

# Úloha č. 9: Nelineární jevy v ultrarychlé optice

Pokročilé praktikum z optiky

1. října 2014

## 1 Úvod

Ultrarychlá optika pracuje s optickými pulsy délky řádově jednotky až stovky femtosekund; díky tomu lze i s malými energiemi v optickém pulsu (typicky např.  $\mu\text{J}$ ) dosáhnout velmi vysokých špičkových intenzit a pozorovat řadu nelineárních jevů, které jsou indukovány elektrickým polem záření. Brzy poté, co byly vyvinuty laserové zdroje s dostatečně krátkými impulsy, našly nelineární jevy v ultrarychlé optice četné uplatnění, např: při generaci vyšších harmonických, v diagnostice délky impulsu, generaci tzv. bílého kontinua, nebo při zesilování širokospektrálních optických pulsů. Právě těmito aplikacemi se budeme zabývat v této úloze.

### 1.1 Původ nelineárních jevů

Uvažujme záření procházející bezztrátovým dielektrikem. Dopadající elektromagnetické pole rozkmitává nabitě částice a kmitající náboj vytváří nové elektromagnetické pole. Tento efekt je kvantitativně popsán pomocí vektorového pole polarizace  $\mathbf{P}$ . Závislost polarizace na vnějším elektrickém poli je možno (za předpokladu hladkosti funkcí) rozvinout do Taylorova polynomu

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

kde  $\bar{\chi}^{(j)}$  je susceptibilita  $j$ -tého řádu a z matematického hlediska se jedná o tenzor  $(j + 1)$ -tého řádu.

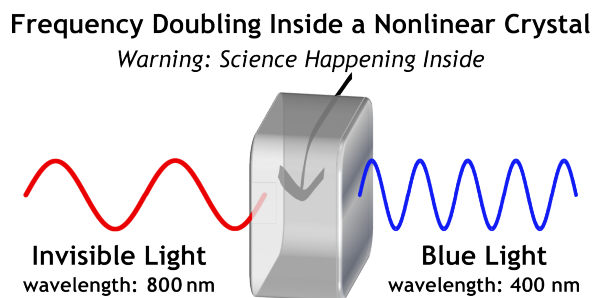
Takto rozepsaná polarizace se projeví ve vlnové rovnici (2) na pravé straně; což má naznačit, že polarizace hraje v této rovnici roli budícího členu. Jedná se o vektorovou rovnici, kterou lze zjednodušit na skalární za předpokladu že dopadající (případně generované) vlny mají nějakou pevně danou polarizaci, která je vlastní polarizací daného materiálu (obvykle se jedná o lineární polarizaci).

$$\nabla^2\mathbf{E} - \epsilon_0\mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathbf{E} = \mu_0\mathbf{P}, \quad (2)$$

V následujících odstavcích analyzujeme základní efekty spojené s nelinearitou druhého a třetího řádu.

### 1.2 Generace druhé harmonické

Generace druhé harmonické je konverze čerpacího záření na záření s poloviční vlnovou délkou a dvojnásobnou frekvencí; jde o jeden z nejjednodušších a nejčastěji využívaných nelineárních procesů, který souvisí se susceptibilitou druhého řádu  $\bar{\chi}^{(2)}$ . Nejobvyklejší – kolineární uspořádání zpravidla odpovídá obrázku 3. Pro optický puls s obdélníkovým profilem v prostoru i v čase lze dosáhnout účinnosti přes 90%, pro gaussovský svazek je však obvyklejší účinnost okolo 50 %.



Obrázek 1: Ilustrace generace druhé harmonické.

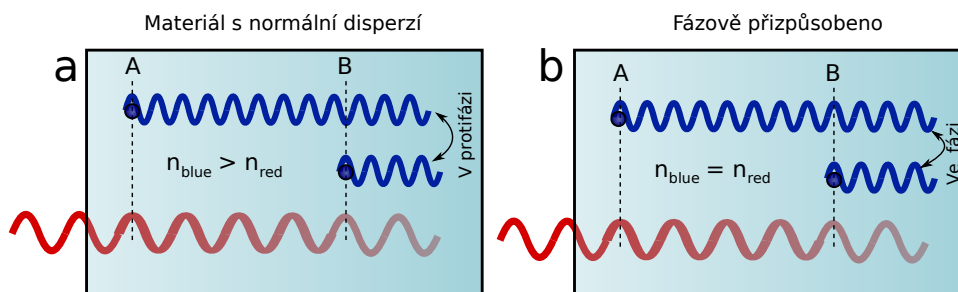
Vysvětlíme nyní princip vzniku druhé harmonické. Nechť lineárně polarizované harmonické záření popsané (pro jednoduchost skalární) hodnotou elektrického pole dopadá na materiál vykazující nelinearitu druhého řádu  $\chi^{(2)}$  (pro jednoduchost uvažujeme prostorovou souřadnici rovnou nule). Potom

$$E = \frac{1}{2} (E_0 e^{i\omega t} + E_0 e^{-i\omega t}) \quad (3)$$

Toto pole vybudí skrze susceptibilitu druhého řádu nové optické vlny polarizaci popsanou rovnicí (4), která obsahuje dvě nové frekvence:

$$P = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 = \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{1}{4} \left( \underbrace{E_0^2 e^{i2\omega t} + E_0^2 e^{-i2\omega t}}_{\text{SHG}} + \underbrace{2E_0^2}_{\text{OR}} \right) \quad (4)$$

1. **Druhá harmonická** – zkráceně SHG (z anglického *second harmonic generation*), je vlna s dvojnásobnou frekvencí oproti dopadající vlně
2. **Optická rektifikace** – zkráceně OR, je stejnosměrné napětí (vlna s nulovou frekvencí) generované jako konstantní dipólový moment v materiálu. Tento jev lze využít pro generaci tera-hertzového záření; v této úloze jej však nebudeme uvažovat.

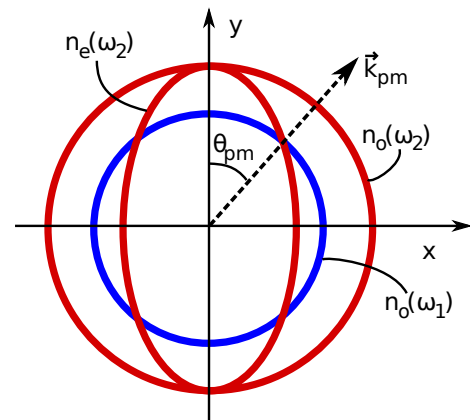


Obrázek 2: Vliv disperze na splnění podmínky fázového synchronismu. Vlevo není kvůli disperzi podmínka synchronismu splněna, druhá harmonická generovaná v různých místech materiálu se navzájem vyruší. Vpravo je podmínka synchronismu splněna a tak druhá harmonická v celém objemu konstruktivně nasčítá.

Výše uvedené úvahy popsané rovnicí (4) platí pouze lokálně, v každém bodě dielektrika zvlášť. Celková účinnost konverze do druhé harmonické závisí na soufázovosti dílčích příspěvků druhé harmonické v celém objemu materiálu. Na obrázku 2 je naznačeno, jak tatáž dopadající vlna (říkejme jí základní harmonická) generuje druhou harmonickou ve dvou různých místech A a B. Přitom se může stát (viz 2a), že vlivem disperze v materiálu je fáze druhé harmonické, vygenerované v bodě A odlišná od fáze druhé harmonické vygenerované v bodě B. Za toto fázové rozladění je zodpovědný rozdílný index lomu základní a druhé harmonické, tj. disperze materiálu. Pokud by existoval materiál, který má stejný index lomu pro základní i druhou harmonickou, všechny dílčí příspěvky druhé harmonické z celého objemu materiálu by se konstruktivně sečetly. Tato podmínka pro účinnou generaci SHG je velmi důležitá a proto má vlastní název - **podmínka fázového synchronismu**; lze ji zapsat jako  $n_\omega = n_{2\omega}$ , nebo ještě obecněji pomocí vlnových vektorů (rovnice (5)). Spolu se zákonem zachování energie (6) tvoří vektorová rovnice (5) čtyři základní podmínky pro generaci druhé harmonické.

$$2\vec{k}_1 = \vec{k}_2 \quad (5)$$

$$2\omega_1 = \omega_2, \quad (6)$$



Obrázek 3: Diagram závislosti indexu lomu v závislosti na úhlu vlnového vektoru záření (v polárních souřadnicích). Diagram odpovídá tzv. negativnímu dvojlomnému prostředí, kdy při dané vlnové délce je  $n_o \geq n_e$ . Úhel  $\theta_{pm}$ , při kterém platí  $n_o(\omega_1) = n_e(\omega_2)$  je hledaný úhel splňující podmínku fázového synchronismu.

kde  $\omega_1$  a  $\vec{k}_1$  je frekvence a vlnový vektor příslušející základní harmonické,  $\omega_2$  a  $\vec{k}_2$  přísluší druhé harmonické.

Podmínky synchronismu je možné splnit ve vhodně orientovaném dvojlomném materiálu, pokud se podaří chromatická disperze vykompenzovat právě rozdílným indexem lomu extra-ordinární vlny. V této úloze budeme využívat krystalu BBO ( $\beta$ -barium borát), jsou indexy lomu uvedeny v následující tabulce:

800 nm		400 nm	
$n_o$	$n_e$	$n_o$	$n_e$
1.66137	1.54618	1.69337	1.56874

Průběh extra-ordinárního indexu lomu pro záření šířící se pod úhlem  $\theta$  vůči optické ose v jednoosém krystalu je dán implicitně vztahem (7)

$$\frac{1}{n_e(\theta)^2} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (7)$$

Odtud lze také vypočítat optimální orientaci krystalu vůči dopadajícímu záření tak, aby docházelo k účinné konverzi do druhé harmonické.

### 1.3 Parametrické zesílení

Stejně, jako generace druhé harmonické, je parametrické zesílení nelineární jev druhého řádu, spojený se susceptibilitou  $\chi^{(2)}$ . Při tomto procesu však vzájemně interagují tři různé vlnové délky. Během procesu předává intenzivní čerpací vlna s vyšší frekvencí  $\omega_3$  energii signálové vlně s nižší frekvencí  $\omega_1$ ; rozdílová energie je transformována do třetí vlny s rozdílovou frekvencí  $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ . Parametrické zesilovače hrají významnou roli v laserové technice při generaci velmi intenzivních femtosekundových pulsů; parametrické generátory a zesilovače jsou rovněž žádané zdroje záření s přeladitelnou vlnovou délkou.

A který člen nelineární polarizace je zodpovědný za parametrické zesílení? Odpověď na tuto otázku necháme studentům na rozmyšlenou; napovíme, že postup je velmi podobný jako ve vztazích (3) a (4), avšak jako vstupní pole bereme superpozici tří harmonických vln s frekvencemi splňující  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ .

Podobně, jako při generaci druhé harmonické, účinné parametrické zesílení je podmíněno splněním podmínek zákona zachování energie a fázového synchronismu. Pro třívlonové směšování mají tyto podmínky tvar

$$\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \quad (8)$$

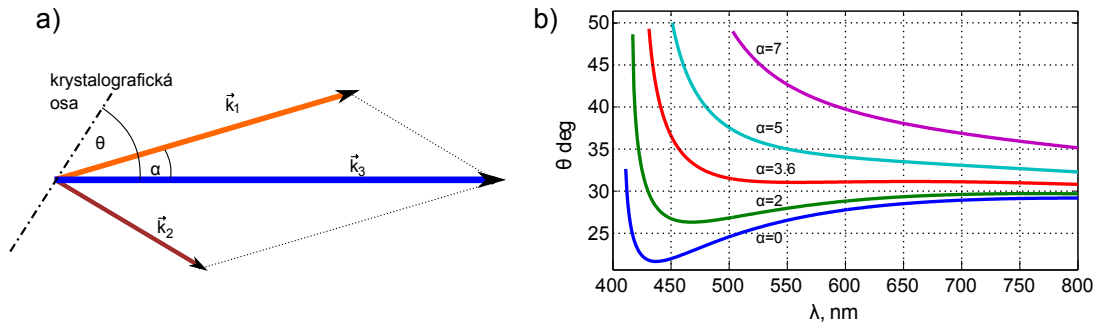
$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad (9)$$

Jednotlivé interagující vlny 1-3 se nazývají po řadě signální, jalová a čerpací.

Není přitom nezbytně nutné, aby se všechny tři interagující vlny šířily stejným směrem; podmínky fázového synchronismu lze dobře splnit i pro nekolineární uspořádání, přičemž rovnice (8) musí být splněna vektorově, jak je vidět na diagramu 4a. Tuto podmínku je možné splnit opět s využitím vhodně orientovaného dvojlomného krystalu. V této úloze použijeme krystal BBO v konfiguraci  $o + o \rightarrow e$ , což je zkrácený zápis faktu, že součet frekvencí ordinárně polarizovaného signálu a ordinárního jalového svazku dá frekvenci extraordinárně polarizovaného čerpání. Míra potřebného pootočení krystalu  $\theta$  závisí na vlnové délce signálu a na úhlu  $\alpha$  mezi čerpáním a signálem. Tato závislost (kterou lze získat vyřešením rovnic fázového synchronismu (8)) je na obrázku 4b, kde je vidět, že nekolineární uspořádání s úhlem  $\alpha = 3.6$  podporuje zesílení ve velmi široké spektrální oblasti.

### 1.4 Generace superkontinua

Generace superkontinua je silně nelineární jev, při kterém dochází ke spojitému rozšíření spektrální „čáry“ záření na kontinuum s šířkou pásma až několik stovek nanometrů; je možné jej komprimovat na jednotky femtosekund a je často používaný jako sondovací (probe) svazek v pump-probe spektroskopii. Vygenerovat jej je možné zafoksováním femtosekundového svazku do téměř libovolného balkového dielektrika, či do fotonických/vlnovodných struktur.



Obrázek 4: a) Grafické znázornění splnění podmínek fázového synchronismu pomocí dvojlomného krystalu natočeného pod úhlem  $\theta$ . b) Řešení podmínek fázového synchronismu parametrického zesílení v krystalu BBO v závislosti na vlnové délce signálu a nekolineárním úhlu  $\alpha$ . Pro  $\alpha = 3,6$  je optimální úhel  $\theta$  téměř konstantní v oblasti 500 až 700 nm. V této konfiguraci lze dosáhnout zesílení v široké spektrální oblasti.

Z hlediska nelineární optiky je tento jev postaven především na nelinearitě třetího řádu (spojené se susceptibilitou  $\chi^{(3)}$ ), avšak mohou se projevovat i další efekty. Nelineární polarizace spojená se susceptibilitou třetího řádu má v případě jedné dopadající vlny ( $E = \frac{1}{2} (E_0 e^{i\omega t} + E_0 e^{-i\omega t})$ ) tvar (10).

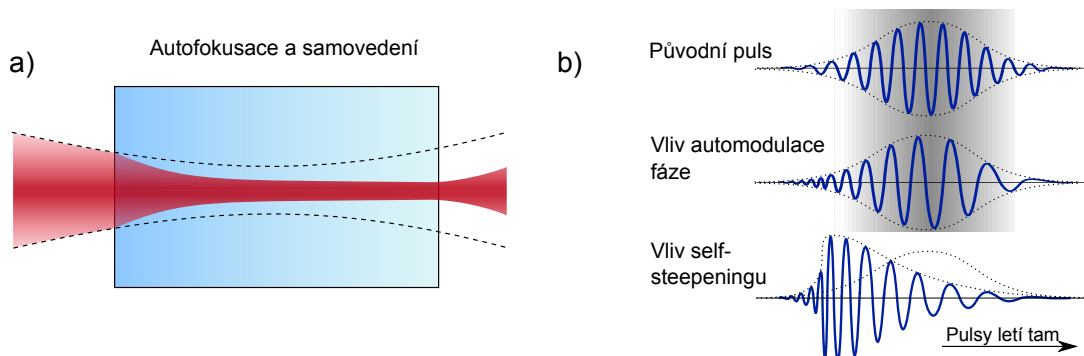
$$P = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^3 = \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{1}{8} \left( \underbrace{E_0^3 e^{i3\omega t} + E_0^3 e^{-i3\omega t}}_{\text{THG}} + 3 \underbrace{|E_0|^2 (E_0 e^{+i\omega t} + E_0 e^{-i\omega t})}_{\text{Kerrův jev}} \right) \quad (10)$$

Výsledkem interakce jsou dva nové jevy:

1. **Generace třetí harmonické**, jejíž účinnost je podmíněna splněním podmínky fázové synchronizace. Tento jev však v nehraje nyní klíčovou roli, nebudeme se jím dále proto zabývat.
2. **Kerrův jev** Jde o generaci stejné vlnové délky, jako budící vlna. Tento příspěvek má podobný tvar jako lineární polarizace ( $P_{Lin} = \epsilon_0 \chi^{(1)} E$ ). Projeví se tedy jako nelineární změna indexu lomu materiálu, která je přímo úměrná  $|E|^2$ , tj. intenzitě. Ponechme na rozmyšlenou jednoduchou otázku, jak je to se splněním podmínky fázového synchronismu tohoto jevu?

Kerrův jev přispívá k rozšíření spektra pulsu více způsoby; graficky jsou znázorněny na obrázku 5:

1. **Autofokusace** je důsledkem prostorového rozložení elektrického pole v gaussovském svazku. Uprostřed svazku je vyšší intenzita díky  $\chi^{(3)}$  nelinearitě i vyšší index lomu. To má za následek vznik gradientní čočky, která je nelineárně indukovaná samotným svazkem, čímž dochází k autofokusaci svazku. Nárůst intenzity na ose svazku dále zesiluje nelineární jevy, včetně samotné autofokusace, což může vést až ke kolapsu profilu svazku do velmi malé plochy a k poškození materiálu. Proti autofokusaci působí difrakce a nedestruktivní ionizace, která při velkých intenzitách přispívá ke snížení indexu lomu na ose svazku. Pokud nastane rovnováha mezi autofokusací na jedné straně a difrakcí a ionizací na straně druhé, může dojít k *samovedení*, kdy se puls šíří materiálem s velmi malým příčným průměrem na vzdálenost několik mm (viz obrázek 5a).
2. **Automodulace fáze** je důsledkem časově proměnné amplitudy elektrického pole v ultrakrátkém pulsu. Proces je znázorněn na obrázku 5b; nejintenzivnější část pulsu vidí vyšší index lomu než oblasti s nízkou intenzitou, dochází tedy k fázovému zpoždění optických vln ze středu pulsu směrem zadnímu kraji, čímž dojde k rozšíření spektra.
3. **Self-steepening** úzce souvisí z automodulací fáze; spolu se změnou fázové rychlosti totiž dochází i ke změně grupové rychlosti intenzivní části pulsu. To má za následek deformaci obálky impulsu – pík pulsu se zpozdí a výrazně vzroste sklon sestupné hrany. V praxi to znamená, že se poruší symetrie v rozšiřování spektra – preferovány jsou kratší vlnové délky.



Obrázek 5: a) Autofokusace umožňuje samovedení svazku v úzkém filamentu a zvýšení vlivu nelinearit b) Rozšíření spektra vlivem automodulace fáze a narušení symetrie kvůli self-steepeningu. Tmavší barva reprezentuje oblast s vyšším indexem lomu.

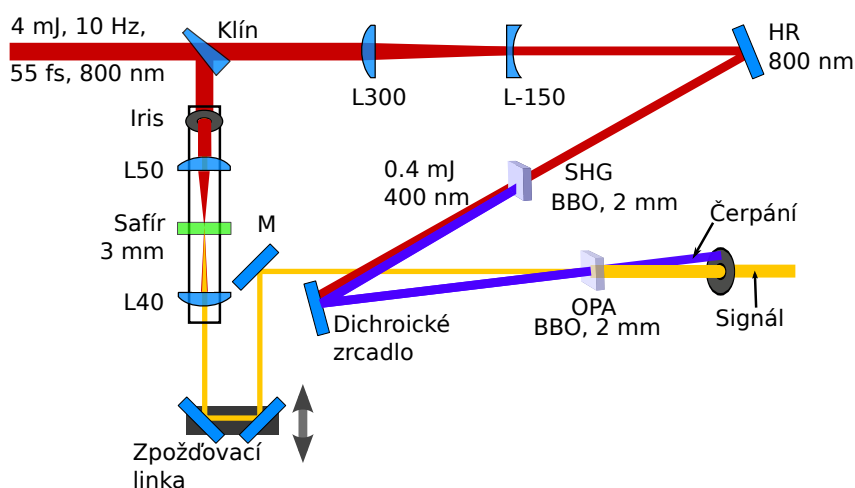
## 2 Experimentální uspořádání

Zdrojem záření pro tuto úlohu je výkonný femtosekundový laserový systém Pulsar, jehož obvyklé výstupní parametry jsou shrnuty v tabulce 1.

Energie v pulsu	5.5 mJ	Délka pulsu	55 fs
Střední vln. délka	805 nm	Šířka spektra	40 nm
Opakovací frekvence	10 Hz	Průměr svazku	~ 8 mm

Tabulka 1: Tabulka parametrů femtosekundového Ti:safírového systému.

Popíšeme nyní samotný experiment, jehož schéma je uvedeno na obrázku 6. Pomocí klínu je malá část energie poslána skrz irisovou aperturu a čočku do krystalu safíru, kde je vygenerováno superkontinuum; následnou čočkou je pak divergentní široko-spektrální svazek zkolimován a nasměrován do krystalu  $BBO_{opa}$ , kde je parametricky zesílen. Zbývající, energetičtější část pulsu projde skrze teleskop se zvětšením 1/2 (svazek se tedy zmenší) a je nasměrován do krystalu  $BBO_{shg}$ , kde se část pulsu konvertuje do druhé harmonické (400 nm). Zatímco zbylá část energie pulsu na základní harmonické je oddělena pomocí dichroického zrcadla, druhá harmonická je nasměrována na druhý krystal  $BBO_{opa}$ , kde slouží jako čerpání pro parametrické zesílení.



Obrázek 6: Schéma experimentu

Celý systém má poměrně velké množství stupňů volnosti. Uvedeme výčet prvků, které lze během

experimentu nastavovat.

- **Apertura za děličem svazku** – reguluje intenzitu záření při generaci superkontinua (jednak velikostí svazku a jednak difrakčně)
- **Pozice safíru na ose z** – ovlivňuje stabilitu generovaného superkontinua.
- **Pootočení safíru okolo osy z** – krystalický safír je dvojlomný; je třeba jej nastavit tak, aby nedocházelo k depolarizaci.
- **Poloha čočky  $f=40$  mm** kolimující superkontinuum. Nastavíme tak, aby superkontinuum bylo mírně konvergentní.
- **Zpoždění** slouží k přesnému nastavení délek obou ramen.
- **Orientace  $BBO_{shg}$**  určuje účinnost generace druhé harmonické (splnění fázového synchronismu).
- **Nekolineární úhel  $\alpha$**  mezi čerpáním a signálem určuje maximální šířku pásma, ve které lze zesilovat. Optimum je pro  $\alpha = 3,6^\circ$  uvnitř krystalu.
- **Teleskop v čerpacím svazku** – na ten se raději nesahá, je to nebezpečné.
- **Pootočení krystalu  $BBO_{opa}$  okolo svislé osy** – zajišťuje splnění podmínek synchronismu OPA.
- **Otočení krystalu  $BBO_{opa}$  o  $180^\circ$**  okolo horizontální osy – změna z walk-off kompenzujícího uspořádání do walk-off nekompenzujícího a naopak. Ovlivňuje účinnost OPA a mění podmínku synchronismu pro parazitní jevy (SHG jalového svazku a signálu).

### 3 Zadání úlohy

Před zahájením práce v laboratoři je třeba se seznámit s **bezpečnostními pokyny**: Laserový systém, se kterým budete pracovat, je systémem IV třídy. Při práci je povinnost studenta **nosit ochranné brýle**. Přitom je třeba mít na paměti, že rozsah vlnových délek, se kterými budete pracovat, pokrývá spojitě téměř celý rozsah viditelného spektra; dokonalé brýle pro tento experiment tedy neexistují. Proto je třeba dbát zvýšené opatrnosti i při práci s brýlemi.

#### 3.1 Naladění systému

1. Navedte svazek ze systému Pulsar do experimentální sestavy. Polarizace lineární, vertikální.
2. Vygenerujte jednovláknové superkontinuum; jeho depolarizaci potlačte vhodnou orientací safíru.
3. Vygenerujte čerpací svazek na druhé harmonické Ti:safíru.
4. Překryjte čerpací a signálový svazek v krystalu  $BBO_{opa}$
5. Optimalizujte všechny potřebné parametry pro účinné parametrické zesílení při jednom průchodu krystalem  $BBO_{opa}$  v co nejširší šířce pásma.

#### 3.2 Pozorování parametrického zesílení

1. Změřte energie vstupu, druhé harmonické, superkontinua a zesíleného signálu.
2. Změřte úhly  $\alpha$  a  $\theta$ .
3. Změřte spektrum superkontinua a zesíleného signálu.
4. Pozorujte parametrickou superfluorescenci. Jak se mění při otáčení krystalu v obou směrech? Jak se mění v přítomnosti/nepřítomnosti seedu?
5. Pokuste se prokázat přítomnost jalového svazku. Jaký je rozsah vlnových délek a úhel šíření idleru?

### 3.3 Časová charakteristika ultrakrátkých pulsů, měření disperze vyšších řádů

1. Změřte sérii spekter zesíleného signálu posouvaje postupně zpoždění mikrometrickým šroubem. Alespoň 10 spekter.
2. Vložte do svazku superkontinua tlustý optický materiál a opakujte měření z předchozího bodu.
3. Na základě naměřených dat z předchozích dvou bodů co nejpřesněji určete délku pulsu superkontinua pro oba dva případy.
4. Z naměřených dat vypočítejte disperzi prvního až třetího řádu (GD, GDD a TOD) superkontinua před a po průchodu tlustým materiálem.
5. Experimentálně získané disperzní charakteristiky materiálu porovnejte s teoretickou předpovědí disperze (ze znalosti Sellmeierových rovnic).