

LINEÁRIS OPTIKAI MÓDSZER VIVŐ-BURKOLÓ FÁZIS CSÚSZÁSÁNAK MÉRÉSÉRE

Jó járt Péter¹, Börzsönyi Ádám¹, Osvay Károly^{1,2}

¹Szegedi Tudományegyetem, Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék
²ELI-HU Nonprofit Kft.

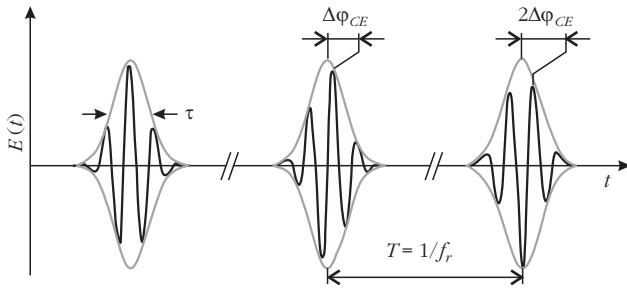
Lézerimpulzusok a fizikai korlátok határán

A látható és közeli infravörös tartományban manapság előállítható legrövidebb idejű lézerimpulzusok hossza nagyjából elérte az ismert fizikai korlátokat, azaz egy fényhullám valamivel több, mint egy optikai periódusnyi időtartamát. A legrövidebb elektromágneses jelek, jelesül a fényimpulzusok előállítására irányuló erőfeszítés nem pusztán önmagáért való alapkutatási téma, hanem mára számos tudományterületen kivételes kutatóeszközt eredményezett. Ilyen például a biológiában, or-

vostudományban alkalmazott multifoton-abszorpciós mikroszkóp, amely három dimenziós képet ad, és sokkal részletgazdagabb, mint a közönséges mikroszkóp. Az úgynevezett pumpa-próba elrendezésű kísérletekben a femtoszekundumos (10^{-15} s) impulzusokat nagyon gyors vakuként használva olyan időbeli felbontást tesznek lehetővé, hogy a molekulaszervezeti változások is „lefotózhatók”. A kémiai reakciók átmeneti állapotainak femtoszekundum időfelbontású spektroszkópiai vizsgálati módszerét *Abmed Zewail* dolgozta ki, ezzel megteremtett egy új tudományterületet, a femtokémiát. A munkásságáért 1999-ben kémiai Nobel-díjat kapott. Ultrarövid fényimpulzusokkal nem csak a molekulák vizsgálatára van lehetőség, hanem a kémiai reakciók irányítására (például egy bizonyos kötés szelektív gerjesztése, izomer molekulákból csak az egyik változat előállítása) is. Ezt koherens kontrollnak nevezzük.

A 2013. évi Magyar Fizikus Vándorgyűlésen elhangzott előadás írott változata.

A projekt a TÁMOP-4.2.2.A-11/1/KONV-2012-0060 „Impulzuslézerek alkalmazása az anyagtudományban és a biofotonikában” projekt támogatásával valósult meg.



1. ábra. A vivő-burkoló fázis csúszásának szemléltetése.

A femtoszekundumnál is rövidebb, attoszekundumos (10^{-18} s) impulzussorozatokat, illetve egyes impulzusokat is létrehozhatunk, ha a nagy intenzitású ultrarövid lézerpulzus atomok vagy molekulák elektronjaival lép kölcsönhatásba. Ilyenkor a lézerpulzus nagy intenzitása által biztosított többfotonos abszorpció leszakítja az elektront az atomtörzsről, majd az időközben megváltozó előjelű elektromos tér felgyorsítja azt és visszacsapja az atomtörzsbe. A rekombináció során rövid impulzussorozatokból álló ultraibolya és röntgensugárzás keletkezik [1]. Attoszekundumos impulzusok segítségével atomokban, molekulákban, vagy akár különálló elektronsomagokon végezhetőek elektronspektroszkópiai mérések, vagy ultragyors időbontott vizsgálatok, amelyek hozzájárulnak a részecskefizika, kvantummechanika fejlődéséhez is. Mindezekhez a kísérletekhez elengedhetetlen, hogy a felhasznált lézerek által kibocsátott impulzusok paraméterei – például spektrum, időbeli alak és sok esetben a vivő-burkoló fázis, angol terminológiával a carrier envelope (CE) fázis (vagy annak impulzusról impulzusra való változása, azaz csúszása) – állandó értéken maradjanak.

A fényimpulzusok terjedésekor – definíció szerint – a vivőhullám a fázissebességgel, az intenzitásburkoló viszont a csoportsebességgel terjed. Diszperzióval rendelkező közegben való terjedésnél ez a két sebesség nem egyezik meg, emiatt a vivőhullám csúcseinak helye a burkolóhoz képest változik (1. ábra). Ez a helyváltozás alapvetően fázisváltozásként jellemezhető.

A frekvenciafésű – a CE fázis csúszásának mérése

A vivő-burkoló fázis jelentősége azonban az időbontott, atto- és femtoszekundumos mérések jelentőségén túlmutat. Egy állandó (vagy legalább állandó ütemben változó) vivő-burkoló fázisú impulzussorozat ugyanis olyan tulajdonságokkal rendelkezik, amelyek alkalmassá teszik precíziós spektroszkópiai mérésekre is.

Nagy felbontású spektroszkópiai alkalmazásoknál korábban a minél keskenyebb sáv szélességű, folytonos, nagy pontossággal ismert hullámhosszú fényforrás megalkotása volt a cél. Ennek érdekében mikrohullámú referencijelhez, illetve egymáshoz szinkronizáltak különböző, infravörös fényforrásokat (például: vízgőz $78 \mu\text{m}$ és $28 \mu\text{m}$, szén-dioxid $9\text{--}10 \mu\text{m}$ -es

spektrumvonalai), bonyolult konverziós láncot alkotva. A spektroszkópiában azonban forradalmi változásokot hozott az úgynevezett „frekvenciafésű” koncepciója [2]. Az ebből a gondolatból kifejlődött optikai frekvenciametrológia jelentőségét jól szemlélteti, hogy az ezzel a módszerrel végzett frekvenciamérések relatív pontossága már összemérhető az atomórás mérésekkel¹.

A frekvenciafésű ötlete azon a megfigyelésen alapul, hogy egy ultrarövid impulzusokat előállító lézeroszcillátor tulajdonképpen egy Fabry–Perot-rezonátorként működik, következésképpen a lézer folytonosnak tűnő spektruma valójában vonalas szerkezettel rendelkezik. A spektrumvonalak (az oszcillátor módusai) egy nagyon sűrű „fésűt” alkotnak, ahol a Fourier-analízis értelmében a fésűfogak távolsága az ismétlési frekvencia, a fésű abszolút helyzete pedig az impulzusról impulzusra történő fáziscsúszással van szoros kapcsolatban. Ez matematikailag alakban az

$$f = f_{CEO} + n f_{rep} \quad (1)$$

összefüggéssel írható fel, ahol f_{CEO} a vivő-burkoló offszetfázis, f_{rep} az ismétlési frekvencia, n pedig egy természetes szám. A vivő-burkoló fázis csúszása, valamint az f_{CEO} és f_{rep} között a

$$\Delta\varphi_{CE} = 2\pi \frac{f_{CEO}}{f_{rep}} \quad (2)$$

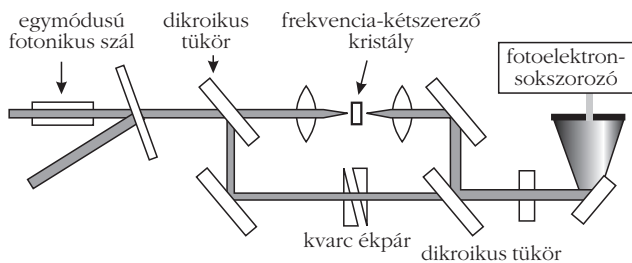
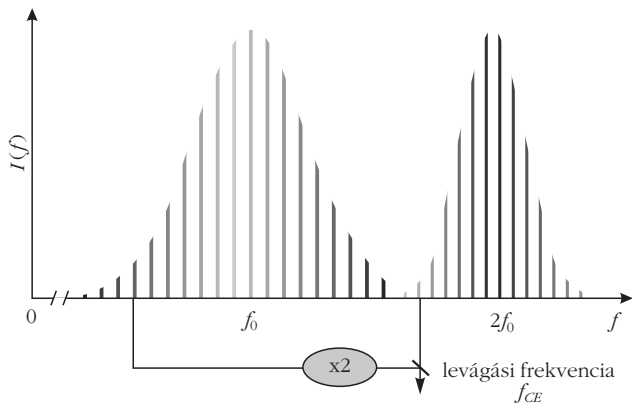
kifejezés teremt kapcsolatot. *Ha tebát megmérjük az ismétlési frekvenciát és a fáziscsúszást, pontosan ismerjük az optikai frekvenciákat is.*

A CE fáziscsúszás mérésének kihívásai

A CE fáziscsúszás mérésére tehát kézenfekvőnek tűnik a frekvenciafésű szabályos, vonalas jellegét kiaknázni; ezen alapul az úgynevezett f-2f interferometria is (2. ábra). A mára általánossá vált, f-2f fáziscsúszás-mérési módszert eredetileg 800 nm központi hullámhosszúságú lézerpulzusokra dolgozták ki². A módszer alapelve, hogy ha egy oktáv szélességű spektrumot másodharmonikus-keltés segítségével frekvenciakétszerezünk, akkor az optikai frekvenciák összelebegnek. Ezt egy gyors fotodetektorral vizsgálva megjelenik az f_{CEO} vivő-burkoló offszetfrekvencia, amelyből a vivő-burkoló fázis csúszása a (2) képlettel számítható.

¹ A „pontosság iránti szenvedélyért” Theodor W. Hänsch, Roy J. Glauber és John L. Hall 2005-ben Nobel-díjat kapott.

² Ennek oka, hogy a manapság is a legrövidebb impulzushosszat előállító, titán-zafír kristályon alapuló lézeroszcillátor ebben a tartományon működik. E kristály emissziós sáv szélessége rendkívül széles, jó konstrukció és beállítások esetén a spektrum félérték szélessége meghaladja a 300 nm -t, talptól talpig pedig akár az $400\text{--}1000 \text{ nm}$ -es tartományt is lefedi. Ez azt jelenti, hogy rövidebb, mint 4 femtoszekundum impulzushossz is elérhető. Ez (a tipikusnak számító) 200 mW -os átlagteljesítmény és 80 MHz -es ismétlési frekvencia esetén körülbelül 700 kilowatt csúcsteljesítményt jelent, amely fókuszálva nagyon könnyen működtet nemlineáris optikai folyamatokat.



2. ábra. Az f - $2f$ interferencián alapuló mérés alapelve [2, 3].

A technikai kihívás egyrészt az oktáv sávszélesség elérése: a lézerfényt egy fotonikus (speciális szerkezetű, vékony, hosszanti, levegővel vagy gázzal töltött üreget tartalmazó) optikai szálba vezetnek, amelyben a négyhullámkeverésnek és az önfázismodulációnak köszönhetően a spektrum legalább egy oktávnnyira szélesedik ki.

A méréshez szükséges intenzitás csökkenthető, ha az interferométerhez közönséges nyalábsztók helyett egy-egy dikroikus tükröt használnak. A fény infravörös (hosszabb hullámhosszú) felének frekvenciáját egy másodharmonikus-keltés segítségével kétszerezik. Az eredeti impulzus rövidebb hullámhosszú, zöldes fénye átfed a kétszerezett impulzus vörös tartomány felé eső, egyébként szintén zöld részével, és a mérés itt történik.

Sajnos sem ez a fentebb ismertetett, mára kereskedelemben is kapható mérőeszközben testet öltő módszer, sem további variánsai – a mérés elvéből fakadó korlá-

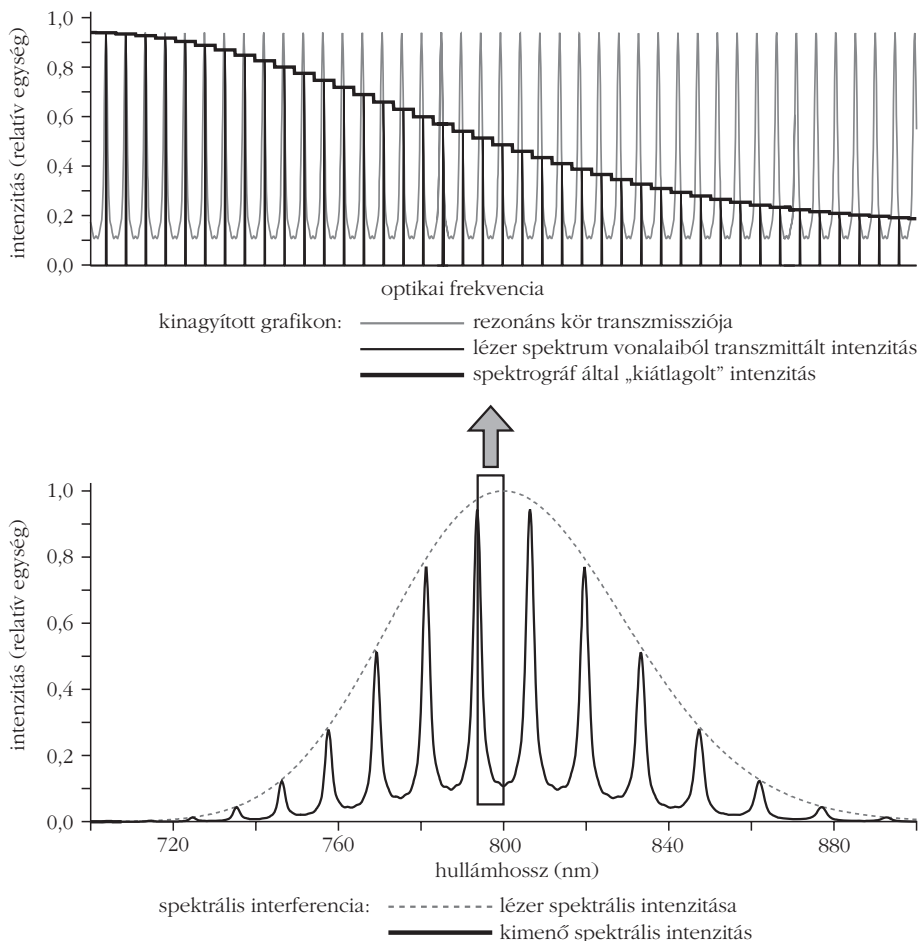
tokból adódóan – nem alkalmazható számos lézertípusra, mint például látható-UV fényforrásokra, közép-távolsági infravörös lézerekre, vagy éppen 50 fs-nál hosszabb lézerimpulzusokra. Ezen spektrális tartományokon nem ismert ugyanis olyan frekvenciakonverziós eljárás, amely oktáv sávszélességgel bírna. A hosszabb impulzusok esetén továbbá még a látható és a közeli infravörös tartományon belül sem tudunk oktávnyi sávszélességű fénysugárzást kelteni.

Az SzTE Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék Tawati Laboratóriumában a spektrálisan bontott interferometria hagyományából kiindulva olyan új mérési eljárás megalkotását tűztük ki célul, amely független a mérendő lézerimpulzusok spektrális sávszélességtől, csak lineáris optikai folyamatot alkalmaz, és elvileg bármilyen hullámhossztartományon működtethető.

A vivő-burkoló fáziscsúszás mérésének elve lineáris interferometriával

Egy Fabry–Perot-interferométer jól használható lézertükrök diszperziós együtthatóinak, azaz spektrális fázistolásának mérésére. Ekkor az egyetlen bejövő impulzusból több, különböző fázistolást elszenvedett

3. ábra. A mérés működési elvének szemléltetése: a két sűrű spektrális fésű szorzataként egy ritkább fésű adódik (fent), amely egy kis felbontóképességű spektrográffal mérve a lent látható eredményt adja.



impulzus keletkezik, amelyek szuperpozícióját a kinemeneten egy spektrográffal vizsgáljuk.

Tekintsünk egy lézerpulzus-sorozatát, amelynek a vivő-burkoló fázisa időben változik. Ha sikerülne az egymás utáni impulzusokat időben egymással átfedésbe hozni, akkor az előbbihez hasonló mérési elvet alkalmazva az impulzusról impulzusra történő fázis-változás megmérhetővé válik. Ehhez mindössze egy óriási Fabry–Perot-interferométert (FPI) kell építeni, amelynek körüljárási ideje közel megegyezik a lézerpulzusok időbeli távolságával.

Ekkor az óriási FPI szabad spektrális tartománya közel megegyezik a lézercsillátor módusainak távolságával. A lézertényt az FPI-n keresztül irányítva a spektrális intenzitás a lézer spektrális intenzitásának és az FPI spektrális transzmissziójának szorzataként adódik. Mivel mind az FPI transzmissziója, mind a lézertény vonalas spektrumú, a kísérletet tekinthetjük úgy is, hogy a lézer vonalas spektrumát *mintavételezzük* egy majdnem ugyanolyan periódusú spektrális transzmisszióval, vagyis létrejön az *aliasing* jelensége.

Az „aliasing-zajként” kapott spektrális interferencia már könnyen vizsgálható spektrográffal, és – amennyiben az FPI hossza stabilizált – a csíkrendszer pontosan annyi periódussal mozdul el, mint amennyi periódussal a lézer módusai elmozdulnak.

A működési elvet a 3. ábra szemlélteti. Az *ábrán* a kinagyított felső rész azt mutatja, hogy miként lesz két nagyon sűrű spektrális „fésű” szorzatából egy olyan – sokkal ritkább – spektrális interferogram, amelyet már egy véges felbontású spektrográf mérni tud. Az FPI transzmisszióját a vékony szürke görbe jelöli. A lézer egyes módusaiiból transzmittált fényt a függőleges vékony fekete vonalak mutatják. Mivel ezt véges, korlátozott felbontású spektrográffal vizsgáljuk, amely térben kiátlagolja az eredményt, a (3. ábra mindkét részén) vastag fekete vonallal jelölt, „simított” görbét fogja csak észlelni. Minél kevésbé tér el az FPI és a lézercsillátor optikai úthossza, annál ritkább csíkrendszert kapunk. A tipikus eltérés a kísérletekben 50–100 μm közötti, amely a 3. *ábrán* alul látható interferogramhoz hasonló eredményt ad. (A kinagyított ábrához – kizárólag a szemléltetés céljából – 20 000 μm hosszkülönbséget használtunk a szimulációban, így a „lebegés” jelensége jól látható.)

A kísérleti elrendezésben (4. ábra) nem Fabry–Perot-interferométert használtunk, mert annak belépő tükrre esetleg visszaverné a fényimpulzusokat a lézercsillátorba, megzavarva annak működését. Az alkalmazott rezonáns kör matematikailag egyenértékű a Fabry–Perot-interferométerrel, azonban nem veri vissza az impulzusokat.

A kísérleti elrendezés legfontosabb része a fent említett rezonáns kör, amelynek hosz-

szát a mérés közben stabilizálni szükséges. Több, passzív stabilizálási technika kipróbálását követően végül az úthossz stabilizálását aktív módon oldjuk meg: egy frekvenciastabilizált HeNe lézer nyalábját irányítottuk – a mérendő fényvel kollinearisan, de ellentétes irányban – a rezonáns körbe. A létrejött interferogramot egy CCD-kamerával figyeltük, a rezonátor hosszának stabilizálását pedig egy 25 μm elmozdulásra képes piezo eltoló segítségével biztosítottuk. Így a berendezés a labor hőmérsékletének ± 1 °C tartományon belüli értéken tartása mellett stabilan működik.

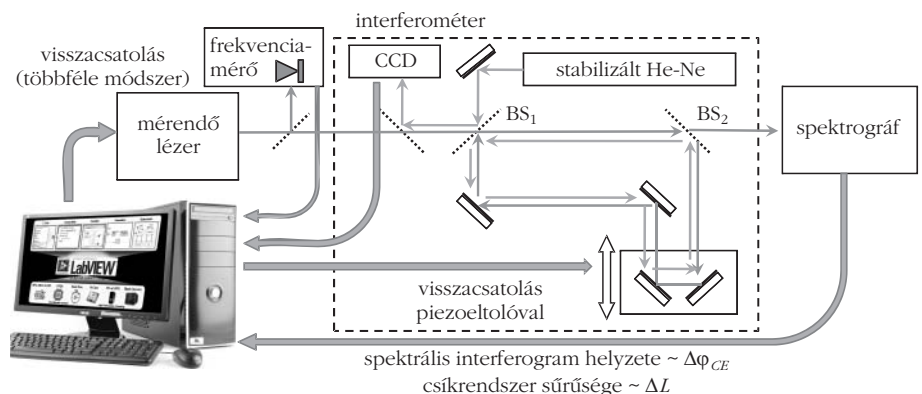
Nincs ingyen ebéd – a megvalósítás nehézségei

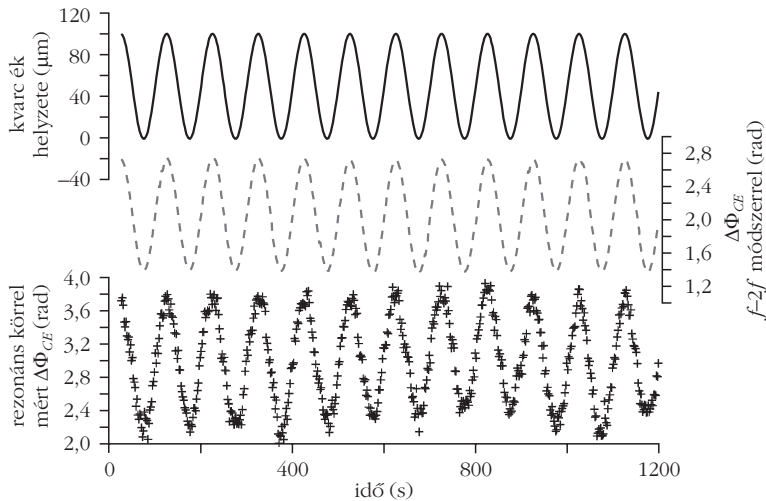
A megvalósítás során az egyik fő kihívást az jelenti, hogy a rezonátor mintegy 4 méter optikai úthosszát néhány nanométer pontosságon belül állandó értéken tartjuk. Egy ilyen hosszú fényút érzékeny a légmozgásokra, a rezonátor alaplemezeinek hőtágulására és a legapróbb mechanikai rezgésekre is. A kisebb optikai elrendezéseknél megszokott alumínium alaplemez helyett ezért acél lemezt kellett használnunk. A légmozgások elleni védekezés érdekében az interferométert fedéllel láttuk el, amelyet hangelnyelő szivaccsal béleltünk ki. A mechanikai rezgések még ezután is komoly zajjal terhelték a méréseket. Ezért meg kellett oldani a stabilizálás gyorsabb működését, amelyhez egy nagy sebességű vonalkamerát, egy nagy teljesítményű mérő-számítógépet és egy digitál-analóg átalakító kártyát használtunk fel. Végül a piezo eltoló által mozgatott tükröt, illetve mechanikát úgy választottuk meg, hogy az minél kisebb és könnyebb legyen.

Összehasonlító mérések a sztenderd módszerrel

Annak a bizonyítására, hogy a mérési módszerünk valóban képes az impulzusról impulzusra történő fázis-csúszást mérni, a berlini Max Born Intituttal együttműködve keresztkalibrációs méréssorozatot hajtottunk végre.

4. ábra. A kísérleti elrendezés vázlata.





5. ábra. A rezonátoron belüli ékpár [3] egyik tagjának az optikai tengelyre merőlegesen, szinusz függvény mentén történt mozgásával kapott eredmények.

A kísérleti elrendezésben egy olyan titán-zafir lézerezoscillátort használtunk, amelyben egy kvarc ékpár [3] segítségével lehetett változtatni a vivő-burkoló fázis csúszását. Ha a kvarc ékpár egyik tagját az optikai tengelyre merőleges irányban mozgatjuk, akkor megváltoztatjuk a rezonátoron belüli optikai anyag mennyiségét, vagyis a rezonátoron belüli fázis- és csoportkésleltetési időt. Ezen két fizikai mennyiség különbsége a vivő-burkoló fázis csúszásával arányos. Az oszcillátor fényét kettéosztottuk, és egyszerre mérünk a sztenderd $f-2f$ módszerrel és a rezonáns körrel, miközben a kvarc ékpár mozgását tetszőlegesen vezéreltük.

Az $f-2f$ módszerrel és a rezonáns körrel mért vivő-burkoló fázis csúszásértékei (5. ábra) jól korrelálnak. Az adatok közötti konstans eltérés annak eredménye, hogy a lineáris módszer csak a változásokat képes mérni, ez az additív konstans pedig a kezdeti állapottól függ. Ez ugyanakkor egyáltalán nem akadály a stabilizálásra nézve: egyszerűen a mért változásokat korrigálni kell, és akkor a fáziscsúszás egy állandó értéken marad [4].

Pikoszekundumos lézerimpulzusok vivő-burkoló fázis csúszásának mérése

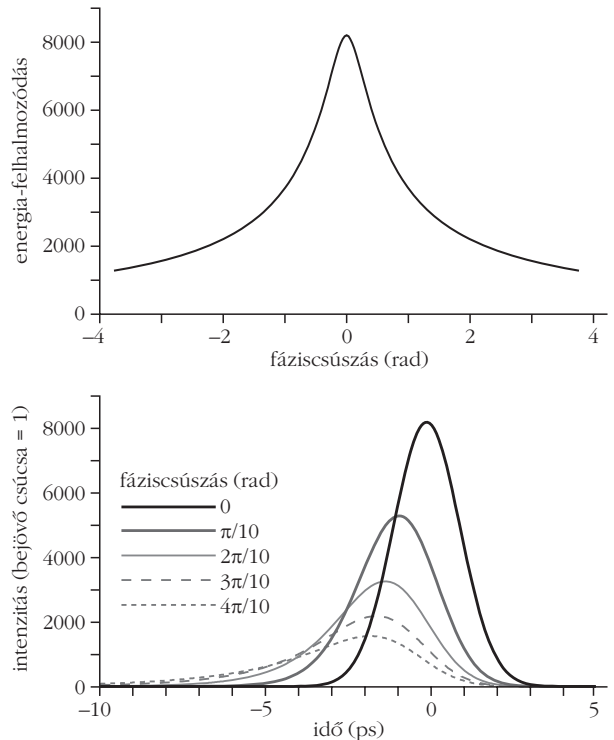
A kutatócsoportunk a Paris-Sud Egyetemen működő Laboratoire Acélérateur Linéaire kutatóintézet nagy intenzitású gamma-sugárforrást fejlesztő csoportjával együttműködésben a világon először mérte meg pikoszekundumos lézerimpulzusok vivő-burkoló fázis csúszását, ezzel demonstrálva a lineáris módszer sávszélesség-függetlenségét [5]. A francia csoport által fejlesztett sugárforrás a Compton-effektuson, azaz fotonok és elektronok ütközésén alapul. A részecskegyorsítóknak az elektroncsomagok hossza általában néhány pikoszekundum, így a kutatócsoport is 2 ps-os fényimpulzusokat használt. Ennek megfelelően a spektrális sávszélesség is csak 0,34 nm, tehát a sztenderd $f-2f$ módszerrel lehetetlen megmérni a fáziscsúszást.

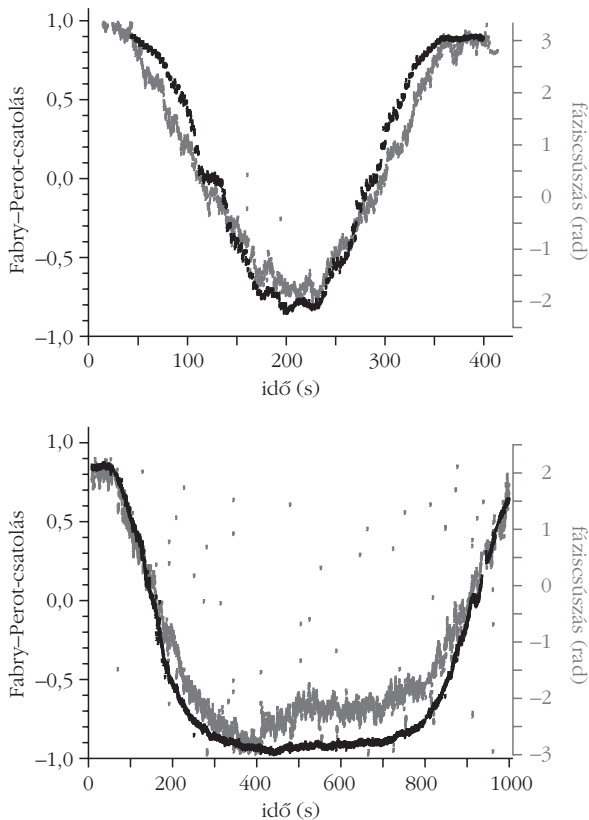
Miért számít a fáziscsúszás egy olyan impulzusnál, amely sok ezer periódusnyi hosszúságú?

A válasz abban rejlik, hogy a Compton-effektusnál alacsony a foton-elektron ütközési hatáskeresztmetszet, így a gamma-sugárforrás hatékony működéséhez nagyon nagy fényintenzitás szükséges. A fényimpulzus és az elektroncsomag ütközésekor a fény jelentős része változatlanul továbbhalad, tehát újra felhasználható. Mivel mind a fényimpulzusok, mind az elektroncsomagok periodikusan ismétlődnek, erre a megoldás az volt, hogy egy rendkívül nagy jósági tényezőjű passzív rezonátort használnak. (A tükrök reflexiója 0,9999 volt, a jósági tényező 28 000.) Ebből következően a rezonátor belsejében tárolt összenergia az egymást követő impulzusok tízezeireiből áll össze, optimális beállításoknál 8000-szeres erősítést hozva létre.

A maximális erősítéshez nemcsak az egymást követő impulzusok vivőhullámának maximális térerősségű pontjainak kell egybe esni (konstruktív interferencia), hanem a burkoló görbéknek is (több tízezer impulzuson keresztül) át kell fedniük. Ha ez utóbbit nem sikerül beállítani, a rezonátorban csak egy hosszabb, kisebb összenergiájú és csúcsintenzitású impulzus fog keringeni (6. ábra). Tehát egy ilyen, nagy jósági tényezőjű rezonátor erősítése nagymértékben függ a vivő-burkoló fázis csúszásától.

6. ábra. Szimulációs eredmények az elérhető maximális passzív erősítés különböző fáziscsúszásoknál vett értékeire, valamint a passzívan felerősített impulzusalak torzulására nullától eltérő fáziscsúszásnál.





7. ábra. Felül a pumpateljesítmény megváltoztatásának, alul a lézerekristály hőmérséklet-változásának kísérletileg mért hatása.

Egy lézeroszcillátorból kijövő impulzussorozat vivő-burkoló fázisának csúszása nem csak a fentebb említett ékpár egyik tagjának mozgatásával változtatható, hanem a pumpáló lézer teljesítményével vagy éppen a kristály hőmérsékletének változtatásával is. Ebben a kísérletben a gyári lézeroszcillátor által kibocsátott lézerimpulzusokat ezen két effektus alkalmazásával tudtuk változtatni. Azaz, a kísérletek során a pumpalézer teljesítményével, illetve a lézerekristály hőmérsékletével megváltoztattuk a fáziscsúszást, és mértük a Fabry–Perot-rezonátor csatolását is. A mérési eredményekből jól látható, hogy a külső Fabry–Perot-rezonátor csatolása egyértelműen összefügg az általunk mért fáziscsúszással (7. ábra).

Összefoglalás

A vivő-burkoló fázis csúszásának relatív mérésére szolgáló olyan merőben új megoldást mutattunk be, amely csak lineáris optikai elemeken és jelenségeken alapul. Ezzel a mérés (és a stabilizálás) olyan lézerek esetén is lehetővé válik, amelyekkel ez korábban nem volt lehetséges (például UV, vagy éppen 50 fs-nál hosszabb impulzusidejű, akár ps-os lézerek). Kísérletileg kimutattuk, hogy a módszer az f-2f eljárással valóban egyenértékű, ugyanakkor a technika jelen állása alapján még nem éri el annak pontosságát. Ugyanakkor először sikerült megmérni pikoszekundumos lézerimpulzusok vivő-burkoló fázisának csúszását, amelyet az elterjedt megoldások használatával nem lehetett volna kivitelezni. A lineáris módszerrel nem csupán az oktáv sávzsélességet kívánó feltételt lehet áthidalni, hanem skálázhatóságának köszönhetően – a rendelkezésre álló optikai elemektől és detektoroktól függően – tetszőleges hullámhossztartományon és fényintenzitás mellett lehetőség van a vivő-burkoló fázis csúszásának mérésére és stabilizálására. A módszer alkalmas különféle fáziscsúszás-stabilizáló eszközök vezérlésére. Ezek közül a stabilizálási kísérleteinkben az úgynevezett izokronikus ékpárt [6] alkalmaztuk. Ennek fényében megoldásunk számos nemzetközi kutatóintézet mellett az ELI-ALPS lézerrendszerei-nek is fontos része lehet a közeljövőben.

Irodalom

1. Farkas Győző: Attoszekundum időtartamú fényimpulzusok. *Fizikai Szemle* 56/12 (2006) 408.
2. H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Dunlop, J. Stenger, D. H. Sutter, U. Keller: Carrier-envelope offset phase control: A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation. *APB* 69 (1999) 327.
3. A. Apolonski, A. Poppe, G. Tempea, C. Spielmann, T. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, F. Krausz: Controlling the Phase Evolution of Few-Cycle Light Pulses. *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000) 740–743.
4. P. Jójárt, Á. Börzsönyi, B. Borchers, G. Steinmeyer, K. Osvay: Agile linear interferometric method for carrier-envelope phase drift measurement. *Opt. Lett.* 37 (2012) 836–838.
5. Á. Börzsönyi, R. Chiche, E. Cormier, R. Flaminio, P. Jójárt, C. Michel, K. Osvay, L. Pinard, V. Soskov, A. Variola, F. Zomer: External cavity enhancement of ps pulses with 28000 cavity finesse. *Applied Optics* 52 (2013) 8376–8380.
6. M. Görbe, K. Osvay, C. Grebing, G. Steinmeyer: Isochronic carrier-envelope phase-shift compensator. *Opt. Lett.* 33 (2008) 2704–2706.