrém SLL tartomány), ezért a pontos abszzorpciós profil (vonalalak és -szélesség, valamint hiperfinom szerkezet) figyelembevétele nem szükséges.

Az S és P állapotok hiperfinom szerkezetének elhanyagolása a 33. ábrán látható egyszerűsített nívósémához vezet. A lézerimpulzusokkal való kölcsönhatás szempontjából a Rb háromszintes atomnak tekinthető. Megjegyezzük, hogy ezt a sémát (közös alapállapotból induló két átmenet) gyakran V-típusúnak nevezik. A hiperfinom kölcsönhatás elhanyagolásával az atomi elektron teljes impulzusmomentumát az elektronspin és a pálya-impulzusmomentum összegeként írhatjuk: $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$. Az egyes állapotok $(2J+1)$-szeresen degeneráltak; az egyes degenerált nívók közötti átmenetekre esetünkben a $\Delta M = 0$ kiválasztási szabály érvényes (34. ábra), minthogy a kísérletekben lineárisan polarizált lézerfényt használtunk. Itt M a $\mathbf{J}$ teljes impulzusmomentum projekciós kvantumszáma. Így a λ_1, illetve λ_2 hullámhosszú átmenetek az alábbi két-két, degenrált nívók közötti átmenetre bonthatók:

$$
\begin{aligned}
5^2S_{1/2}, M = \pm 1/2 &\quad \to \quad 5^2P_{1/2}, M = \pm 1/2, \qquad (39)\\
5^2S_{1/2}, M = \pm 1/2 &\quad \to \quad 5^2P_{3/2}, M = \pm 1/2.
\end{aligned}
$$

A lézer-atom kölcsönhatás leírásához mind a klasszikus, mind a szemiklasszikus modellben szükség van az egyes atomi átmenetekhez tartozó át-



34. ábra. Degenerált nívók közötti megengedett átmenetek Rb-nál a hiperfinom kölcsönhatás elhanyagolása esetén. π jelöli a lineárisan polarizált, σ a cirkulárisan polarizált lézerfény által indukált átmeneteket.

meneti dipólusmomentumok ismeretére. A klasszikus leírásnál az átmeneti dipólusmomentumok az oszcillátorerősségnek nevezett paraméterek kiszámításához szükségesek, amelyek klasszikus keretek között nem adhatók meg (legfeljebb empirikusan). Az oszcillátorerősségek az egyes atomi átmenetekkel való kölcsönhatás erősségét jellemzik.

Az egyes átmenetekhez tartozó átmeneti dipólusmomentumok a Coulomb-közelítésben számolhatók ki [66, 67]. Az állapotok 33. ábrán látható indexelését követve a dipólusmomentumok így írhatók:

$$\mu_{0k} = e\,|\langle 0|\mathbf{r}|k\rangle|\,, \quad k = 1, 2, \tag{40}$$

ahol $\mathbf{r}$ az elektron helyvektora. $\tau_1 = 27,0$ ns és $\tau_2 = 25,7$ ns élettartamokkal [67] $\Delta M = 0$ figyelembevételével a következő értékek adódnak:

$$\begin{aligned} \mu_{01} &= 1,48 \cdot 10^{-29}\ \text{Asm}, \\ \mu_{02} &= 2,09 \cdot 10^{-29}\ \text{Asm}. \end{aligned} \tag{41}$$

μ_{01} és μ_{02} relatív hibája, ami a Theodosiou által számított, illetve a mások által mért [67] különböző élettartam-értékekből adódik, kisebb 5% -nál.

A kis intenzitású impulzusok esetére a komplex törésmutató frekvencia-függése a klasszikus diszperzióformula szerint a következőképpen írható:

$$n(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{2\varepsilon_0 m_e} \sum_{k=1}^{2} f_{0k} \frac{1}{\omega_k^2 - \omega^2 + i\gamma_k \omega}. \tag{42}$$

Itt N a Rb-atomok sűrűsége, e az elektron töltése, m_e az elektron tömege, $\omega_k = 2\pi c/\lambda_k$ $(k = 1, 2)$ az átmeneti frekvencia, γ_k a vonalszélesség. Az f_{0k} oszcillátorerősség az átmeneti dipólusmomentum ismeretében számítható ki:

$$f_{0k} = \frac{2m_e\omega_k}{3\hbar e^2} \frac{1}{g_0} \sum_{M_0} \sum_{M_k} \mu_{0k}^2, \tag{43}$$

ahol $g_0 = 2$ az alapállapot degenerációja, $M_0, M_k = \pm 1/2$ lineárisan polarizált fényre (34. ábra). Az oszcillátorerősségekre így az $f_{01} = 0,32$ és $f_{02} = 0,67$ értékek adódnak.

Az extrém SLL közelítés másik következménye (a hiperfinom kölcsönhatás elhanyagolhatóságán túl) a pontos vonalalak és vonalszélesség figyelembevételének szükségtelensége. Ezt kihasználva az atomok hőmozgásának hatását a szokásos konvolúciós integrál helyett [68] (amely az abszorpciós Voigt-profilhoz vezet) csupán a γ_k $(k = 1, 2)$ vonalszélességben vettük figyelembe egy additív $\gamma_{\mathrm{D}k}$ konstansként. $\gamma_{\mathrm{D}k} = (\omega_k/\pi c)\sqrt{2 \ln 2kT/m_{\mathrm{Rb}}}$ a Doppler-kiszélesedés (T a hőmérséklet, m_{Rb} a Rb-atom tömege), amely Rb esetében 500 K hőmérsékleten 1 GHz nagyságrendű; mellette az 5 MHz körüli természetes vonalszélesség elhanyagolható.

A γ_{c} ütközési kiszélesedés esetében is elegendő a nagyságrendet megbecsülni. A kísérletekben használt cellahőmérsékleteknél a Rb-gőz sűrűsége sokkal kisebb volt a cellában lévő Ar-gázénál, amely szobahőmérsékleten 1 mbar nyomású volt. Az ütközési kiszélesedésnél így elegendő csak az Ar-atomokkal való ütközések figyelembevétele:

$$\gamma_{\mathrm{c}} \approx N_{\mathrm{Ar}} \sigma \sqrt{\frac{8kT}{\pi\mu}}, \tag{44}$$

ahol N_{Ar} az Ar-gáz sűrűsége, σ a Rb-Ar ütközési hatáskeresztmetszet, μ a relatív tömeg. σ-ra kielégítőnek bizonyult a 10^{-14} cm^2-es durva nagyságrendi becslés. Az eddigiek alapján a komplex törésmutató (42) kifejezésében a $\gamma_k \approx \gamma_{\mathrm{D}k} + \gamma_{\mathrm{c}}$ közelítés adódik.

Nagyobb intenzitású lézerimpulzusok esetén, ahol a lineáris klasszikus modell érvényét veszti, a Maxwell–Bloch-egyenleteket alkalmaztuk az impulzusterjedés modellezésére. A háromszintes atomi rendszer és a lézerimpulzusok kölcsönhatását leíró egyenleteket a forgóhullámú közelítésben [7, 45, 69] numerikusan oldottuk meg. Az impulzusterjedésre vonatkozó hullámegyenlet a lassan változó burkoló közelítésben a következő:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right)\tilde{\mathcal{E}}(t,z) = i\frac{1}{2}\mu_0\omega_0 c\tilde{\mathcal{P}}(t,z), \tag{45}$$

ahol ω_0 az impulzusok központi frekvenciája, μ_0 a vákuum-permeábilitás, $\tilde{\mathcal{E}}$ illetve $\tilde{\mathcal{P}}$ az elektromos térerősség illetve a polarizáció (lassan változó) komplex burkolója. Megjegyezzük, hogy a fenti egyenletben az Ar-gáz törésmutatóját, a (42) egyenlettel összhangban, 1-nek vettük. A polarizációt a

$$\tilde{\mathcal{P}}(t,z) = 2N\left[\mu_{01}\rho_{10}(t,z)e^{i\omega_0 t} + \mu_{02}\rho_{20}(t,z)e^{i\omega_0 t}\right] \tag{46}$$

egyenlet határozza meg, ahol ρ_{10} és ρ_{20} a sűrűségmátrix elemei. A sűrűségmátrix időfejlődését a következő egyenletek írják le:

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{00} &= -\frac{1}{\hbar}\mathrm{Im}\left(\mu_{01}\tilde{\mathcal{E}}^*\rho_{10}e^{i\omega_0 t} + \mu_{02}\tilde{\mathcal{E}}^*\rho_{20}e^{i\omega_0 t}\right), \\
\dot{\rho}_{11} &= \frac{1}{\hbar}\mathrm{Im}\left(\mu_{01}\tilde{\mathcal{E}}^*\rho_{10}e^{i\omega_0 t}\right), \\
\dot{\rho}_{22} &= \frac{1}{\hbar}\mathrm{Im}\left(\mu_{02}\tilde{\mathcal{E}}^*\rho_{20}e^{i\omega_0 t}\right), \\
\dot{\rho}_{10} &= -i\omega_1\rho_{10} + \frac{i}{2\hbar}\left[\mu_{10}\left(\rho_{00}-\rho_{11}\right) - \mu_{20}\rho_{12}\right]\tilde{\mathcal{E}}e^{-i\omega_0 t}, \\
\dot{\rho}_{20} &= -i\omega_2\rho_{20} + \frac{i}{2\hbar}\left[\mu_{20}\left(\rho_{00}-\rho_{22}\right) - \mu_{10}\rho_{21}\right]\tilde{\mathcal{E}}e^{-i\omega_0 t}, \\
\dot{\rho}_{21} &= -i\omega_{21}\rho_{21} + \frac{i}{2\hbar}\left(\mu_{20}\rho_{01}\tilde{\mathcal{E}} - \mu_{01}\rho_{20}\tilde{\mathcal{E}}^*\right)e^{i\omega_0 t}.
\end{aligned} \tag{47}$$

A fenti egyenletekben elhanyagoltuk az ütközési, illetve a termikus sebességeloszlásból eredő dekoherenciát, valamint a gerjesztett állapotok populációjának csökkenését [7] — tekintve, hogy a lézerimpulzusok időfejlődését kb. 1 ps-nál rövidebb időskálán vizsgáltuk. Az extrém SLL közelítésben nem szükséges a Doppler-vonalprofil figyelembevétele, ami a polarizáció (46) kifejezésében konvolúciós integrálhoz vezetne [56]

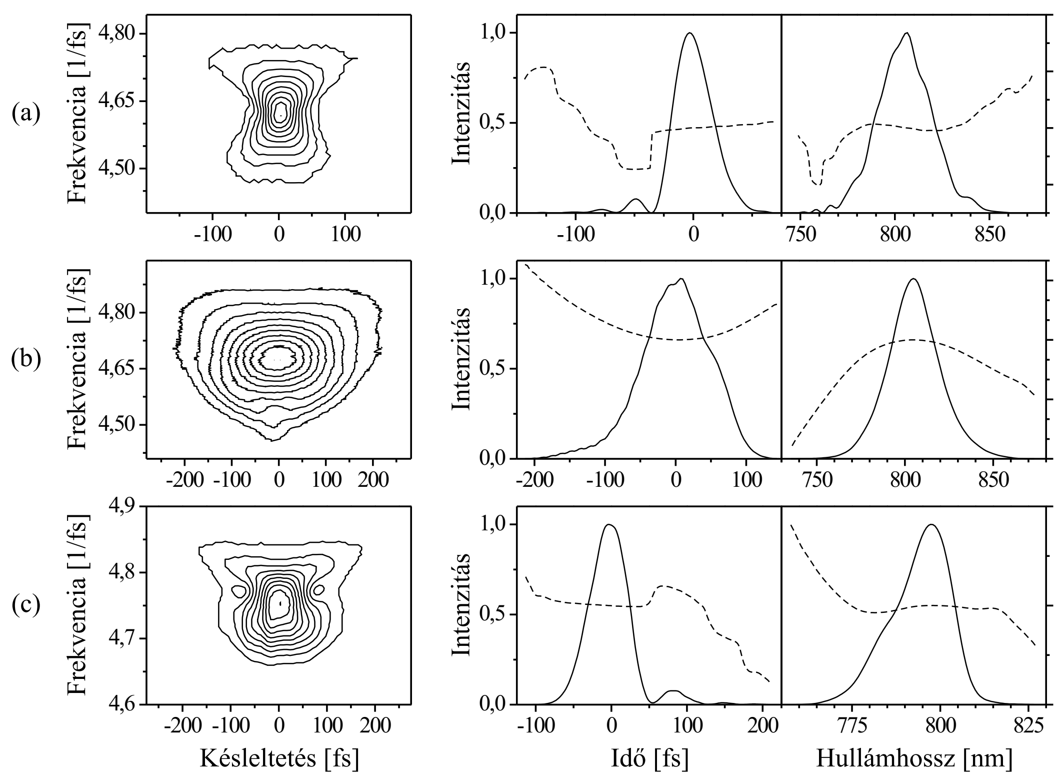
10. Rezonáns közegben terjedő impulzusok térerősségének mérése

A következőkben a kísérleti eredmények tárgyalásánál először a kölcsönhatás előtti impulzusszerkezet rekonstruálásáról szólok. Majd a rezonáns kölcsönhatás utáni impulzusok mért és a számított térerősségének összevetésével megvizsgálom a kezdeti fázismoduláció hatását az impulzusformálásra.

10.1. Bemenő impulzusok karakterizálása

A femtoszekundumos lézerimpulzusok rubídium-gőzben való formálásának pontos modellezéséhez alapvető fontosságú volt az impulzusok kezdeti amplitúdó- és fázisszerkezetének meghatározása. Ebből a célból felvettük a kiindulási impulzusok FROG képét is, amelyeket a rekonstruált amplitúdó- és fázisszerkezettel együtt az alacsony energiájú impulzusok esetében a 35. ábra mutat. Az impulzusok paramétereit az 1. táblázat foglalja össze. A fázis-deriváltakat és az impulzusok időtartamát FROG mérésekből, λ és $\Delta\lambda$ értékeit spektrométerrel határoztam meg.

A 7. fejezetben említettük, hogy a másodharmonikus FROG képből nem határozható meg egyértelműen az idő iránya. Ez például a harmadrendű



35. ábra. Lézerimpulzusok FROG-képe, valamint rekonstruált időbeli és spektrális szerkezete a Rb-mal való kölcsönhatás előtt. A folytonos vonal az intenzitást, a szaggatott a fázist jelöli.

Impulzus	λ_0 [nm]	$\Delta\lambda$ [nm]	φ'' [fs^2]	φ''' [fs^3]	τ_p [fs]	$\ddot{\varphi}$ [fs^{-2}]
(a)	803	32	-32	-2144	38	$-8,8 \cdot 10^{-5}$
(b)	803	32	-492	-312	113	$4,4 \cdot 10^{-4}$
(c)	793	24	70	6861	60	$4 \cdot 10^{-5}$

1. táblázat. A Rb-mal való kölcsönhatás előtti impulzusok paraméterei. λ_0: központi hullámhossz; $\Delta\lambda$: spektrális intenzitás-félértékszélesség; $\varphi'' = (d^2\varphi/d\omega^2)|_{\omega_0}$, $\varphi''' = (d^3\varphi/d\omega^3)|_{\omega_0}$: másod-, illetve harmadrendű spektrális fázis; τ_p: időbeli intenzitás-félértékszélesség; $\ddot{\varphi}$: lineáris frekvencia-moduláció (*chirp*).

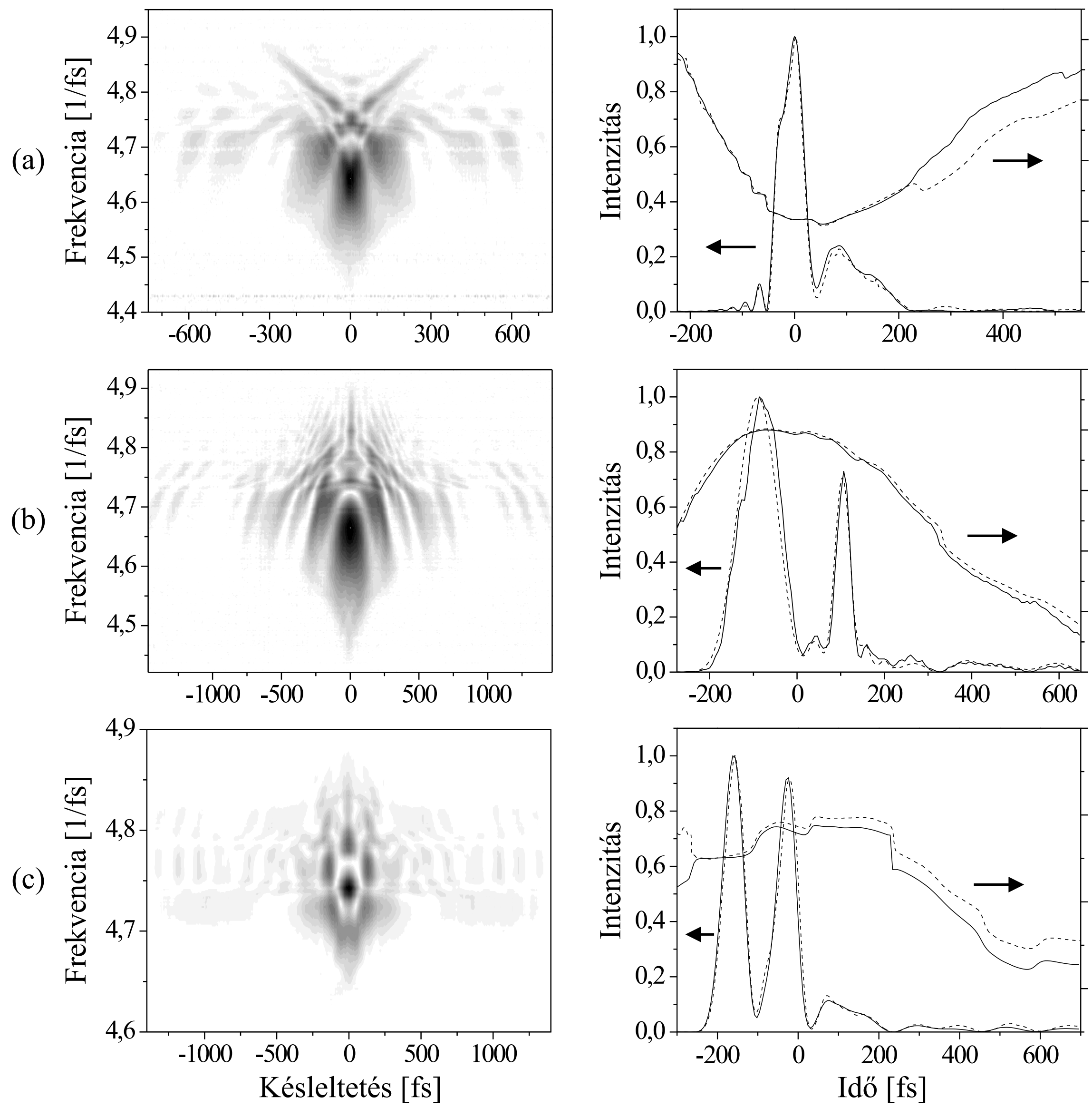
fázismodulációval rendelkező (a) és (c) impulzusoknál azt jelenti, hogy nem dönthető el a harmadrendű fázis előjele, és így az sem, hogy ez elő- vagy utóimpulzusokat eredményez. Mivel ezeknek az impulzusoknak a másodrendű spektrális fázisát impulzuskompresszorral kompenzáltuk, a kompresszor paramétereinek ismeretében elvileg megmondható a harmadrendű fázis előjele. Esetünkben kínálkozott egyszerűbb út is az előjel meghatározására. A rezonáns közegben való impulzusterjedés elméletéből ismert, hogy ilyen közegben utóimpulzusok sorozata keletkezik. Az impulzusok szerkezetét a Rb-gőzben való terjedés után a 36. ábra mutatja, amelyet a következő pontban tárgyalunk részletesen. Az (a) esetben a rezonáns kölcsönhatás által keltett előimpulzus-sorozat és a kezdeti harmadrendű fázisra visszavezethető impulzussorozat a főimpulzus egymással ellentétes oldalán vannak. A harmadrendű spektrális fázis itt előimpulzusokat okozott. A (c) esetben a főimpulzusnak csak egyik oldalán figyelhetők meg szatellit impulzusok. A rezonáns impulzusformálás hatása elfedi a kezdeti harmadrendű fázis kis intenzitású impulzussorozatát, az külön nem látható. Ebben az esetben a harmadrendű fázis utóimpulzusokat eredményezett.

Megjegyezzük még, hogy a 35.(b) ábra esetében a másodrendű fázis — az optikai üvegek 800 nm körül tipikusan 100 fs^2/mm nagyságrendű fázistolását figyelembe véve — néhány mm üvegben megtett útnak felel meg.

10.2. Rezonáns impulzusformálás mérése és modellezése

Alacsony impulzus-intenzitásnál az (a), (b) és (c) impulzusokkal végeztünk méréseket (35. ábra, 1. táblázat). Mindhárom esetben felvettük a bemenő, valamint a Rb-mal való kölcsönhatás utáni, kimenő impulzusok FROG képét. A modellszámításokban a bemenő impulzusok FROG képből rekonstruált térerősségét használtuk kiindulási térerősségként — a bemenő impulzusszerkezet analitikus közelítése helyett.

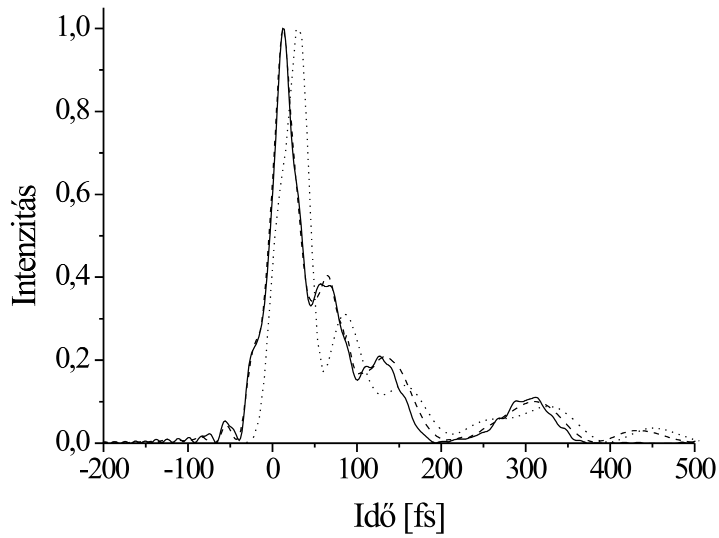
A Rb-gőzzel való kölcsönhatás utáni impulzusok FROG képét, rekonstruált és számított időbeli térerősségét a 36. ábra mutatja. A mért FROG kép alapján ezeknek a bonyolult szerkezetű impulzusoknak is nagy pontossággal rekonstruálható a térerőssége. Jól mutatja ezt az elméleti és a rekonstruált amplitúdó- illetve fázisgörbék kitűnő egyezése mindhárom esetben. Az ábráról látható, hogy a legnagyobb relatív intenzitású utóimpulzus akkor keletkezett, amikor az impulzus központi hullámhossza jó közelítéssel megegyezett az egyik átmenet hullámhosszával (esetünkben a 794 nm-esével, (c) ábra). Az (a) esetben, amikor mindkét abszzorpciós vonal az impulzus központi hullámhosszától eltolódva, az impulzus-spektrum egyik szélére esett, az impulzusformálás mértéke jóval kisebb volt (lásd a későbbi 38. ábrát is). Ugyanilyen spektrális intenzitású, de számottevő frekvenciamodulációval (*chirp*) rendelkező impulzus esetében azonban ismét nagy relatív intenzitású utóimpulzus keletkezett (b).



36. ábra. Impulzusok FROG képe és időbeli térerőssége Rb-mal való kölcsönhatás után. A FROG alapján rekonstruált amplitúdó és fázis folytonos vonallal, a számított szaggatottal jelölve. Az egyes impulzusok betűjelzése a megfelelő bemenő impulzusra utal.

Az alacsony intenzitású impulzusok terjedésének modellezésére a lineáris diszperzió elméletét alkalmaztuk. Mivel a bemenő impulzusok szerkezetét referencia FROG mérésekkel meghatároztuk, a lineáris modell egyetlen meghatározatlan paramétere a Rb-atomok sűrűsége maradt. Ezt számítások segítségével kaptuk meg, abból a feltételből, hogy a mért és számított térerősségek eltérése minimális legyen. A módszer meglehetősen pontosnak bizonyult, az atomsűrűség relatív hibáját 1% -nak becsültük. A tényleges pontosság azonban ennél kisebb volt az átmeneti dipólusmomentumok értékeinek mintegy 5% -os bizonytalansága miatt. Mindezek alapján a rubídiumgőz hőmérséklete $(163,0 \pm 3,0)$°C-nak adódott, ami $(2,0 \pm 0,2) \cdot 10^{14}$ cm^{-3}-es atomsűrűségnek felel meg. Megjegyezzük, hogy amennyiben az atomsűrűség kellő pontossággal ismert (pl. pontos hőmérséklet-mérés alapján), a FROG mérés felhasználható az átmeneti dipólusmomentumok értékének meghatározására.

A 37. ábra illusztrálja, hogy a rezonáns impulzusformálás pontos modellezéséhez a bemenő impulzus amplitúdója mellett fázisszerkezetének pontos ismeretére is szükség van. Az ábrán látható a FROG kép alapján rekonstruált intenzitás, az (a) bemenő impulzus segítségével számított kimenő intenzitás, valamint egy összehasonlító számítás eredménye, ahol az (a) bemenő impulzust egy vele azonos időtartamú transzformáció-limitált Gauss-impulzussal helyettesítettük. (Megjegyezzük, hogy ennél a mérésnél a Rb-gőz hőmérséklete kissé eltért az előbb említett értéktől. A mért kimenő impulzusalak emiatt kismértékben különbözik a 36.a ábráétól.) A két számításnál a bemenő impulzusok között — az impulzusalak kevésbé jelentős eltérését leszámítva — az egyetlen lényeges eltérés tehát a fázisszerkezetben volt: az (a) impulzus harmadrendű spektrális fázisa hiányzott a Gauss-impulzusnál. A fázis másodrendű tagja mindkét esetben zérus volt. A mért impulzu-



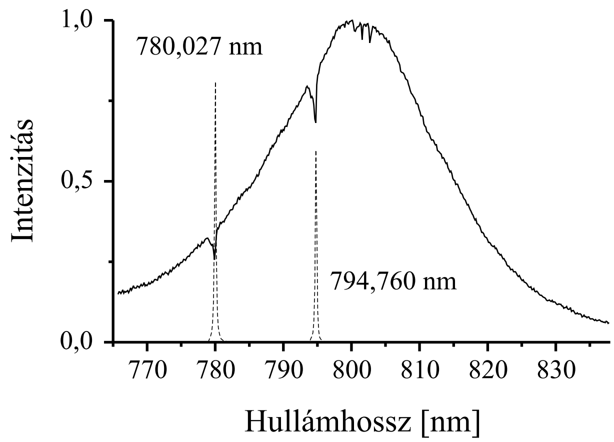
37. ábra. A mért impulzusalakot (folytonos vonal) jól visszaadja az (a) bemenő impulzus segítségével számított impulzusalak (szaggatott vonal), míg egy vele azonos időtartamú transzformáció-limitált Gauss-impulzussal végzett számítás (pontozott vonal) számottevő eltérést mutat. (A Rb-gőz sűrűsége $5 \cdot 10^{14}$ cm^{-3} volt.)

salakkal jól egyezik az első számítás eredménye; a fázismoduláció nélküli Gauss-impulzussal végzett számítás azonban számottevő eltérést mutat. Ez utóbbi esetben hiányzik a gyenge előimpulzus-sorozat, ami egyértelműen a kezdeti harmadrendű fázismoduláció hiányából fakad. A fő eltérés azonban a főimpulzust követő utóimpulzusok relatív intenzitásában és helyzetében mutatkozik. A bemenő impulzusok harmadrendű fázisának és a rezonáns atomi rendszer fázistolásának együttes hatása eltérő impulzusformálást eredményez.

Amíg a rezonáns közeg impulzusformálását a főimpulzust követő néhány impulzushossznyi időtartományban a bemenő impulzus fázisszerkezetének és a rezonáns közeg fázismodulációjának együttes hatása határozza meg, hosszabb időskálán eltérő viselkedés tapasztalható. A nagy relatív intenzitású utóimpulzusok lecsengése után (esetünkben a főimpulzust követő kb. 300 fs-on túl) a kimenő impulzusok amplitúdójának $T = 140$ fs periódusú oszcillációja figyelhető meg, ami $\nu = 1/T = 7,1 \cdot 10^{12}$ Hz frekvenciának felel meg. A $\Delta E = h\nu$ összefüggésből adódó energiaérték éppen megegyezik az $5^2P_{1/2}$ és az $5^2P_{3/2}$ szintek közötti energiakülönbséggel. Hasonló „lebegési" jelenséget (*beating*) figyeltek meg Zamith és munkatársai [70], valamint Kallmann és munkatársai [56] a hiperfinom felhasadás esetében; természetesen a sokkal kisebb energiakülönbségnek megfelelő jóval alacsonyabb frekvenciával. Hosszabb időskálán az impulzusformálást tehát a rezonáns átmenetek közötti frekvenciakülönbség határozza meg, és nagymértékben független a bemenő impulzus fázisszerkezetétől.

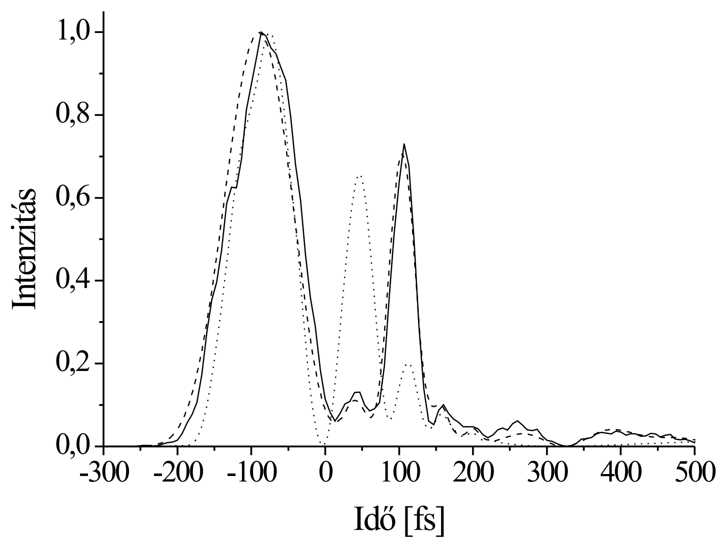
A 38. ábra a (b) jelű, 803 nm központi hullámhosszú, komprimálatlan impulzusok spektrumát mutatja a Rb-mal való kölcsönhatás után. A spektrumban jól látható a Rb két abszorpciós vonala. A 780 nm-es vonal a spektrum szélére esik, ahol az intenzitás csupán 25%-a a csúcsértéknek. A 39. ábra szemlélteti, hogy a gyenge relatív intenzitás ellenére sem hanyagolható el a számításokban ez a vonal. Figyelembevétele nem csupán a gyenge relatív intenzitású lebegésre ad magyarázatot. Az ábrán a mért, illetve a mindkét átmenet figyelembevételével számított időbeli intenzitás mellett egy további számítás eredménye látható, ahol csak a 794 nm-es vonalat vettük figyelembe. Látható, hogy a főimpulzust követő nagy relatív intenzitású utóimpulzusok tekintetében ez utóbbi számítás jelentősen eltér a kísérleti impulzusalaktól. Természetesen a háromszintes rendszerre jellemző gyenge lebegés sem jelenik meg a kétszintes esetben.

A nagy intenzitású (erősített) lézerimpulzusokkal végzett méréssorozat-



38. ábra. A (b) impulzusok spektrumában (folytonos vonal) a Rb-gőzön való áthaladás után jól látható a két abszorpciós vonal. A szaggatott vonal egy Rb spektrállámpa emissziós spektrumát mutatja.

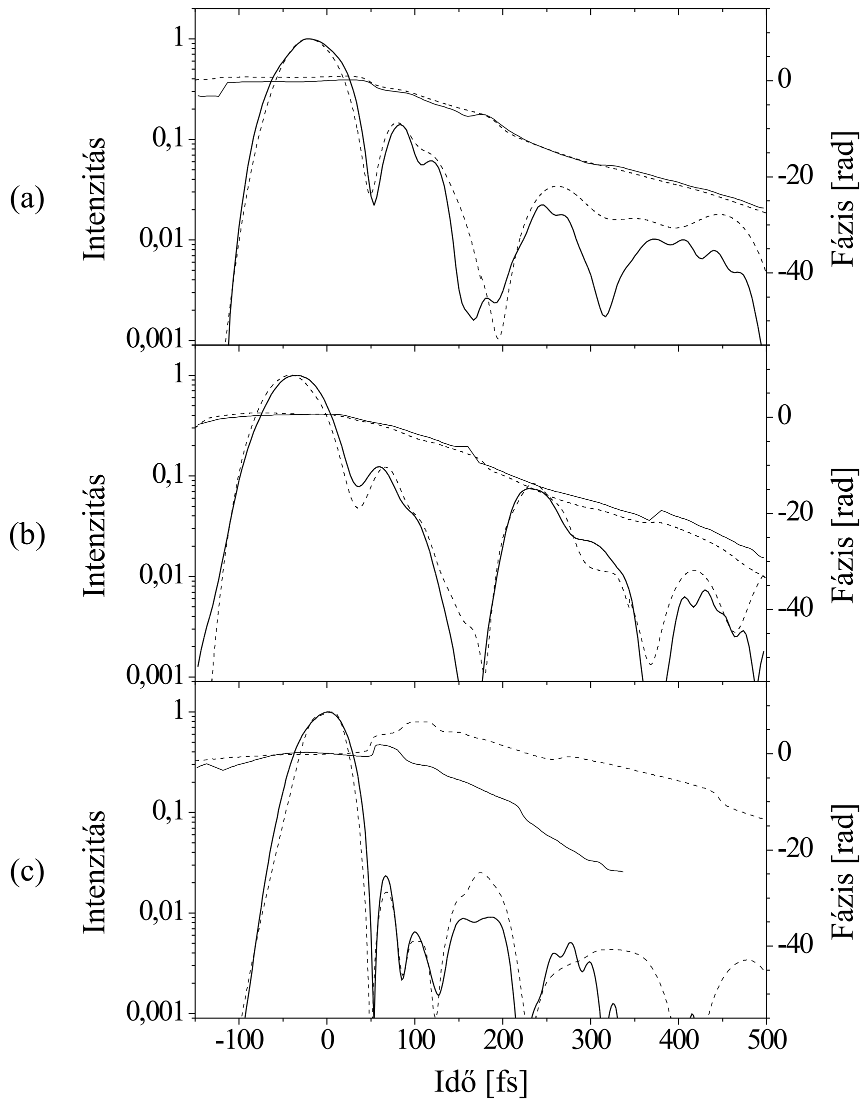
ban a lézer-atom kölcsönhatás intenzitásfüggését vizsgáltuk. Ismert [51], hogy nagy impulzusenergiáknál az abszorpció telítődése fontos szerepet játszik, és a Rb-gőz válasza nem csupán diszperzív. A kísérleti eredmények modellezéséhez a Maxwell–Bloch-egyenleteket numerikusan oldottuk meg. A FROG mérések alapján rekonstruált, valamint a numerikus számításokból kapott időbeli amplitúdó- és fázisgörbéket a különböző lézerintenzitások esetén a 40. ábrán láthatjuk. Az egyes méréseknél a bemenő impulzusok csúcsintenzitása 9,6 MW/cm^2 (a), 2,0 GW/cm^2 (b), illetve 110 GW/cm^2 (c) volt. Ezek az intenzitásértékek az $5^2S_{1/2} - 5^2P_{1/2}$ (794 nm-es) átmenetre vonatkoztatva $0,03\pi$, $0,5\pi$, illetve $3,6\pi$ értékeknek felelnek meg. Az elméleti és a kísérleti görbék mindhárom esetben jól egyeznek. A telítődés következtében az impulzusformálás sokkal gyengébb a lineáris diszperzió tartományában tapasztalhatónál. Az utóimpulzusok maximális intenzitása kb. 10%-a a főimpulzusénak; a (c) esetben, ahol a bemenő intenzitás a legnagyobb volt, ez az érték csupán 2% körüli. Ez utóbbi esetben a főimpulzus után mint-



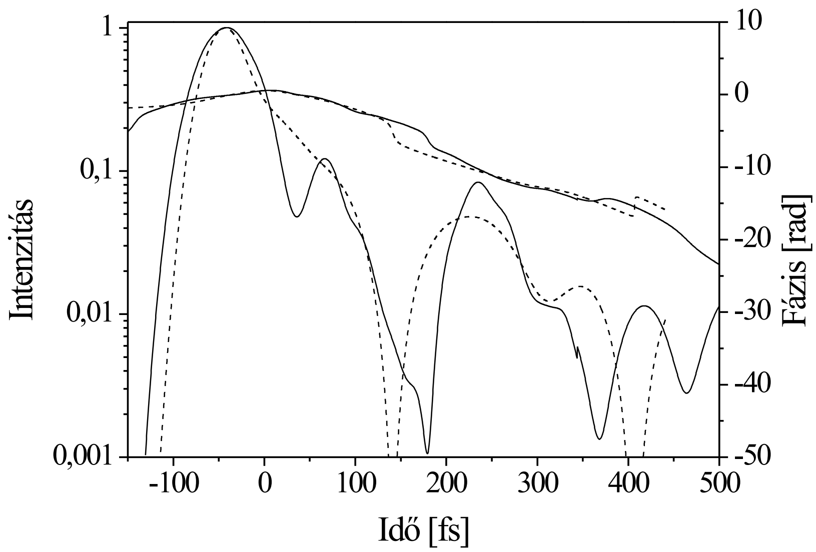
39. ábra. A mért impulzusalak (folytonos vonal) jól egyezik a számításokkal, ha a Rb-atomokat teljes háromszintes rendszerként modellezzük (szaggatott vonal). Ha csak azt az átmenetet vesszük figyelembe, amelyik rezonancia-frekvenciája az impulzusok központi frekvenciájához közelebb esik, a számítások hibás eredményre vezetnek (pontozott vonal).

egy 300 fs-on túl a mért és a számított impulzusszerkezet eltér egymástól. Ebben a tartományban az utóimpulzusok relatív intenzitása 0,5% alá esik, ami a detektálás zajszintjéhez közeli érték; a mérés itt már nem tekinthető megbízhatónak.

Az alacsony impulzusenergiákhoz hasonlóan a nagy intenzitások esetében is a FROG mérés alapján rekonstruált bemenő impulzusszerkezetből indultunk ki a számításoknál. A 41. ábra illusztrálja, hogy itt is döntő fontosságú a kezdeti fázisszerkezet pontos ismerete. Az ábrán a rekonstruált bemenő impulzusszerkezetből kiinduló számítás eredménye látható összehasonlításban az egyező spektrális szélességű, de transzformáció-limitált Gauss-impulzusból kiinduló számításéval. A két számítás között az utóimpulzusok szerkezetében mutatkozó szignifikáns eltérés a bemenő impulzusok magasabbrendű fázismodulációjának eltérésére vezethető vissza. A 40.(b) ábrával való összevetésből látható, hogy a mért impulzusszerkezet csak a tényleges bemenő impulzus segítségével reprodukálható kielégítő pontossággal.



40. ábra. Mért (folytonos vonal), illetve számított (szaggatott vonal) amplitúdó és fázis 9,6 MW/cm^2 (a), 2,0 GW/cm^2 (b), illetve 110 GW/cm^2 (c) intenzitások esetén.



41. ábra. A mért bemenő impulzussal készült számítás (folytonos vonal) és a transzformáció-limitált Gauss-impulzuson alapuló számítás (szaggatott vonal) között számottevő eltérés mutatkozik. A bemenő csúcsintenzitás mindkét esetben 2,0 GW/cm^2 volt.

ÖSSZEFOGLALÁS

1. Megvizsgáltam a diszperzív elemmel bővített kétutas elrendezést a szélessávú frekvenciakétszerezésre való alkalmazhatóság szempontjából. Diszperziókompenzált kétutas elrendezést javasoltam a szélessávú frekvenciakétszerezési hatásfok megnövelésére [39,41]. Megmutattam, hogy szélessávú diszperziókompenzált kétutas frekvenciakétszerezés akkor lehetséges, ha a diszperzív elem relatív fázistolása kompenzálja a nemlineáris kristályét annak teljes frekvenciakétszerezési tartományán.

   Tökéletes diszperzió-kompenzáció esetén a kétutas elrendezés sávszélessége kétszerese a diszperzív elem nélküli kétutas elrendezésének, és megegyezik az egyutas frekvenciakétszerezés sávszélességével. A diszperziókompenzált kétutas hatásfok négyszerese az egyutas frekvenciakétszerezési hatásfoknak.

2. Numerikus számítások segítségével megmutattam, hogy a kétutas frekvenciakétszerezési elrendezésben prizmapárt alkalmazva diszperzív elemként az egyutas frekvenciakétszerezéshez képest négyszeres konverziós hatásfok érhető el az egyutas sávszélesség megtartása mellett. Ezért a prizmapárral bővített elrendezés alkalmas monokromatikus, hangolható lézerfény szélessávú, megnövelt hatékonyságú frekvenciakétszerezésére [40]. A számítások szerint a kétutas elrendezés sávszélessége

~30 nm-nél kisebb egyutas sávszélességekre annak legalább 90%-át eléri.

3. Megmutattam, hogy prizmapár segítségével a kétutas elrendezésben a nemlineáris kristály ΔkL relatív fázistolása elsőrendben kompenzálható ~70 nm egyutas sávszélességig. Az elsőrendű kompenzációra a prizmapár szögdiszperzióján alapuló magyarázatot adtam [40]. A kétutas sávszélesség ~30 nm egyutas sávszélesség felett tapasztalt számottevő csökkenését a prizmapár másodrendű relatív fázistolására vezettem vissza, amely nem tesz eleget a kompenzációs feltételnek.

4. Numerikus számítások segítségével megmutattam, hogy a prizmapárral bővített kétutas elrendezés alkalmas femtoszekundumos impulzusok négyszeres hatékonyságú frekvenciakétszerezésére [39]. Megvizsgáltam az alkalmazhatóság határait az impulzusok időtartamának és intenzitásának tekintetében [40].

   A számítások szerint ~40 fs-nál hosszabb alapharmonikus impulzusoknál nem lép fel lényeges felharmonikus időbeli kiszélesedés. Ennél rövidebb bemenő impulzusok esetében a prizmapár másodrendű relatív diszperziójára visszavezethető konverziós sávszélesség-csökkenés a felharmonikus impulzusok 20%-nál nagyobb időbeli kiszélesedéséhez vezet. Az elrendezés használhatóságát magasabb impulzus-intenzitásoknál a nemlineáris fázis megjelenése korlátozza. A módszer lehetséges alkalmazása femtoszekundumos oszcillátorok impulzusainak frekvenciakétszerezése.

5. A FROG technika alkalmazásával kísérleti úton meghatároztam a rezonáns rubídiumgőzzel kölcsönható femtoszekundumos impulzusok időbeli amplitúdó- és fázisszerkezetét különböző szerkezetű és intenzitású

kiindulási impulzusok esetén [62]. A térerősség-méréseket kiterjesztettem a kölcsönhatás előtti impulzusokra is. A rezonáns kölcsönhatás kiindulási impulzusszerkezettől való függésének vizsgálatánál alapvető fontosságú volt a bemenő impulzusok térerősségének pontos ismerete.

6. A bemenő és a kölcsönhatás utáni impulzusok térerősségének mérésével közvetlen kísérleti úton kimutattam a rezonáns kölcsönhatás függését a kiindulási impulzusszerkezettől. Megmutattam, hogy a rezonáns impulzusformálás pontos modellezéséhez a bemenő lézerimpulzusok szerekezetének amplitúdóra és fázisra egyaránt kiterjedő részletes ismeretére van szükség. A rezonáns atomi rendszer impulzusformálását csak az impulzusok mért kezdeti térerősségéből kiinduló számítások képesek kielégítően reprodukálni úgy a lineáris, mint a nemlineáris kölcsönhatás tartományában.

   A lineáris kölcsönhatás tartományában a főimpulzust követő néhány impulzushossznyi időtartományban a bemenő impulzus fázismodulációja nagymértékben befolyásolja a rezonáns impulzusformálást. Ezzel szemben hosszabb időskálán az impulzusformálást lényegében egyedül a rezonáns atomi rendszer fázistolása határozza meg, az impulzusok különböző kiindulási fázismodulációja csupán kismértékű eltéréshez vezet [62].

Summary

I. Preliminaries and Goals

The development of the first lasers also triggered the development of pulsed lasers. Since then, the research on and with pulsed lasers has been growing continuously, and it is hard to overestimate its impact on other fields of sciences. Due to the development of mode-locked solid-state lasers in the last decade, it is now routine to generate pulses as short as few femtoseconds. Another important direction of laser research is the development of widely tunable cw lasers.

Femtosecond and widely tunable lasers radiate mainly in the long-wavelength range of the visible spectrum and in the near infrared. However, for an ever increasing variety of applications, the availability of shorter-wavelength ranges is essential. Frequency conversion in nonlinear optical processes is the common method for accessing other spectral ranges; one of the most often used is second harmonic generation (SHG) in nonlinear crystals. The most important practical criterion for short pulse SHG is the preservation of pulse duration in the conversion process. A necessary condition for this is a sufficiently broad SHG bandwidth, which includes the entire pulse spectrum. The frequency doubling bandwidth — being crucial for the SHG of tunable lasers, too — is inversely proportional to the crystal length, while the conversion efficiency is proportional to its square. Hence, the bandwidth requirement limits the crystal length, and in turn, drastically lowers the conversion efficiency. Dispersion compensation can increase the SHG efficiency for a given bandwidth, allowing for longer crystals.

One goal of the present work is the investigation of a new dispersion-compensated SHG scheme, capable of frequency doubling femtosecond pulses as well as widely tunable monochromatic laser sources with an increased efficiency. The proposed setup is based on the double-pass configuration improved by a proper dispersive element.

One of the most fundamental processes with femtosecond pulses is their resonant interaction with atoms. Short pulses, propagating in a resonant medium, can develop an amplitude and phase structure of considerable complexity. The pulse shaping depends on many parameters including atomic density and population, input pulse structure and intensity, and has been thoroughly investigated both theoretically and experimentally in the past. Over many years, the experimental efforts concentrated on spectral and pulse intensity-correlation measurements. Although these investigations were carried out with high precision, and good agreement between theory and experiment was found, they allow no direct access to the electric field of the pulses. For a more direct comparison between theory and experiment, a full (i.e. both amplitude and phase) characterization of the electric field of the pulses is desired. Due to the tremendous progress during the last decade in ultrashort-pulse diagnostic techniques, it is now routine to completely characterize the time dependence of the electric field of a short pulse using, for example, frequency resolved optical gating (FROG). Although full pulse characterization is essential in understanding complex pulse shaping phenomena, these methods have found application in studying resonant pulse propagation only recently.

The other goal of the present work is the experimental study of resonant laser-atom interaction by measuring both the amplitude and the phase of femtosecond pulses interacting with a resonant atomic medium, using the FROG technique. In addition to the pulses after resonant interaction, the incoming pulses are included in the electric field measurements as well, enabling a detailed study of the influence of initial phase modulation on the resonant reshaping of ultrashort laser pulses.

II. Methods of Investigation

The formalism introduced by Martinez was used to calculate the phase shift of the prism pair, which considerably simplified the calculations. The second harmonic (SH) field was calculated in the fixed-field approximation. A computer program was written to carry out the numerical calculations.

As laser source for the resonant pulse propagation experiments at low intensity, a Vitesse type femtosecond oscillator (Coherent Inc.) was used, delivering 96 fs pulses with 803 nm central wavelength and 32 nm spectral width. In some measurements, the pulses were compressed by a prism compressor to 38 fs, having only third-order (and small higher-order) spectral phase. Nearly transform-limited, sufficiently attenuated amplified pulses from a tunable Mira type femtosecond oscillator (Coherent Inc.) were used as well, with 24 nm spectral width at 793 nm. High-intensity pulses were generated by amplifying the oscillator pulses with an Odin type multipass Ti:sapphire amplifier (Quantronix Corp.), pumped by an intracavity-frequency-doubled Nd:YLF laser at 527 nm (Quantronix Corp.). For an easy variation of the pulse intensity over four orders of magnitude, an arrangement with reflective attenuators and three possible cell positions was built.

For the FROG measurements, a background-free SH intensity-autocorrelator was built, using a 100 μm thin BBO crystal. The data acquisition with the FROG apparatus was fully computer-controlled, including the readout of the spectra and the control of the autocorrelator delay by driving an Owis step motor. A Bestec POC4M type spectrometer was used for dispersing the autocorrelator signal. A FROG retrieval computer program from Femtosoft Technologies was used to reconstruct the electric field of the laser pulses from the measured FROG traces.

In the regime of linear laser-atom interaction classical dispersion theory (linear electron oscillator model) was applied, while in the nonlinear regime the Maxwell-Bloch equations (semiclassical model) were numerically solved.

III. Results

1. The two-pass SHG scheme, with a dispersive element inserted between the nonlinear crystal and the mirror, has been investigated with respect to broadband SHG. Dispersion-compensated two-pass (DCTP) SHG has been proposed for enhancing the SHG efficiency of the crystal [39, 41]. Broadband DCTP SHG has been shown to be possible if the relative phase shift of the inserted dispersive element compensates for that of the crystal over the entire SHG bandwidth.

   In case of perfect dispersion-compensation, the DCTP SHG bandwidth is twice as broad as that of the simple (i.e. with no compensating element) two-pass arrangement, and equals to the one-pass bandwidth of the crystal. The SHG efficiency of the DCTP scheme is four times higher than the one-pass efficiency.

2. With numerical calculations, it has been shown that the two-pass SHG

arrangement, with a prism pair inserted as the dispersive element, can provide a four times higher SHG efficiency than that of the one-pass scheme, while preserving the one-pass bandwidth. Thus, the two-pass scheme with the inserted prism pair can be used for broadband frequency doubling of tunable monochromatic laser sources with an increased efficiency [40]. According to the calculations, below $\sim$30 nm one-pass SHG bandwidth, the prism-pair compensated two-pass bandwidth reaches at least 90% of that of the one-pass.

3. In the DCTP arrangement, up to $\sim$70 nm one-pass bandwidth, first-order compensation of the relative phase shift ΔkL of the nonlinear crystal can be achieved with the inserted prism pair. An explanation of this effect has been given, based on the angular dispersion of the prism pair [40]. The increasing bandwidth-narrowing in the two-pass scheme above $\sim$30 nm one-pass bandwidth has been shown to be the result of the second-order relative phase shift of the prism pair, which fails to match the compensation condition.

4. The DCTP arrangement, with a prism pair as the dispersive element, can be used for frequency doubling of femtosecond pulses, with four times higher efficiency than that of the one-pass scheme [39]. The limiting effects for the arrangement have been analyzed with respect to pulse duration and intensity [40].

   According to the calculations, the width of pulses longer than $\sim$40 fs is essentially preserved in the doubling process. Pulses shorter than this experience an increase in SH pulse duration by more than 20% due to the decreased SHG bandwidth caused by the second-order relative dispersion of the prism pair. The increasing nonlinear phase limits two-pass dispersion compensation to lower intensities. The DCTP scheme with a prism pair may be used for SHG of unamplified pulses from femtosecond oscillators.

5. The temporal amplitude and phase structure of femtosecond pulses interacting with Rb vapor was experimentally determined using the FROG technique [62] for various initial pulse structures and intensities. The electric field measurements were extended to the incoming pulses as well. For the study of the dependence of the resonant interaction on the initial pulse structure a detailed knowledge of the electric field of the incoming pulses was essential.

6. By measuring the electric field of both the incoming and the transmitted pulses the dependence of the interaction with the resonant atomic system on the initial pulse structure has been demonstrated experimentally. The measured electric field of the outgoing pulses was compared to the results of numerical calculations starting from the measured input pulse structures. It has been shown that only the calculations starting from the measured input pulse structure can reproduce the resonant pulse shaping to a high enough accuracy.

   The pulse shaping is more pronounced in the linear interaction regime. In short time intervals, extending over a few pulse durations following the main pulse, the phase modulation of the incident pulse strongly influences the reshaping process, whereas on longer time scales it is governed mainly solely by the phase shift of the resonant atomic system [62].

Irodalomjegyzék

[1] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Optics and Photonics. Academic Press, San Diego, 1996.

[2] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*, chapter 10.2. A Complex Representation of Real Polychromatic Fields. Pergamon Press, 1970.

[3] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science, Mill Valley, 1986.

[4] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon. Negative dispersion using pairs of prisms. *Opt. Lett.*, 9:150–152, 1984.

[5] O. E. Martinez, J. P. Gordon, and R. L. Fork. Negative group-velocity dispersion using refraction. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1:1003–1006, 1984.

[6] Zs. Bor and B. Rácz. Group velocity dispersion in prisms and its application to pulse compression and travelling-wave excitation. *Opt. Commun.*, 54:165–170, 1985.

[7] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, San Diego, 1992.

[8] A. Yariv. *Quantum Electronics*. Wiley, New York, 1989.

[9] R. L. Sutherland. *Handbook of Nonlinear Optics*. Marcel Dekker, Inc., New York, 1996.

[10] P. W. Milonni and J. H. Eberly. *Lasers*. Wiley, New York, 1988.

[11] A. Ashkin, G. D. Boyd, and J. M. Dziedzic. Resonant optical second harmonic generation and mixing. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-2:109–123, 1966.

[12] R. G. Smith. Theory of intracavity optical second-harmonic generation. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-6:215–223, 1970.

[13] J. M. Yarborough, J. Falk, and C. B. Hitz. Enhancement of optical second harmonic generation by utilizing the dispersion of air. *Appl. Phys. Lett.*, 18:70–73, 1971.

[14] S. Umegaki. Two-pass optical second-harmonic generation. *Japan. J. Appl. Phys.*, 19:949–954, 1980.

[15] S. Umegaki. An efficient method of second harmonic generation internal to laser cavity. *Japan. J. Appl. Phys.*, 15:1595–1596, 1976.

[16] D. G. Gonzalez, S. T. K. Nieh, and W. H. Steier. Two-pass-internal second-harmonic-generation using a prism coupler. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-9:23–26, 1973.

[17] C. Iaconis and I. A. Walmsley. Fundamental-harmonic phase shift compensation in an intracavity frequency doubled Nd:YLF laser. *Opt. Commun.*, 149:61–63, 1998.

[18] S. Pearl, H. Lotem, Y. Shimony, and S. Rosenwaks. Optimization of laser intracavity second-harmonic generation by a linear dispersion element. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16:1705–1711, 1999.

[19] I. V. Tomov, R. Fedosejevs, and A. A. Offenberger. Up-conversion of subpicosecond light pulses. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-18:2048–2056, 1982.

[20] R. C. Eckardt and J. Reintjes. Phase matching limitations of high efficiency second harmonic generation. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-20:1178–1187, 1984.

[21] G. Szabó and Zs. Bor. Frequency conversion of ultrashort pulses. *Appl. Phys. B*, 58:237–241, 1994.

[22] E. Sidick, A. Knoesen, and A. Dienes. Ultrashort-pulse second-harmonic generation. I. Transform-limited fundamental pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12:1704–1712, 1995.

[23] V. G. Dimitriev, G. G. Gurzadyan, and O. N. Nikogosyan. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*. Springer Verlag, 1997.

[24] S. Backus, M. T. Asaki, C. Shi, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane. Intracavity frequency doubling in a Ti:sapphire laser: Generation of 14-fs pulses at 416 nm. *Opt. Lett.*, 19:399–401, 1994.

[25] S. H. Ashworth, M. Joschko, M. Woerner, E. Riedle, and T. Elsaesser. Generation of 16-fs pulses at 425 nm by extracavity frequency doubling of a mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, 20:2120–2122, 1995.

[26] D. Steinbach, W. Hügel, and M. Wegener. Generation and detection of blue 10.0-fs pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 15:1231–1234, 1998.

[27] A. Fürbach, T. Le, C. Spielmann, and F. Krausz. Generation of 8-fs pulses at 390 nm. *Appl. Phys. B*, 70:S37–S40, 2000.

[28] V. P. Yanovsky and F. W. Wise. Frequency doubling of 100-fs pulses with 50% efficiency by use of a resonant enhancement cavity. *Opt. Lett.*, 19:1952–1954, 1994.

[29] S. Saikan. Automatically tunable second-harmonic generation of dye lasers. *Opt. Commun.*, 18:439–443, 1976.

[30] S. Saikan, D. Ouw, and F. P. Schäfer. Automatic phase-matched frequency-doubling system for the 240–350-nm region. *Appl. Opt.*, 18:193–196, 1979.

[31] B. A. Richman, S. E. Bisson, R. Trebino, M. G. Mitchell, E. Sidick, and A. Jacobson. Achromatic phase matching for tunable second-harmonic generation by use of a grism. *Opt. Lett.*, 22:1223–1225, 1997.

[32] B. A. Richman, S. E. Bisson, R. Trebino, E. Sidick, and A. Jacobson. Efficient broadband second-harmonic generation by dispersive achromatic nonlinear conversion using only prisms. *Opt. Lett.*, 23:497–499, 1998.

[33] B. A. Richman, S. E. Bisson, R. Trebino, E. Sidick, and A. Jacobson. All-prism achromatic phase matching for tunable second-harmonic generation. *Appl. Opt.*, 38:3316–3323, 1999.

[34] O. E. Martinez. Achromatic phase matching for second harmonic generation of femtosecond pulses. *IEEE J. Quantum Electron.*, 25:2464–2468, 1989.

[35] G. Szabó and Z. Bor. Broadband frequency doubler for femtosecond pulses. *Appl. Phys. B*, 50:51–54, 1990.

[36] T. R. Zhang, H. R. Choo, and C. Downer. Phase and group velocity matching for second harmonic generation of femtosecond pulses. *Appl. Opt.*, 29:3927–3933, 1990.

[37] K. Osvay and I. N. Ross. Broadband sum-frequency generation by chirp-assisted group-velocity matching. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13:1431–1438, 1996.

[38] K. Osvay and I. N. Ross. Efficient tuneable bandwidth frequency mixing using chirped pulses. *Opt. Commun.*, 166:113–119, 1999.

[39] J. A. Fülöp, A. P. Kovács, and Zs. Bor. Dispersion-compensated two-pass arrangement for second harmonic generation of femtosecond pulses. *Laser Physics*, 10:437–440, 2000.

[40] József A. Fülöp, Attila P. Kovács, and Zsolt Bor. Broadband dispersion-compensated two-pass second harmonic generation of femtosecond pulses. *Opt. Commun.*, 188:365–370, 2001.

[41] J. A. Fülöp, A. P. Kovács, and Z. Bor. Two-pass second harmonic generation of ultrashort pulses. *SPIE*, 3573:59, 1998.

[42] Fülöp J. A. Rövid impulzusok kétutas frekvenciakétszerezése. In *XXIV. Országos Tudományos Diákköri Konferencia*, Debrecen, 1999.

[43] R. Szipöcs and A. Kőházi Kis. Theory and design of chirped dielectric laser mirrors. *Appl. Phys. B*, 65:115, 1997.

[44] L. Allen and J. H. Eberly. *Optical Resonance and Two-Level Atoms*. Wiley, New York, 1975.

[45] L. Mandel and E. Wolf. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1995.

[46] S. L. McCall and E. L. Hahn. Self-induced transparency. *Phys. Rev.*, 183:457–485, 1969.

[47] R. E. Slusher and H. M. Gibbs. Self-induced transparency in atomic rubidium. *Phys. Rev. A*, 5:1634–1659, 1972.

[48] J. E. Rothenberg, D. Grischkowsky, and A. C. Balant. Observation of the formation of the 0π pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 53:552–555, 1984.

[49] H. M. Gibbs and R. E. Slusher. Sharp-line self-induced transparency. *Phys. Rev. A*, 6:2326–2334, 1972.

[50] M. Matusovsky, B. Vaynberg, and M. Rosenbluh. 0π pulse propagation in the extreme sharp-line limit. *J. Opt. Soc. Am B*, 13:1994–1998, 1996.

[51] M. Matusovsky, B. Vaynberg, and M. Rosenbluh. High intensity pulse propagation in the extreme sharp-line limit. *Phys. Rev. Lett.*, 77:5198–5201, 1996.

[52] J. Arlt, C. Weiss, G. Torosyan, and R. Beigang. Coherent pulse propagation and the dynamics of rydberg wave packets. *Phys. Rev. Lett.*, 79:4774–4777, 1997.

[53] J. K. Ranka, R. W. Schirmer, and A. L. Gaeta. Coherent spectroscopic effects in the propagation of ultrashort pulses through a two-level system. *Phys. Rev. A*, 57:R36–R39, 1998.

[54] L. W. Casperson. Few-cycle pulses in two-level media. *Phys. Rev. A*, 57:609–621, 1998.

[55] J. N. Sweetser and I. A. Walmsley. Linear pulse propagation in stationary and nonstationary multilevel media in the transient regime. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13:601–612, 1996.

[56] U. Kallmann, S. Brattke, and W. Hartmann. Prpagation of resonant0π pulses in rubidium. *Phys. Rev. A*, 59:814–818, 1999.

[57] D. J. Kane and R. Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-29:571–579, 1993.

[58] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman, and D. J. Kane. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. *Rev. Sci. Instrum.*, 68:3277–3295, 1997.

[59] K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino. Practical issues in ultrashort-laser-pulse measurement using frequency-resolved optical gating. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-32:1253–1264, 1996.

[60] P. Zhou, H. Schulz, and P. Kohns. Atomic spectroscopy with ultrashort laser pulses using frequency-resolved optical gating. *Opt. Commun.*, 123:501–504, 1996.

[61] A. Yabushita, T. Fuji, and T. Kobayashi. SHG FROG and XFROG methods for phase / intensity characterization of pulses propagated through an absorptive optical medium. *Opt. Commun.*, 198:227–232, 2001.

[62] R. Netz, T. Feurer, and J. A. Fülöp. Influence of phase modulation on the reshaping of ultrashort laser pulses in resonant three-level systems. *Phys. Rev. A*, 64:043808, 2001.

[63] R. Netz, T. Feurer, and J. A. Fülöp. Influence of phase modulation on the reshaping of ultrashort laser pulses in resonant three-level systems. In *Annual Report*. Institut für Optik und Quantenelektronik, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2001.

[64] S. Backus, J. Peatross, C. P. Huang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Ti:sapphire amplifier producing milijoule-level, 21-fs pulses at 1 kHz. *Opt. Lett.*, 20:2000–2002, 1995.

[65] S. Backus, C. G. Durfee III, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. High power ultrafast lasers. *Rev. Sci. Instrum.*, 69:1207–1223, 1998.

[66] P. H. Heckmann and E. Träbert. *Introduction to the Spectroscopy of Atoms*, chapter 5. North-Holland, Amsterdam, 1989.

[67] C. E. Theodosiou. Lifetimes of alkali-metal–atom rydberg states. *Phys. Rev. A*, 30:2881–2909, 1984.

[68] W. Demtröder. *Laser Spectroscopy - Basic Concepts and Instrumentation*. Springer Verlag, Berlin, 1996.

[69] N. Schupper, H. Friedmann, M. Matusovsky, M. Rosenbluh, and A. D. Wilson-Gordon. Propagation of high-intensity short resonant pulses in inhomogeneously broadened media. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16:1127–1134, 1999.

[70] S. Zamith, M. A. Bouchene, E. Sokell, C. Nicole, V. Blanchet, and B. Girard. Pump probe experiment in atomic fine structure levels: Observation of the oscillation of an angular wavepacket. *Eur. Phys. J. D*, 12:255–261, 2000.

Köszönetnyilvánítás

Ezúton mondok köszönetet dr. Bor Zsolt akadémikusnak, tanszékvezető egyetemi tanárnak, aki témavezetőként a tudományos problémák felvetésével és a megoldásukhoz nyújtott segítségével az értekezés elkészítését lehetővé tette, és munkámat mindvégig támogatta, valamint a jenai kutatócsoporttal való együttműködést lehetővé tette.

Köszönetemet fejezem ki dr. Thomas Feurernek, aki dolgozatom második részének témavezetője volt, és akitől különösen kísérleti téren nagyon sokat tanultam. Az általa irányított kutatócsoportban végzett munka, az ottani személyes, baráti légkör életreszóló élményt jelentett.

Köszönetemet fejezem ki dr. Kovács Attila tanársegédnek, aki munkámat mindvégig figyelemmel kísérte, és akitől sok hasznos szakmai tanácsot kaptam.

Köszönetet mondok dr. Herbert Walther professzornak, a garchingi Max-Planck-Institut für Quantenoptik igazgatójának, aki a dolgozat megírásához a megfelelő munkakörülményeket biztosította.

Köszönetemet fejezem ki dr. Szabó Gábor egyetemi tanárnak a jenai kutatócsoporttal való együttműködés lehetővé tételeért, valamint dr. Osvay Károly egyetemi docensnek.

Legfőképpen köszönöm feleségemnek és gyerekeimnek a sok bíztatást és türelmet.