

AZ IZOLÁLT ATTOSZEKUNDUMOS IMPULZUSOK ELŐÁLLÍTÁSÁT MEGALAPOZÓ LÉZERFIZIKAI FEJLESZTÉSEK A KILENCVENES ÉVEK KÖZEPÉN A BÉCSI MŰSZAKI EGYETEMEN

Szipőcs Róbert

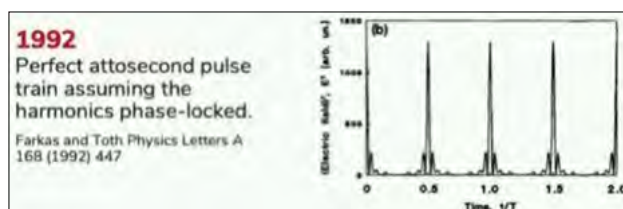
HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóközpont, Budapest

Írásomban a következő pár oldalon azt szeretném bemutatni, hogy az izolált attoszekundumos impulzusok előállítása miért éppen Krausz Ferencnek sikerült először a világon, és hogy ezt az eredményt milyen alapvető fontosságú lézerfizikai, lézertechnológiai fejlesztések előzték meg a kilencvenes években – többek között a Bécsi Műszaki Egyetemen, az ő szakmai vezetésével.

Ahhoz, hogy az egész fejlesztési folyamatot megértjük és értékeljük, talán a legvégén érdemes elkezdenünk a történetet, vagyis ott, hogy egy magas rendű nemlineáris optikai folyamat, a magasharmonikus-keltés (HHG) révén hogyan lehet rövid, nagy intenzitású lézerimpulzusokkal attoszekundumos impulzussorozatot, illetve egyedi, izolált attoszekundumos impulzusokat előállítani – például nemesgázokban – attól függően, hogy a lézerimpulzusunk hossza hogyan viszonyul annak (esetünkben tipikusan 800 nm körüli) középhullámhosszához. A nemlineáris optika rejtelmeibe, azon belül a magasharmonikus-keltés elméleti alapjaiba Dombi Péter és Tóth Csaba írásai vezetnek be az olvasót ebben a Nobel-díjhoz kapcsolódó különszámban; itt röviden csak összefoglalom a legfontosabb megállapításokat, törvényszerűségeket.

Először is, a gázatomok polarizálhatóságának szimmetriafüggése miatt csak a páratlan sorszámú harmonikusok állnak elő a HHG során. Másodszor, a legmagasabb sorszámú (legrövidebb hullámhosszú) harmonikus rendjét az azt előállító lézerimpulzus maximális térerőssége (E) határozza meg, vagyis minél nagyobb a fókuszált térerősség az atomokban, annál magasabb harmonikusokat tudunk előállítani. A harmadik, és az izolált attoszekundumos impulzusok előállítása szempontjából rendkívül fontos megállapítás, hogy a magas harmonikusok minden térerősség-maximumban egyidőben, egymással azonos fázisban előállnak, így egy most már vi-

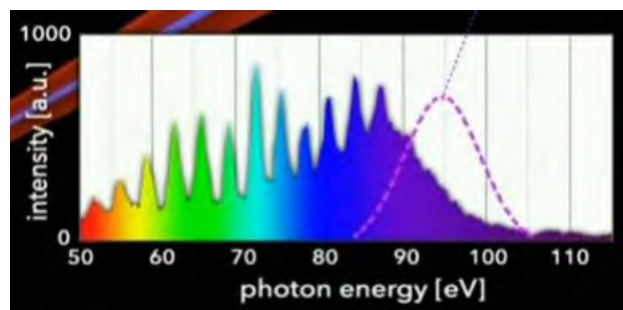
szonylag egyszerűen megépíthető, 20–30 fs-os Ti-zafír lézerezősítő impulzusainak nemesgázba (pl. Kr) történő fókuszálása esetén egy attoszekundumos impulzussorozatot (1. ábra), nem pedig egy időfelbontásos mérésekre jól használható, izolált attoszekundumos impulzust kapunk.



1. ábra. Magasharmonikus-keltés révén létrehozott attoszekundumos impulzussorozat [1]

Izolált, egyedi attoszekundumos impulzusokat a magasharmonikus-keltés során kizárólag olyan lézergyjesszítés esetén tudunk előállítani, amikor a lézerimpulzust leíró $E(t)$ időfüggvény csak egy, a többinél lényegesen nagyobb időbeli maximummal rendelkezik, és így az ebben keltett magas harmonikusok rendje, energiája lényegesen meghaladja a többi maximumban keltett vonatkozó értékeket. Ebben az esetben, ha megfelelő spektrális szűrőt alkalmazva (2. ábra) kiválasztjuk a legnagyobb energiával rendelkező XUV (kemény ultraibolya) komponenseket, akkor ezek egyedi, attoszekundumos lézerimpulzusokként jelennek meg a szűrés után [1, 2].

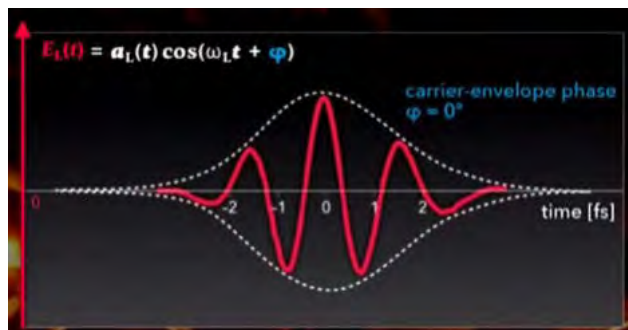
A magasharmonikus-keltéshez használt nagy energiájú lézerimpulzusnak ilyenkor – izolált attoszekundumos impulzusok előállításakor – praktikusán két feltételnek kell megfelelnie: az első, hogy a lézerimpulzus



2. ábra. A legmagasabb energiájú magas harmonikusok kiválasztása megfelelő spektrális szűrő alkalmazásával (lila szaggatott vonallal jelölve) izolált (nem sorozat) attoszekundumos impulzus előállítását eredményezi [1, 2]



Szipőcs Róbert, PhD, okleveles villamosmérnök (BME, MSc), lézerfizikus (SZTE, PhD), a HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóközpont tudományos főmunkatársa, az R&D Ultrafast Lasers Kft. ügyvezetője. A részben Krausz Ferencsel közösen, a femtoszekundumos lézertechnológia fejlesztése területén elért eredményeiért többek között Nemzetközi Gábor Dénes-díjat, Akadémiai Szabadalmi Nívódíjat, az ELFT Bródy Imre-díjat és az MTA Fizikai Tudományok Osztálya Fizikai Díját kapta.



3. ábra. Egy fázisstabilizált lézeroszcillátor esetén a térerősség maximumát rögzíteni tudjuk az $I(t)$ függvény maximumában, illetve az egymást követő lézerimpulzusokban a térerősség maximális értéke, s így a keltett XUV spektrum szélessége sem változik. Ha a lézerimpulzus megfelelően rövid, akkor csak egy, a többinél lényegesen nagyobb térerősség-maximuma van, ami alkalmas izolált attoszekundumos impulzusok előállítására a 2. ábrán bemutatott spektrális szűrő alkalmazásával [1, 2]

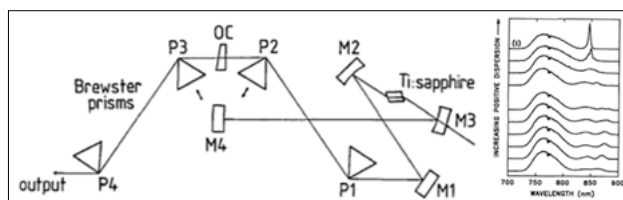
térbeli kiterjedése maximum másfél-kétszerese legyen a lézerimpulzus középhullámhosszának (ami egy 800 nm-en működő Ti-zafir lézer esetében kb. 5 fs időbeli hosszúságú lézerimpulzusokat feltételez), másodsor, hogy a térerősség-maximum folyamatosan éppen az impulzus fényintenzitás-idő-függvényének, $I(t)$ -nek maximumába essen, ami ún. fázisstabilizált lézeroszcillátort és erősítőrendszert feltételez (3. ábra).

Összefoglalva: az izolált, időfelbontásos mérésekre alkalmas attoszekundumos lézerimpulzusok előállításához Krausz Ferenc kollégámnak (Ferinék) először is szüksége volt szub-mJ energiájú, 5 fs-nál rövidebb időtartamú, fázisstabilizált lézerimpulzusokra, amelyek előállításáról valójában 1993-ban szerintem senki – még ő maga – sem gondolkodhatott, hiszen ehhez még egy sor fontos új lézerfizikai, lézertechnológiai fejlesztésre is szükség volt. Ezek közül volt olyan, amelyet időközben már szintén Nobel-díjjal ismertek el, pl. Theodor W. Hänsch 2005-ben a frekvenciafésű és a fázisstabilizált fs-os lézerek megvalósításáért kapott Nobel-díjat [1].

Akkor most térjünk vissza időben 1993-ba, a BÉCSI Műszaki Egyetemre, ahol Feri vezetésével pár éve már komoly kutató-fejlesztő munka folyt, hogy a Ti-zafir kristályon mint lézeraktív közegen alapuló fs-os lézeroszcillátorok segítségével előállítsák a lehető legrovidebb lézerimpulzusokat a lézer kimenetén. Ezeknek a lézereknek a „szolitonszerű” működését Feri egy nagyon alapos, *IEEE Journal of Quantum Electronics* folyóiratbeli cikkben foglalta össze [3], ami tulajdonképpen az 1993-as habilitációs eljárásának, professzori kinevezésének is az alapja volt a BÉCSI Műszaki Egyetemen. A részletek bemutatása nélkül most csak néhány fontosabb eredményt emelnék ki a cikkből, amelyek a következők: a módusszinkronizált szilárdtest-lézerekben, mint pl. a Ti-zafir lézer esetében a rezonátorban kialakuló lézerimpulzusok hosszát ($\Delta\tau$) alapvetően két folyamat, az ún. önfázis-moduláció (SPM) és az ezt kompenzáló, az egész rezonátorra nézve eredően negatív diszperzió (D) nagysága határozza meg, amit szolitonszerű impulzusformálódásnak nevezünk. Ezt a következő egyszerű összefü-

gés formájában tudjuk felírni: $\Delta\tau \sim \text{const} \times |D|/(\varphi E)$, ahol φE az impulzus egy körülfutására számított nemlineáris fázistolása – ez tulajdonképpen a lézerimpulzus ún. önfázis-modulációját, spektrális kiszélesedését írja le.

Az összefüggésből látszik, hogy ahhoz, hogy rövidítsük a lézerimpulzusokat, a lézerünkben az eredő (negatív) diszperzió abszolút értékét egyre közelebb kell vinnünk a nullához. Ennek gyakorlati korlátját 1993-ban a diszperziókompenzálásra használt Brewster-szögű prizmapárok (negatív) harmadrendű diszperziója jelentette [4]. Egy ilyen, a TU Wien-en megépített, prizmapárokat tartalmazó lézerelrendezést mutatok be a 4. ábra bal oldalán, míg a jobb oldalon egy olyan mérési sorozat eredményét mutatom be, amikor az eredő negatív diszperzió értékét ($|D|$) egyre csökkentették az egyik prizma (P2) lézernyalábba történő betolásával – a pozitív anyagi diszperzió növelésével –, és mérték a lézer kimeneti spektrumát [4]. Az ezzel az elrendezéssel előállított legrövidebb lézerimpulzusok hossza a mérések szerint $\sim 12,5$ fs volt, amit alapvetően a diszperziókompenzálásra használt prizmapárok diszperziós tulajdonságai korlátoztak, hiszen a lézer spektruma még éppen belefért a negyedhullámú rétegekből felépülő lézertükrök 180–200 nm-es sáv szélességébe [5].



4. ábra. Prizmapárt diszperziókompenzáló elemként tartalmazó femtoszekundumos Ti-zafir lézer (bal oldal) és kimeneti spektrumának változása a prizma (P2) pozíciójának függvényében (jobb oldal). A prizma (pozitív) anyagi diszperziója a lézernyalábba történő betolásakor nő, így a rezonátorban az eredő negatív diszperzió értéke, $|D|$ csökkenthető

Ahhoz, hogy megértsük, miért jelentett végső korlátot a femtoszekundumos Ti-zafir lézeroszcillátorok impulzushossza esetében a diszperziókompenzálásra használt Brewster-szögű prizmapárok használata, értenünk kell ezeknek a lézereknek a működését [3].

Ahhoz, hogy ultrarövid lézerimpulzusokat állítsunk elő, annak szükséges, de nem elégséges feltétele, hogy rendelkezünk egy széles sávú erősítő közeggel, ami jelen esetben egy optikailag gerjesztett Ti-zafir kristályt jelent, aminek erősítési tartománya a 680–1060 nm-es hullámhossz-tartományra esik. Itt fontos megjegyeznünk, hogy a lézerimpulzusok elektromos térerősségét az időtartományban leíró $E(t)$ függvény, valamint az optikai frekvenciatartományban leíró $E(\omega)$ függvény Fourier-transzformációs kapcsolata következtében minél rövidebb egy lézerimpulzus, annál szélesebb az optikai frekvenciaspektruma. Ezt az összefüggést általában a következő egyszerűbb formában szoktuk felírni:

$$\Delta\tau \Delta\nu \geq \text{állandó},$$

ahol az állandó értéke a lézerimpulzus időbeli alakjának

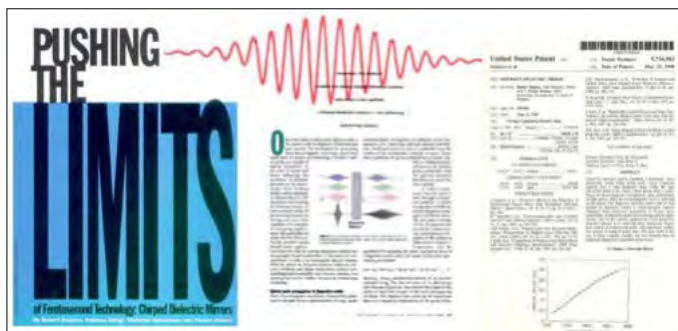
függvénye. Pl. sech^2 időalakok esetén 0,315, Gauss-impulzusok esetén pedig 0,44. Egyenlőség az összefüggésben akkor áll fenn, ha a lézerimpulzus „csörpmentes”, vagyis az egyes frekvenciakomponensek fázisa lineárisan változik (vagy nulla) a frekvencia függvényében. A Ti-zafír lézer előbb említett erősítési sávzélessége 1993-ban akár 4 fs-nál rövidebb impulzusok előállítását is lehetővé tette volna, ha nem lettek volna azok a további korlátozó fizikai tényezők, amelyeket most röviden ismertetni fogok.

Először is ahhoz, hogy femtoszekundumos lézerünk impulzus-üzemmódban működjön, a különböző frekvenciakomponenseket *módusszinkronizálni* kell, ami annyit jelent, hogy az egyes frekvenciakomponensek térerősségét leíró koszinusz időfüggvények fázisa a tér egy adott pontjában, egy adott időpillanatban egyszerre nulla legyen, vagyis az egyes frekvenciakomponensek elektromos térerősségtérképei fázishelyesen adódjanak össze az adott helyen, az adott időpillanatban. Erre a célra tökéletesen megfelel a Ti-zafír kristályban a változó $I(t)$ fényintenzitás hatására szinte azonnal létrejövő törésmutató-változás, a Kerr-hatás [2, 3], amit a megfelelő tervezési paraméterek beállítása után Kerr-lencsés módusszinkronizálásra lehet használni. Ehhez olyan rezonátort kell megterveznünk, amelyben nagyobb fényintenzitások esetén kisebb a veszteség – vagy nagyobb az erősítés –, mint egyébként. A lézer módusszinkronizált működése mindaddig fennmarad, amíg ez a megnövekedett differenciális erősítés a módusszinkronizált állapotára jellemző. Ezt az állapotot a nulla diszperzióhoz közeledve egyre nehezebb fenntartani prizmás kompresszorok alkalmazása esetén, mert a lézerimpulzusok spektrumának egy része egy idő után már a pozitív diszperziós tartományba esik, így időben szétfolyik, és ez mint extra veszteség jelentkezik. A differenciális erősítés értéke egy idő után nullára csökken, azaz megszűnik a módusszinkronizált működés.

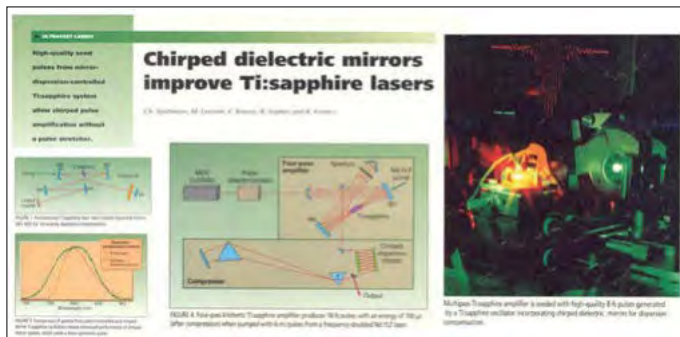
Erre – és sok egyéb, a femtoszekundumos lézerekhez, erősítőkhöz és kompresszorokhoz kapcsolódó problémára – hoztak megoldást azok a vékonyrétegtükrök-minták (a diszperziókompenzálás céljára általam korábban megtervezett lézertükrök), amelyeket 1993 nyarán magammal hoztam Bécsbe. Feri – nem igazán minden előzmény nélkül – ragaszkodott ahhoz, hogy ellenőrizzük egy fehér fényű Michelson-interferometer segítségével, hogy a tükrök minták valóban negatív (anomális) diszperzióval rendelkeznek-e 800 nm körül, a tükrök nagyreflexiójú tartományában – mint ahogyan én azt a számításaim alapján feltételeztem. Ahogy az első Michelson-interferométeres méréseken, az adatok kiértékelésén túlvoltunk, egy csapásra megváltozott minden körülöttem: Adreas (Stingl), – aki később a Stingl OAG majd a Femtolasers GmbH alapítója és ügyvezetője lett – Christiannal (Spielmann) nekiálltak, hogy egy olyan Ti-zafírt építsenek, amiben a prizmák helyett az új, diszperziókompenzáló tükrök biztosítják a rezonátorban az eredő anomális (negatív) diszperziót és széles sávban a nagy reflexiót.

Feri a tanszéken lévő összes használható asztali AT számítógépet behordatta a (vendég-) szobámba, hogy azokon újabb és újabb tükröterveket készítsék újabb és újabb specifikációk szerint, amelyekben az alkalmazott 2 mm hosszú Ti-zafír kristály pozitív másodrendű diszperziója mellett figyelembe vettük már annak szintén harmadrendű pozitív diszperzióját is. Az elkészített újabb terveket telefaxon küldtük el Ferencz Kárpát kollégámnak, aki – látva lelkesedésünket – most már lézeroptikai minőségű, szabványos 25,4 mm átmérőjű hordozókra párologtatta le Budapesten az újabb tükrömintákat, majd küldte el azokat nekünk Bécsbe. Innentől kezdve már csak annyi dolgunk volt Ferivel, hogy megírjunk két, azóta nagyon sokszor hivatkozott *Optics Letters*-cikket az akkor Bécsben együtt végzett munkánkról: egyet az első, fs-os Ti-zafír lézerben is kipróbált csörpölt tükrökről [6], egyet pedig az első, tükrödiszperzió-kompenzált (mirror-dispersion controlled, MDC) Ti-zafír lézerről [7]. A cikkek megjelenése előtt viszont még augusztusban, Budapesten úgy döntöttem, hogy megírom a diszperzív (csörpölt) dielektrikumtükrökre vonatkozó magyar és amerikai szabadalmi bejelentésünket [8], hiszen úgy gondoltam, ennek még jelentős szerepe lehet további szakmai munkánk, életünk során. Ebben – úgy tűnik – nem is sokat tévedtem...

Az 1993-ban Budapesten általam elsőként megtervezett, majd Bécsben Ferivel továbbfejlesztett csörpölt tükrök femtoszekundumos, fázisstabilizált (!) lézerező-cillátorokban, erősítőkhöz betöltött szerepét, jelentőségét ebben a cikkben nem részletezem, csak hivatkozom Krausz Ferencsel közösen jegyzett közleményeinkre, mint például az Optical Society of America (OSA) *Optics and Photonics News* című havilapjában megjelent összefoglaló cikkünk (5. ábra, bal oldal), vagy az 1998-ban elfogadott, *diszperzív dielektrikumtükrökre* és *MDC Ti-zafír oszcillátorokra* vonatkozó közös magyar és USA-beli szabadalmainkra (jobb oldal). Az 5. ábra közepén lévő kis színes ábrán azt szemléltettük, hogy egy normális (pozitív) diszperzióval rendelkező közegen (pl. a Ti-zafír kristályon) áthaladó ultrarövid lézerimpulzus hogyan nyúlik meg időben a diszperzió hatására. A jobb oldalon lévő USA-beli szabadalmi bejelentésen pedig egy (csörpölt) diszperzív dielektrikumtükör mért cso-



5. ábra. Az *Optics & Photonics News*-ban Krausz Ferencsel közösen megírt cikkünk [9] a csörpölt tükrökkel elért első eredményeinkről, valamint a pár évvel később, 1998-ban elfogadott közös, USA-beli szabadalmi bejelentésünk [8]



6. ábra. A Bécsi Műszaki Egyetemen megépített Ti-zafir oszcillátorokban és erősítőkhöz használt csörpölt tükrök szerepét, jelentőségét mutatja be a *Laser Focus World*-ben 1995 végén megjelent cikkünk [10]



7. ábra. 5 fs-os, szub-mJ energiájú lézerpulzusok előállítása nemesgázzal töltött üvegek kapillárisban nagy energiájú, ~20 fs-os lézerpulzusok spektrális kiszélesítését majd csörpölt tükrökkel történő diszperziókompenzálását követően [1, 12]

portkésleltetési függvénye látható, ami közel állandó értékű anomális (negatív) diszperziót mutat a tükör nagy reflexiójú tartományán, így megfelelő számú reflexió alkalmazása esetén alkalmas a (pozitív) anyagi diszperzió megfelelő kompenzálására.

Egy további hasonló összefoglalóban, a *Laser Focus World*-ben megjelent közös cikkünkben a csörpölt tükrök Ti-zafir oszcillátorokban és erősítőkhöz betöltött szerepét, jelentőségét mutattuk be (6. ábra). Az ábra bal oldalán egy prizmapárok alkalmazása nélkül megépített MDC Ti-zafir oszcillátor rajza, alatta a lézer kimenetén mért spektrum látható, összehasonlítva egy prizmapáros oszcillátoréval. Az ábra középső részén egy olyan 1 kHz-es ismétlési frekvencián működő Ti-zafir erősítő rajza látható, ahol az erősített impulzusok kompressziójára egy prizmapár és csörpölt tükrök kombinációját használjuk úgy, hogy a prizmapárok negatív másodrendű és negatív harmadrendű diszperzióját kombináljuk a kifejezetten erre a célra megtervezett csörpölt tükrök negatív másodrendű és pozitív (!) harmadrendű diszperziójával. Ennek segítségével gyakorlatilag tökéletes diszperziókompenzálást sikerült megvalósítanunk a CPA (chirped pulse amplification) rendszerünk kimenetén.

A csörpölt tükröket az első bécsi kísérleteket követően egyéb ultragyors lézerrendszerekben is eredményesen alkalmaztam, többek között az első olyan hangolható, ~100 fs-os Ti-zafir lézerekben, amelyek nélkül ma már elképzelhetetlen lenne a munka a nemlineáris mikrosz-

kópiát (pl. kétfoton-abszorpciós fluoreszcenciát) alkalmazó laborokban, vagy olyan optikai parametrikus oszcillátorokban (OPO) és erősítőkben (OPA), amelyek nagy hatásfokkal tudják a Ti-zafir vagy egyéb femtoszekundumos oszcillátorok, erősítők (pl. Yb-szállézek) fényét más hullámhossz-tartományokba konvertálni. Az érdeklődő olvasó figyelmébe ajánlom a témában 2000-ben a PhD-fokozat megszerzése céljából megírt disszertációm [11].

Befejezésül szeretném még a Krausz Ferencsel közösen végzett egyik utolsó munkánkat megemlíteni. Ebben olasz kollégák segítségével (M. Nisoli, S. de Silvestri és O. Svelto) egy nemesgázzal töltött üvegek kapillárisban létrejövő spektrális kiszélesítést, majd megfelelő sáv szélességgel rendelkező csörpölt tükrökkel történő diszperziókompenzálást követően sikerült a Bécsi Műszaki Egyetemen megépített, 1 kHz-es ismétlési frekvencián működő Ti-zafir erősítő 18–20 fs-os lézerpulzusait az 5 fs-os időtartományba konvertálni [12]. Ez akkor, 1997-ben egy rendkívül jelentős lépés volt az izolált attoszekundumos lézerpulzusok előállításának irányában – mint az Krausz Ferenc kollégám 2023. december 8-án tartott előadásából is kiderült [1]. A vonatkozó előadásrészletről készült képernyőfotót a 7. ábrán mutatom meg.

Irodalom

- 2023 Nobel Prize lectures in physics, Pierre Agostini, Ferenc Krausz and Anne L'Huillier, <https://www.youtube.com/watch?v=vXJFBW-2kI>
- Krausz F.: Atomok és elektronok mozgásban. *Fizikai Szemle* 2002/01, 12.
- Krausz F., Fermann M. E., Brabec T., Curley P. F., Hofer M., Ober M. H., et al.: Femtosecond solid state lasers. *IEEE J. Quantum Electron.* 28 (1992) 2097.
- Curley P. F., Spielmann Ch., Brabec T., Krausz F., Wintner E., Schmidt A. J.: Operation of a femtosecond Ti:sapphire solitary laser in the vicinity of zero group-delay dispersion, *Opt. Lett.* 18 (1993) 54–56.
- Szipöcs R., Ferencz K.: Recent developments of laser optical coatings in Hungary. *Opt. Engineering* 32 (1993) 2525.
- Szipöcs R., Ferencz K., Spielmann C., Krausz F.: Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers. *Opt. Lett.* 19 (1994) 201.
- Stingl A., Spielmann C., Krausz F., Szipöcs R.: Generation of 11-fs pulses from a Ti:sapphire laser without the use of prisms. *Opt. Lett.* 19 (1994) 204.
- Szipöcs R., Krausz F.: Dispersive dielectric mirror. U. S. Pat. No.: 5,734,503 (1993).
- Szipöcs R., Stingl A., Spielmann Ch., Krausz F.: Pushing the limits of femtosecond technology: Chirped dielectric mirrors. *Optics & Photonics News* 6(6) (1995) 16.
- Spielmann Ch., Lenzner M., Krausz F., Szipöcs R., Ferencz K.: Chirped dielectric mirrors improve Ti:sapphire lasers. *Laser Focus World*, December 1995, 55–60.
- Szipöcs R.: Dispersive Properties of Dielectric Laser Mirrors and their Use in Femtosecond Pulse Lasers. Dissertation for PhD degree (SZTE, 2000). http://www.szipocs.com/picks/Dispersive_Properties_of_Dielectric_Laser_Mirrors_and_their_Use.pdf
- Nisoli M., De Silvestri S., Svelto O., Szipöcs R., Ferencz K., Spielmann Ch., Sartania S., Krausz F.: Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. *Opt. Lett.* 22 (1997) 522–524.