

Időbontott és nemlineáris femtoszekundumos optika

Az ultrarövid impulzusú, nagy intenzitású lézerek használatára alapuló kutatási projekt a – a kutatási tervnek megfelelően – öt fő tudományos részterület mentén hozott nemzetközi szintű eredményeket. Ezek az időbontott, ultragyors spektroszkópiai mérések biológiai mintákon, nemlineáris optikai együtthatók mérései, plazmonikus struktúrák kialakítása femtoszekundumos lézerekkel, a új lézeres fényforrások kutatása-fejlesztése, valamint új diagnosztikai és mérési eljárások kutatás-fejlesztése. Az elért kiemelkedő eredmények:

- Kísérletileg igazoltuk a bR fotociklusának a BR→K és BR→I átmenetén alapuló ultragyors optikai kapcsolást. A jövőben ez lehet az alapja egy fehérje alapú integrált optikai eszköz megvalósításának.
- Egy szisztematikus mérésorozattal először mértük meg semleges gázok nyomásfüggő nemlineáris törésmutatóját. A hiánypótló eredményeinket a nemlineáris optikai illetve frekvenciakonverziós eljárásokat kutató nemzetközi közösség azonnal használni kezdte.
- Új, kolloid-gömbökön és femtoszekundumos lézereken alapuló litográfiai eljárást fejlesztettünk ki és szabadalmaztattunk. Az eljárást fém/szilika kolloid monorétegek különböző paraméterek végzett kivilágításával kísérletileg is bizonyítottuk.
- Optikai parametrikus erősítésen és összefrekvencia keltésen alapuló eljárást fejlesztettünk ki energikus (GW csúcsteljesítményű) femtoszekundumos impulzusok előállítására. A módszer elvileg továbbskálázható TW-PW csúcsteljesítményű impulzusok létrehozására.
- Új, lineáris optikai elemeken alapuló gyors eljárást fejlesztettünk ki rövid impulzusok vivő-burkoló fázisának sáv szélességtől független mérésére. Az eljárással először sikerült megmérni pikoszekundumos impulzusok vivő-burkoló fázisát is.

A kutatásainkból 15 nemzetközi referált folyóiratban megjelent cikk mellett 2 magyar, és egy nemzetközi szabadalmi bejelentés született, valamint közel negyven nemzetközi- illetve hazai konferencia-prezentációt tartottunk. A kísérletek nagy részét helyileg a TeWaTi laboratóriumban (www.tewati.hu) végeztük el. Külföldi laboratóriumokban (LOA és LAL (Franciaország), MBI (Németország)) végzett méréseink során elsősorban az általunk kifejlesztett mérési új mérési eljárásokat próbáltuk ki illetve kalibráltuk.

Megjegyezzük, hogy a futamidő alatt a munkát több tényező is hátráltatta. Egyrészt a labor eredeti épületének felújítási munkálatai miatt a teljes labort 2010 nyarán ideiglenes helyre kellett költöztetni, illetve 2011 decemberében visszaköltöztetni. Másrészt az ultrarövid impulzusokat előállító lézer oszcillátor pumpáló lézere az elektromos szolgáltató hibájára visszavezethetően tönkrement, ekképpen azt – egy 8 hónapig tartó közbeszerzési eljárás keretében - pótoltuk. Mindezek miatt kértünk – és kaptunk a kutatási program végrehajtására egy fél év hosszabbítást.

1. Időbontott lineáris optikai mérések biológiai mintákon

1.1 A bakteriorodopszin (bR) lineáris diszperziójának mérése [1]

A bR számtalan felhasználása ellenére a koncentrációfüggő törésmutatójára vonatkozó pontos mérési adatok az irodalomban nem álltak rendelkezésre. Az időbontott mérések megkezdése előtt ezért célszerű volt a bR törésmutatójának, valamint a törésmutató koncentrációfüggésének meghatározása a közeli UV tartománytól egészen a közeli IR tartományig.

A kísérletek során a bR-t TRIS(hidroximetil)aminometán (10 mM, pH 7.0) pufferrel hígítottuk, mert az optikai denzitása igen nagy (OD=60). Az abszolút koncentrációk meghatározásához spektrofotométerrel a különböző mértékben hígított bR oldatok (továbbiakban: szuszpenziók) abszorpciós spektrumait mértük meg a 400-900 nm közötti hullámhossztartományon. A bR szuszpenziók, valamint a TRIS puffer törésmutatóját a minimális deviáció szögének méréséből határoztuk meg refraktometriai eljárással. A mintát speciális üregprizmába töltöttük, amire részben nagy teljesítményű xenon lámpa fényét (390-780 nm), részben pedig szélessávú titán-zafir lézer impulzusait (780-880 nm) bocsátottuk. Monokromátorokkal a mérőnyaláb hullámhosszát változtatva megmértük a minimális deviáció szögeit egy nagy pontosságú goniométerrel. A monokromátorok feloldása 1 nm körüli sáv szélességet engedett meg a teljes mérési tartományon. A bR törésmutatójának értékeit 20, 39, 58, 76 μM koncentrációk esetén határoztuk meg 5-10 nm-enként, ahol a levegő nyomás- és hőmérsékletfüggő Sellmeier-együtthatóit is figyelembe vettük. Méréseink hibája a törésmutató értékében 0.0004 volt.

A szuszpenziók és a puffer mért törésmutató-adatainak ismeretében a tiszta bR törésmutatóját két modell alapján is kiszámoltuk: lineáris összefüggés alapján valamint a Schwes-egyenlet alkalmazásával – a kapott törésmutató-értékek jó közelítéssel megegyeztek mindkét modell esetében.

Ahhoz, hogy a teljes hullámhossztartomány bármely pontján meg tudjuk határozni a tiszta bR törésmutatójának értékét, diszperziós egyenleteket kell illeszteniünk. Több diszperziós egyenlet kipróbálása után a két-tagú Sellmeier-féle egyenlet illeszkedése volt a legjobb a mért törésmutató-adatokra. Tekintettel arra, hogy

a tiszta bR 570 nm körül erős abszorpciót mutat, így az eredmények kiértékelésénél egy abszorpcióval módosított kéttagú Sellmeier-típusú egyenletet vettünk alapul. Kiemelendő, hogy a Sellmeier-egyenlet mért adatokra való illesztése visszaadta az abszorpció vonal irodalomban elfogadott értékét (559.8099 nm). Ezen túlmenően megállapíthatjuk, hogy eredményeink összhangban vannak az irodalom alapján várható törésmutató-változással is, ami az abszorpció vonal körül a megvilágító fény csúcsintenzitásától függően ± 0.001 - 0.003 értékek közé esik.

1.2 A diszperzió időbeli változása [2]

Az integrált optikai fejlesztések egyik kulcskérdése egy megfelelő nemlineáris optikai (NLO) tulajdonságokkal rendelkező anyag megtalálása, ami hullámvezetők felületén alkalmazva fényindukált kapcsolást mutat. Erre a célra mindeztidáig folyadék-kristályokat, illetve más biológiai anyagokat használtak, melyek azonban nem váltak be maradéktalanul. Az egyik új lehetséges jelölt lehet a bakteriorodopszin, melynek nem csak kedvező NLO tulajdonságai vannak, hanem mind optikailag, mind pedig mechanikailag stabil, könnyen kezelhető és nem utolsósorban olcsó. Jóllehet a korábbi munkáink során kísérletileg kimutattuk, hogy a fényindukált átmenet a bR→M állapotok között alkalmas optikai kapcsolásra, azonban ez az átmenet relatíve lassú, a 10 μ s tartományba esik.

A pályázat keretei közt megvizsgáltuk és kísérletileg igazoltuk, hogy a jóval gyorsabb (néhány ps) bR→K átmenet is eredményesen használható optikai kapcsolásra. Sőt, egy lépéssel továbbmenve, a bR eddig ismert leggyorsabb (<0.5 ps) bR→I átmenetét is sikerült elérnünk.

A pumpa-próba méréseinket 10 Hz-es, TW-osztályú lézerrendszer 800 nm-es impulzusaival végeztük, amelyeket két részre osztottunk. Az intenzívebb részből optikai parametrikus fázismodulált impulzus-erősítés (OPCPA) és fázismodulált összegfrekvencia-keltés (chirp-assisted SFG) kombinációjával állítottuk elő a 150 fs – 45 ps között hangolható időtartamú, sub-mJ energiájú pumpa impulzusokat. A 800 nm-es próba impulzus sávzélességét 1800 mm⁻¹ Ag-rács, egy optikai rés illetve Fabry-Perot interferométer alkalmazásával 0.2 nm – 3 nm között változtattuk. Az impulzusokat megfelelő késleltetés után egy bR filmmel bevont rács-becsatolású (2400 mm⁻¹) sík hullámvezető rétegre irányítottuk. A hullámvezetőbe becsatolt spektrumot egy spektrográffal, az intenzitás változását pedig egy gyors fotodiódával mértük. Gerjesztés hatására a mintában törésmutató-változás lépett fel, ezért a becsatolt fényimpulzus rezonancia-csúcsa eltolódott, illetve az intenzitása megváltozott.

Összegezve tehát, kísérletileg igazoltuk a bR fotociklusának mind a BR→K, mind pedig a BR→I átmenetén alapuló ultragyors kapcsolást. A jövőben tehát ez lehet az alapja egy fehérje alapú integrált optikai eszköz megvalósításának.

2. Nemlineáris optikai mérések [3]

Ultrarövid lézerimpulzusok terjedése során is megfigyelhető nemlineáris folyamatok közé tartozik a Kerr-effektus, amely az anyag törésmutatójának intenzitással arányos változását írja le. Az arányossági tényezőt nemlineáris törésmutatónak (n_2) hívjuk. Nagyintenzitású lézerimpulzusoknál ez az impulzus térbeli profiljának, spektrális fázisának valamint spektrumának az impulzus keresztmetszete mentén megfigyelhető torzulását eredményezi. Ezen torulás méréséből a nemlineáris törésmutató elvileg meghatározható. Célunk a magas harmonikus keltéshez gyakran alkalmazott nemesgázok (Ne, Ar, Xe) valamint további semleges gázok (levegő, N₂) un. teljes nemlineáris törésmutatójának nyomásfüggését kísérletileg meghatározása.

Méréseinket spektrálisan és térben bontott interferencia módszerével végeztük el, amit az ultrarövid impulzusok spektrális fázisváltozásának nagy pontosságú vizsgálatára fejlesztettünk ki. A kísérleti összeállításunk egy Mach-Zehner-interferométer és egy kétdimenziós leképező spektrográf kombinációján alapult. Az interferométer két karjának impulzusai egy hosszú, változtatható nyomású csőben haladtak végig jelentősen eltérő intenzitással. Ennek következtében a mérő- és referenciakar nyalábjainak nemlineáris fázistorzulásai között különbség alakult ki, amit a spektrográffal rögzített interferogramok kiértékelésével meghatároztunk. Kiszámoltuk az n_2 értékeket 1 bar nyomásra vonatkozóan, melyek a levegőre 5.7, a nitrogénre 6.7, a neonra 1.8, az argonra 19.4 illetve a xenonra 84.3-nak adódtak 10⁻¹⁹ cm²/W egységben. Eredményeinket összehasonlítottuk korábbi közlemények adataival, melyek mérési hibán belül jól megegyeznek.

Módszerünk előnye, hogy nincs szükség a nyaláb fókuszálásra, így más kísérletekkel párhuzamosan *in situ* mérésenként is alkalmazható. Véleményünk szerint ez az eljárás hasznos lehet a legtöbb nemlineáris optikai jelenség vizsgálatánál.

3. Plazmonikus struktúrák előállítása femtoszekundumos lézerrel

3.1. Nanoobjektum-mátrixok előállítása pásztázó femtoszekundumos lézernyaláb litográfiával [4]

A felületi plazmon polaritonok gerjesztése során az elektromos tér nagymértékű erősödése figyelhető meg fémdielektrikum határfelületen. A szakirodalom sokféle plazmon-rezonancia spektroszkópiai módszert ír le, melyek a rezonancia karakterisztika változását követik a gerjesztő fény hullámhosszának, beesési szögének és polarizációjának függvényében. A bioszenzorként használni kívánt fémfelületeket különböző módszerekkel kezelni kell, hogy a biológiai minták megtapadjanak. A fémfelület szerkezetét változtatva a felületi plazmon rezonancia-karakterisztikája is változik, mely új típusú és érzékenyebb bioszenzorok kialakítását teszi lehetővé. Fém nanorészecskék jelenléte lokalizált felületi plazmonrezonanciát eredményez, ami kis félérték-szélességű spektrumvonalakat és nagy közel-térbeli növekményt jelent, mely természetesen függ a részecskék összetételétől, alakjától és méretétől. Ez a jelenség a detektálás adott hullámhossz-tartománybeli érzékenységének növelésére használható fel.

Kétnyaláb-interferencia módszerével mintáink felületén rács-struktúrát hoztunk létre. A rácsok felületére peptidet és biotinilált peptidet vittünk fel, a cél a nagy adhéziójú rácsvölgyek egyenletes feltöltése volt kis biomolekulákkal. A biotin erősen kötődik a streptavidinhez, így a különböző mintákon lévő azonos biotin mennyiségnek megfelelő jelöletlen, vagy arany nanorészecskékkel jelölt streptavidin molekula tapad ki. A felületkészítés lépéseiről atomi erő mikroszkópos és felületi plazmon-rezonancia spektroszkópiás mérés készült. Transzfer mátrix módszerrel modelleztük a plazmon-rezonancia görbéket ezen többrétegű rendszerben és numerikus számításokat is végeztünk a közel-térbeli jelenségek tanulmányozására.

Atomi erő mikroszkópiás méréseink azt mutatták, hogy a peptidmolekulák egyenletesen töltötték ki a rácsvölgyeket, míg a streptavidin elszórt vagy tömöttebb szigeteket alkotott a benne lévő arany nanorészecskék méretétől függően. A számolt és mért rezonancia görbék közötti eltérést az arany részecske körüli közel-térbeli elektromágneses tér megerősödése magyarázza. Vizsgálatainkkal kimutattuk, hogy a 10 nm-es aranyrészecskék körül keltett lokalizált plazmonok a biomolekula-detektálás érzékenységét növelhetik, mivel a rács megfelelő orientációja esetében a fény nagy hatásfokkal csatolódik a kolloid részecskék közel-terébe.

3.2. Integrált kolloidgömb litográfia femtoszekundumos lézernyalábokkal [5-8]

Új litográfiai eljárást dolgoztunk ki, mely egyesíti a kolloidgömb litográfia és a lézeres interferencia litográfia előnyeit. A módszerhez kapcsolódóan magyar szabadalmi bejelentést tettünk, majd erre alapozva a nemzetközi szabadalmi bejelentés is megtörtént. A módszer alapvető újítása szerint egy rendezett kolloidgömb monoréteget egy tetszőleges szimmetriájú interferencia-mintázattal világítunk ki az interferenciamaximumok és előre kiválasztott kolloidgömb-sorok megfelelő szinkronizálásával. A kolloidgömb monoréteg kristályszerkezete szorosan illeszkedő hatszöges, a legegyszerűbb esetben ezt világítjuk ki két interferáló nyaláb által létrehozott lineáris periodikus mintázattal. A lineáris interferenciamintázattal való kivilágítás előnye a homogén megvilágítással szemben, hogy az előbbivel a monorétegre jellemző hatszöges szimmetriától eltérő, jellemzően négyszöges szimmetriájú mintázat hozható létre a felületen. Az interferenciamintázat és a kolloidgömbök megfelelő megválasztásával és szinkronizálásával a komplex mintázatban megjelenő karakterisztikus méretek és távolságok tetszőlegesen hangolhatóak. A mintázat egy lépésben, nagy felületen és alacsony költséggel állítható elő.

Ezüst és arany kolloidgömbökből álló monorétegek lineáris interferenciamintázattal való kivilágítását vizsgáltuk cirkuláris polarizáció esetében. A keletkező közel-térbeli intenzitáseloszlást vizsgálva a gömb-hordozó határfelületén megmutattuk, hogy a keletkező nanogyűrűk és holdak jellemző méretei a hullámhosszal, gömbmérettel és a gömb anyagával együttesen befolyásolhatóak. A közel-térbeli intenzitást a Fröhlich-feltétel teljesülése esetében erősen befolyásolja a kolloidgömb anyaga. A nem körszimmetrikus objektumok kristálytani irányhoz viszonyított orientációja függ a kivilágítás irányától, ami a beesési szöggel, a beesési sík döntésével, a hullámhosszal és a gömbmérettel befolyásolható.

Arany kolloidgömb monorétegeket kivilágítva két lineárisan poláros fény-nyaláb interferenciamintázatával megmutattuk, hogy a polarizáció által determinált szubstruktúra dominanciájától függően négy geometriai paraméter hangolható egymástól függetlenül. Megmutattuk, hogy polarizált fényt alkalmazva az integrált litográfiai módszer komplex mintázatok létrehozását teszi lehetővé. A létrehozott lyukmintázat jelentősen befolyásolja a megmunkált anyag transzmissziós, reflexiós és abszorpciós spektrumát. A mintázat segítségével hangolható, a polarizációra érzékeny spektrális szűrők állíthatóak elő tervezetten.

Az 500, 250 és 100 nm átmérőjű szilika kolloidgömb monorétegek esetében a 400 és 532 nm hullámhosszú, cirkuláris és lineárisan poláros fényvel, homogén nyalábbal és interferenciamintázattal való kivilágítást tanulmányoztuk. Az arany vékonyfilmek és az erre helyezett gömbök határfelületén készített közel-térbeli metszetek alapján megállapítottuk, hogy a keletkezett elliptikus objektumok elhelyezkedése, megnyúlásának mértéke és iránya szorosan függ a kivilágító fény hullámhosszától, a kolloidgömb átmérőjétől és

a fény polarizációjától. Ez az érzékenység a mintázaton belül a nano-objektumok paramétereinek hangolását elősegíti, ami egyedi plazmonikus anyagok gyártását is lehetővé teszi.

4. Új lézeres fényforrások kutatása és fejlesztése

4.1 Femtoszekundumos impulzusok a VIS-UV tartományban [9]

A látható tartományba eső, nagyteljesítményű ultrarövid impulzusú fényforrásoknak fontos alkalmazásai vannak a mikromegmunkálás, a nemlineáris optika és a molekuláris rendszerek ultragyors folyamatainak vizsgálata területén. Ehhez kívánatos a jelenleg létező technikák által szolgáltatott impulzus energiák növelése. A pályázat jónéhány feladatának végrehajtásához látható tartományba eső femtoszekundumos impulzusok szükségesek. Mindezekon túl a több petawattos erősítők időbeli kontrasztjának ultranagynak kell lenni ahhoz, hogy a céltárgy ne roncsolódjon a főimpulzus megérkezése előtt. Az elterjedt kontraszt javító sémák konstans, kb. 4 nagyságrendes javulást eredményeznek. Egy kevésbé kidolgozott technika frekvencia konverzió alkalmazása, melynél a kimenet kontrasztja a bemenet kontrasztjának hatványfüggvénye, s ezért 4 nagyságrendnél jóval nagyobb lehet a javulás.

Mi egy olyan új ultrarövid impulzusokra alkalmazható frekvencia konverziós sémát vizsgáltunk, amely mind a látható tartományba eső impulzusenergiák felskálázását, mind ultranagy időbeli kontraszt elérését lehetővé teszi. Sémánkban egy terawattos erősítő szélessávú 800 nm-es impulzusait konvertáltuk a zöld tartományba két frekvencia konverziós fokozatban az ún. akromatikus fázisillesztés és a csörpölt csoportsebesség-illesztés technikák segítségével. Az első fokozatot, amely egy csörpölt impulzusú optikai parametrikus erősítő (OPCPA), 200 mJ kvázi-monokromatikus 532 nm-es impulzusokkal pumpáltuk. Az OPCPA-ba injektált szélessávú, 2.7 mJ energiájú 800 nm-es impulzusok felerősödése során 0.7mJ-os 1600nm-es impulzusokat keltettünk 25%-os hatásfokkal. A második fokozatban a 800 nm-es és az 1600nm-es impulzusok összefrekvenciáját keltettük 11%-os hatásfokkal. A modellszámolásokkal összhangban az 530nm-en keltett impulzusok energiája meghaladta a 0.2mJ-t, a sávszélesség pedig a 12 nm-t. A keltett impulzusok hosszát egy rácsos kompresszorral 150 fs-ra sikerült csökkenteni, amely a Fourier korlát négyszerese. A magasabb rendű csörp kompenzálásával további rövidülés várható. A keltett nyaláb szögdiszperziója és térbeli csörpje egyszerűen kompenzálható volt.

4.2 A vivő-hordozó hullám fázis izo-diszperzív változtatása [10]

A csörpölt impulzus erősítésen alapuló rendszerek egyik legalapvetőbb problémája az impulzusok spektrális fázistorzulásának minél teljesebb mértékű kompenzálása, és ezzel az impulzusok precíz időbeli összenyomásával kapcsolatos. Néhány ciklusú nagyintenzitású impulzusok esetén a hordozó-burkoló fázis (Carrier-Envelope Phase, CEP) stabilizálásának is rendkívül jelentős szerepe van. Ezeket a feladatokat, az impulzusok diszperziójának (elő)kompenzálását egészen a negyedik rendig, valamint a CEP csúszásának stabilizálását egy programozható akusztó-optikai diszperzió szűrő képes ellátni. Használata azonban korlátozott 100 MW/cm²-es intenzitásig, így nem használható az erősítőrendszer végső szakaszaiban. Erre egy megoldásként vékony optikai ékek használatát javasoljuk, melyek úgy terveztünk, hogy egyenként csupán egy diszperziós együtthatót hangoljanak, a többit (a CEP csúszást is beleértve) gyakorlatilag változatlanul hagyják. A nulladik (CEP), első (csoportkésés vagy Group Delay, GD) és második (csoportkésés-diszperzió vagy Group Delay Dispersion, GDD) rendű diszperzió a többitől független hangolását ékpárok alkalmazásával mutatjuk be, a harmadrendű diszperzióé (Third Order Dispersion, TOD) pedig egy ék-triplett felhasználásával.

A kísérleteteket spektrálisan bontott interferometria (Spectrally Resolved Interferometry, SRI) alkalmazásával bonyolítottuk le. Egy Michelson-interferométert egy Ti:zafir oszcillátor 100 nm sávszélességű impulzusaival világítottunk ki. A mintakarba helyeztük el az éppen vizsgált ék-összeállítást, melynek oldalaira a nyaláb közel Brewster-szögben érkezett. A kívánt diszperziós együttható hangolásához az ék-összeállítást a nyalábra merőleges irányban egy programozható eltoló segítségével mozgattuk. Az interferométer kimenetén az impulzusok között létrejövő interferencia-mintázatot spektrográf segítségével spektrálisan bontottuk és rögzítettük az eltoló különböző pozícióiban. Két ékpárt és egy ék-triplettet vizsgáltunk. Az első pár N-PK51 és Lithosil-Q1E193 típusú üvegekből készült és alkalmas a CEP csúszás 1.66 rad/mm vagy a csoportkésés 8.37 fs/mm mértékű hangolására. A két működési helyzet között a két ék által bezárt szög állításával lehet váltani. A második ékpár a csoportkésés-diszperzió hangolására használható, és N-SSK2 valamint N-LaK7 anyagú üvegekből áll. Ezzel az ékpárral a GDD-n 3.6 fs²-et állíthatunk mm-enként. Az ék-triplett N-LaK7, N-LaSF46 és NSF57 üvegű ékekből áll össze, és a harmadrendű diszperzió 130 fs³/mm nagyságú hangolását végezhetjük el vele. Minden ék összeállítás csak a kívánt diszperziós együtthatót változtatta meg, a többi spektrális fázisderiváltat gyakorlatilag konstans értéken tartotta. A szögdiszperzió mérését is elvégeztük valamennyi ék-összeállításra és minden esetben a 0.2 μ rad/nm-es méréshatár alatti értéket kaptunk.

Méréseinkkel kísérletileg bizonyítottuk, hogy a CEP-csúszás és a diszperziós együtthatók független változtatására ék-kombinációk is alkalmasak. Mivel a veszteség elhanyagolható és a sérülési küszöb is igen magas, úgy véljük, hogy az ilyen speciálisan tervezett ék-összeállítások kiválóan alkalmasak a CEP-csúszás és diszperzió kompresszor előtti hangolásra bármely néhány ciklusú impulzusokat előállító laborban, de akár az olyan nagyintenzitású rendszerek esetén is, mint a Petawatt Field Syntheser (PFS) vagy az Extreme Light Infrastructure (ELI).

5. Diagnosztikai eljárások kutatása

5.1 Spektrálisan és térben bontott interferometria [11-13]

Kutatásaink során jelentős hangsúlyt fektettünk az ultrarövid lézerpulzusok lineáris módszerekkel történő diagnosztikájának fejlesztésére. A lineáris módszerekkel szemben az önreferenciás módszerek szinte kizárólag jelentősebb impulzusenergiát igénylő nemlineáris folyamatokon alapulnak, így abszolút mennyiségek meghatározására alkalmasak ugyan, de mérési pontosságuk elmarad a lineáris módszerekkel szemben.

A spektrális interferometriai módszer alkalmas optikai elem(ek)en áthaladt lézerpulzusok idő- és térbeli alakjának meghatározására is [11]. A spektrális interferogram Fourier-transzformáción alapuló kiértékelésével meghatározható az optikai elem spektrális fázisa. Megmérve a tárgykarból érkező impulzus spektrumát is, és a két függvényen alkalmazva egy inverz Fourier-transzformációt, kapunk egy időbeli jelalakot. Ez az alak megegyezik az optikai elemen áthaladt impulzus időbeli alakjával, ha az interferométerbe egy transzformlimitált impulzus lépett be.

Ha a tér több pontjában szeretnénk meghatározni az impulzus időbeli alakját, akkor a Fourier-transzformáció többszörös alkalmazása jelentősen megnöveli a kiértékelés idejét. Kidolgoztunk egy új, szintén a Fourier-transzformáción alapuló eljárást, mely lényegesen gyorsabban szolgáltatja az impulzus idő- és térbeli alakját.

Bár a lézerpulzusoknak a lencsék fókuszpontja környezetében, a lencsehibák miatt bekövetkező idő- és térbeli alaktorzulásaival számos elméleti témájú cikk foglalkozik, kísérleti eredmény a téma fontossága ellenére relative kevés található az irodalomban. A fent említett új kiértékelési eljárásunkat alkalmazva, optikai lencséken való áthaladáskor fellépő aberrációk (szférikus aberráció, kóma, asztigmatia) okozta impulzusfront torzulásokat vizsgáltunk kísérletileg [12]. A mért és az elméletből számolt alakok között jó egyezést kaptunk

A [13] áttekintő publikációban összefoglaljuk a lineáris, interferencián alapuló impulzusdiagnosztikai módszerek előnyeit és korlátait. A közleményben szó esik a spektrálisan bontott interferometriáról, illetve a spektrálisan és térben bontott interferometriáról, valamint az ezzel kapcsolatos algoritmusokról, amellyel a femtoszekundumos impulzusok anyagi diszperziójának változása mérhető nagy pontossággal. Ezt követően bemutatjuk a vívő-burkoló fázis csúszásának mérésére alkalmas többnyalábos rezonáns ring interferométert, amellyel átléphetők az általánosan elterjedt, ún. f -to- $2f$ módszer által emelt a sáv szélességre vonatkozó korlátok, illetve nehézségek. Ezen túlmenően ismertetjük a szögdiszperzió mérésére használható egy- illetve kétdimenziós diagnosztikai módszereket is. Minden módszer esetén hivatkozással ellátott példát hozunk a mérésre és megadjuk annak detektálási pontosságát.

5.2 Magasabb rendű diszperzió mérése [14-15]

A fázismodulált-impulzus erősítésen alapuló ún. CPA lézerrendszerekben keltett impulzusok tér- és időbeli alakjának torzulása alapvetően befolyásolja a céltárgyon elérhető legnagyobb intenzitás elérését. Az időbeli alakot meghatározó spektrális fázis megfelelő kialakítására és kompenzálására az akusztó-optikai programozható diszperziós szűrők, angol rövidítéssel *AOPDF* típusú eszközök bizonyultak az egyik legjobban használhatónak, amelyek a fény és kristályban terjedő, megfelelően alakított akusztikus hullámok közti lineáris kölcsönhatáson alapulnak. A 100 MHz nagyságrendbe eső frekvenciájú hanghullámot rádiófrekvenciás generátor állítja elő, amely így lehetőséget ad a diszperziós együtthatók széles tartományon belüli tetszőleges beállítására, amikkel közvetve az impulzus térbeli és időbeli lefutása is alakítható. Annak ellenére, hogy az *AOPDF*-ek használata széles körben elterjedt, – egy konferencia-anyagtól eltekintve – nem áll rendelkezésre olyan átfogó tanulmány, amely az eszköz által bevezetett diszperzió pontosságát, valamint az esetleges mellékeffektusokat vizsgálja. Mivel az *AOPDF*-ekben található kristály elő- és hátlapja szöveget zár be, felmerülhet annak gyanúja, hogy a nyaláb szögdiszperzióssá válhat; sőt, a kölcsönhatás során előfordulhat az is, hogy a nyaláb szögdiszperziója a rádiófrekvenciás jel fázistulajdonságaitól függ.

Az invertált Mach-Zehnder interferométerre épülő SSRI módszer alkalmazásával egy *AOPDF* eszköz anyagi- és szögdiszperziójának szisztematikus mérését végeztük el egy CPA rendszer különböző fokozataiból kicsatolt nyalábokkal. A nyaláb vízszintes és függőleges irányú metszeteinek vizsgálatához mechanikus nyalábforgatót használtunk. Az eszközön áthaladó impulzusok spektrális fázisának vizsgálata alapján megállapítottuk, hogy a különböző nagyságrendű magasabb rendű diszperziós értékek a készüléken beállított és

az általunk mért értéke mérési hibán belül azonosak. Ugyanakkor a szögdiszperzió és szögeltérítés mértékét két különböző eljárás alkalmazásával megvizsgálva megállapíthattuk, hogy a szögdiszperzió függ az AOPDF kristály beállításától valamint a kristály üzemi hőmérsékletétől, de ennek mértéke azonban a kísérletek többségében elhanyagolható.

5.3 A teljes szögdiszperzió mérése a nyaláb keresztmetszete mentén [16-17]

Az ultrarövid lézermimpulzusok szögdiszperziójának – azaz a terjedési irány hullámhossz szerinti függésének – döntő szerepe van abban, hogy a lézernyaláb erősítését valamint térbeli és időbeli koncentrációját milyen hatásokkal tudjuk végrehajtani. A csörpölt impulzusok erősítésén (CPA) alapuló módszerrel erősített impulzusok nyújtására és összenyomására legelterjedtebben olyan prizma- vagy rácspárokat alkalmaznak, amelyek egyenként jelentős szögdiszperziót visznek a rendszerbe; de precízen, egymással ellentétes állásban elhelyezve ezeket az elemeket a szögdiszperzió kompenzálható. A teljes kioltáshoz a rácok vagy prizmák pontos beállítása szükséges, amit a szögdiszperzió nagy pontosságú mérésével lehet kivitelezni. Erre a mérésre létezik néhány megoldás, azonban mindegyik csupán egy dimenzióban képes mérni, így a szögdiszperzió teljes karakterizálásához a nyaláb vagy a mérőeszközök forgatására van szükség, körülményessé téve ezzel az erősítőrendszer egységeinek beállítását.

A projekt keretén belül egy olyan eljárást dolgoztunk ki és szabadalmaztattunk, amellyel egy felvétel készítésével két dimenzióban meghatározható a lézernyaláb szögdiszperziója. A módszer egy spektrális szűrőn (pl. Fabry-Perot etalon, színszűrők, interferenciaszűrők, stb.) át transzmittált komponensek Fourier-síkba történő leképzésén alapszik. Ha a spektrális szűrő megfelelő pontossággal kalibrált, ismert hullámhosszkomponensek fókuszfoltjainak a detektor felületén mért távolságából és orientációjából egyértelműen következtethetünk a szögdiszperzió nagyságára és irányára. A mérés korlátait numerikus és kísérleti módon ellenőriztük, valamint annak előnyeit egy rácós impulzuskompresszor beállításával demonstráltuk.

V.4 A vivő-burkoló fázis –csúszás mérése [18-21]

A lézer oszcillátorok módusainak optikai frekvenciái egy „fésűt” alkotnak. A fésűfogak távolsága az ismétlési frekvencia, a fésű abszolút helyzete pedig az impulzusról impulzusra történő fáziscsúszásból számítható. Ebből következik, hogy a lézer oszcillátorok fénye a pontosan ismert optikai frekvenciák miatt alkalmazható bizonyos precíziós spektroszkópiai kísérletekben. Az eddig kifejlesztett vivőhullám-burkoló-fáziscsúszás mérési eljárásoknál igen nagy szerepe van a titán-zafir lézerek kiváló tulajdonságainak: oktávnyi sávzélességű spektrum is elérhető, és az impulzusok jelentős csúcs-intenzitása könnyen működtethet nemlineáris optikai folyamatokat. Sajnos így csak a látható és közeli infravörös tartományban lehet ismert frekvenciájú fényt előállítani. Más hullámhosszakhoz szükség van egy olyan megoldásra, amely kizárólag lineáris optikára épül.

A pályázat keretein belül két megoldást dolgoztunk ki. Az egyik egy soksugaras interferométer és egy kétsugaras, spektrálisan bontott interferométer alkalmazásán alapul. A spektrálisan és térben bontott interferogramokon (kétsugaras interferométer) az interferenciacsíkok térbeli helyzete egyértelműen (modulo 2π) függ a vivő-burkoló-hullám fázis értékétől. A kis mértékben elhangolt soksugaras interferométerben az egymást követő impulzusok spektrálisan interferálnak, ami a térbeli interferencia csíkok láthatóságát rontja. A láthatóság méréséből a CEP csúszás értékét ki lehet számolni [18].

A fenti eljárás egy gyorsabb mérést lehetővé tevő, egyszerűsített variánsa, ha a soksugaras interferométer kimenetén az egymást követő fényimpulzusok spektrális interferenciáját értékeljük ki. A módszer gyakorlatilag bármilyen hullámhossz-tartományon használható, melyre spektrográfot lehet készíteni. A pontos méréshez szükséges a rezonátorkör hosszának nagy pontosságú, aktív stabilizálása is, melyet egy frekvenciastabilizált HeNe lézer segítségével oldottunk meg. Ezt a módszert sikeresen keresztkalibráltuk az egyik elterjedt, sztereometrikus mérési módszerrel, az ún. f-to-2f interferométerrel [19].

A vivő-burkoló fázis fogalmát legtöbbször az ultrarövid, mindössze néhány periódusból álló lézermimpulzusoknál használjuk. Magas harmonikusok keltésekor igen fontos, hogy az elektromos tér és az intenzitás (burkoló görbe) csúcsa egybeessen. Szinte nem is feltételeznénk, hogy 100 fs-nál hosszabb impulzusoknál, amikor az impulzushossz nagyságrendekkel hosszabb egy periódusnál, a vivő-burkoló fázisnak bármiféle szerepe is lehet.

A fentiekben bemutatott lineáris CEP-csúszás mérési módszer egyik nagy próbatétele volt, amikor a párizsi Laboratoire de l'Accélérateur Linéaire egyik kutatócsoportjával együttműködve 2 pikoszekundum hosszúságú lézermimpulzusok fáziscsúszását mértük meg. A kutatócsoport célja nagy intenzitású gamma-sugárzás keltése volt Compton-effektus segítségével, melyhez a fotonokat egy titán-zafir lézer adta. A fényintenzitás fokozásához egy nagy jóságú tényezőjű Fabry-Perot rezonátort használtak, mellyel akár 28000-szoros intenzitásnövekedést lehetett elérni. A méréseink során –a világon először – megmértük egy pikoszekundumos impulzussorozat vivő-burkoló-hullám fáziscsúszását, és annak a hatását a passzív rezonátoros impulzuserősítésre [20].

A kereszt-polarizált elektromágneses hullámok keltése (cross-polarized waves, XPW) egy négyhullám-keverésen alapuló erősen nemlineáris optikai folyamat. Ennek során a belépő, lineárisan polarizált lézertérrel azonos frekvenciájú, ám arra merőleges polarizációjú fény keletkezik. A folyamat erős nemlinearitása miatt a lézernyalámban meglévő esetleges elő- és utóimpulzusokat, valamint az erősített spontán emissziót kiszűri, azaz végeredményben az impulzus időbeli kontrasztját nagy mértékben megnöveli. Ezen tulajdonság miatt az XPW-n alapuló kontraszt növelést a legutóbbi időben nagy intenzitású kommerciális lézerekben is alkalmazni kezdték.

Az ultrarövid lézerimpulzusok alkalmazásakor kulcsfontosságú kérdés az impulzus vivőhullám-burkoló fázis (carrier-envelope phase, CEP) értéke illetve stabilitása. Az XPW akkor válhat a modern lézerrendszerek stabil alkotóelemévé, ha az XPW a lézer CEP-jét nem befolyásolja, jobban mondva megőrzi.

Az XPW folyamat CEP stabilitását a jelen OTKA pályázat keretén belül kifejlesztett lineáris CEP mérési eljárás egy variációjával a végeztük el. Egy CEP-stabilizált kHz ismétlési frekvenciájú lézerrendszer impulzusaival – megfelelő gyengítés után – CaF₂ kristályban XPW nyalábot 10% hatásfokkal keltettünk. A keltett XPW és a fundamentális nyaláb maradékát egy polarizációs nyalábosztó kocka segítségével választottuk szét. A fundamentális nyaláb polarizációját két tükörrel forgattuk el, és a két nyalábot egy képképző spektrográf belépő részén egyesítettük. Az két nyaláb úthosszának egyenlővé téve a spektrográf kameráján az un. spektrálisan és térben bontott interferogramokat (SSRI) vettük fel.

A spektrálisan és térben bontott interferogramok esetén az interferencia csíkok térbeli helyzetét a két interferáló nyaláb relatív CEP-je határozza meg. A mérési eljárásunk így azon alapult, hogy különböző expozíciós idővel vettük fel az interferogramokat és értékeltük ki a csíkok pozícióját valamint láthatóságukat. Megállapítottuk, hogy 1000 egymást követő lövés esetén sem változik a csíkok helyzete illetve a láthatóságuk, azaz a relatív CEP nem változik. A relatív CEP csak az XPW folyamat kapcsán változhatna, azaz, ennek elmaradása azt jelzi, hogy az XPW folyamat megtartja a fundamentális lézerimpulzus vivőhullám-burkoló fázisát. A teljesség kedvéért egy további kontroll kísérletet is végeztünk. Ehhez a fent említett elrendezést úgy módosítottuk, hogy az XPW nyaláb CEP-jét egy kvarc ékpár egyik tagjának mozgatásával mesterségesen moduláltuk. A mért CEP változás mértéke teljes egészében megfelelt az ék mozgatásából várható változásnak, azaz az XPW folyamat semmilyen további változást nem okozott [21]

A K 75149 OTKA kutatás támogatásával létrejött referált folyóiratbeli közlemények, referált konferencia proceedings-ek és szabadalmak jegyzéke.

(A teljes publikációs jegyzék, mely a konferencia prezentációkat és egyéb közleményeket is tartalmaz, az OTKA záróbeszámoló honlapján érhető el.)

1. Z. Heiner, K. Osvay
Refractive index of dark-adapted bacteriorhodopsin and tris(hydroxymethyl)aminomethane buffer between 390 and 880 nm
Applied Optics **48** (2009) 4610-4615
2. L. Fábrián, Z. Heiner, M. Mero, M. Kiss, E.K. Wolff, P. Ormos, **K. Osvay**, A. Dér
Protein-based ultrafast photonic switching
Optics Express **19** (2011) 18861-18870
3. Á. Börzsönyi, Z. Heiner, A.P. Kovács, M.P. Kalashnikov, K. Osvay
Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases
Optics Express **18** (2010) 25847-25854
4. Á. Sipos, H. Tóháti, A. Mathesz, A. Szalai, Sz. Veszélka, M. A. Deli, L. Fülöp, A. Kőházi-Kis, M. Csete, Zs. Bor
Effect of nanogold particles on coupled plasmon resonance on biomolecule covered prepatterned multilayers
Sensor Letters **8** (2010) 512-520
5. Csete Maria, Sipos Aron, Szalai Aniko
Komplex mikrostruktúrák készítésére szolgáló új litográfiai eljárás a spektrummodosítás lehetőségével,
Magyar Szabadalmi Bejelentés, P1100461, 2011.08.23.
6. Mária Csete, Áron Sipos, Anikó Szalai, Gábor Szabó
Theoretical study on interferometric illumination of gold colloid sphere monolayers to produce complex structures for spectral engineering
IEEE Photonics Journal **4** (2012), 1909-1921
7. Csete Mária, Sipos Áron, Szalai Anikó
Novel lithographic method with the capability of spectrum engineering to create complex microstructures
Nemzetközi szabadalmi bejelentés, WO 2013027075, 2013. február
8. Áron Sipos, Anikó Szalai, Mária Csete
Integrated lithography to prepare periodic arrays of nano-objects
Applied Surface Science **278** (2013) 330-335

9. M. Merő, Á. Sáros, G. Kurdi, K. Osvay
Generation of Energetic Femtosecond Green Pulses Based on an OPCPA - SFG scheme
Opt.Express **19** (2011) 9646-9655
10. C. Grebing, M.Görbe, K. Osvay, G.Steinmeyer
Isochronic and isodispersive carrier-envelope phase-shift compensators
Appl.Phys. B **97** (2009) 575-581
11. K. Mecseki, A. P. Kovács
Monitoring of residual higher-order dispersion of pulse compression by spectral interferometry
AIP Conference Proceedings **1228** (2010) 251
12. K. Mecseki, A. P. Kovács, Z. L. Horváth
Measurement of pulse front distortion caused by aberrations using spectral interferometry
AIP Conference Proceedings **1228** (2010) 190
13. A. Borzsonyi, A.P. Kovacs, **K. Osvay**
What We Can Learn about Ultrashort Pulses by Linear Optical Methods
Appl. Sci. **3** (2013) 515-544 (review)
14. Á. Börzsönyi, A. P. Kovács, M. P. Kalashnikov, M. Mero, K. Osvay
Measurement of the spectral phase shift and the residual angular dispersion of an AOPDF
AIP Conference Proceedings **1228** (2010) 138
15. K. Osvay, M.Mero, Á. Börzsönyi, A. P. Kovács, M. P. Kalashnikov
Spectral phase shift and residual angular dispersion of an acousto-optic programmable dispersive filter
Appl.Phys. B **107** (2012) 125-130
16. Börzsönyi Á., Mangin-Thro L., Osvay K.,
Eljárás és berendezés fénynyaláb szögdiszperziójának mérésére, valamint ezek alkalmazása optikai elem tesztelésére
Magyar Szabadalmi Bejelentés, P1100626, 2011.11.14.
17. A.Borzsonyi, L. Mangin-Thro, G. Cheriaux, **K. Osvay**
Two-dimensional single shot measurement of angular dispersion for compressor alignment
Optics Lett. **38** (2013) 410-12
18. M.Görbe, C. Grebing, G.Steinmeyer, K. Osvay
A linear optical method for measuring the carrier-envelope phase drift
Appl.Phys. B **95** (2009) 273-280
19. P. Jojart, A. Börzsönyi, B. Borchers, G. Steinmeyer, K. Osvay
Agile linear interferometric method for carrier-envelope phase drift measurement
Optics Letters **37** (2012) 836-838
20. A. Borzsonyi, R. Chiche, E. Cormier, R. Flaminio, P. Jojart, C. Michel, K. Osvay, L. Pinard, V. Soskov, A. Variola, F. Zomer,
On the role of the Carrier Envelop Phase of picosecond frequency combs with ultrahigh finesse Fabry-Perot Cavities
Applied Optics, **53** (2013) accepted
21. K.Osvay, L.Canova, C.Durfee, A.P.Kovács, Á.Börzsönyi, O.Albert, R. Lopez Martens
Preservation of the carrier envelope phase during cross-polarized wave generation
Opt.Exp. **17** (2009) 22358-22365