



1. DO CZEGO POTRZEBNE SĄ LASERY FEMTOSEKUNDOWE?

Nagroda Nobla w 1999 dla Ahmeda Zewaila w dziedzinie chemii jest uhonorowaniem 30 letniego okresu badań ultraszybkich procesów badanych metodami spektroskopii laserowej. Rozwój technologii laserowych pozwolił wygenerować ultrakrótkie impulsy pikosekundowe (10^{-12} s) i femtosekundowe (10^{-15} s), czyli trwające zaledwie niewyobrażalnie mały ułamek sekundy, otwierając nowe możliwości badawcze metodami spektroskopii laserowej rozdzielczej w czasie. Można zapytać dlaczego badanie ultraszybkich procesów fizycznych i chemicznych jest takie ważne, skoro praktyczne efekty ich zachodzenia obserwowane w skali makroskopowej wydają się być statyczne? Gdy patrzymy na gładką i spokojną powierzchnię wody w szklance lub wina w kieliszku nie podejrzewamy, że wewnątrz trwa wieczny ruch, a atomy z których składają się cząsteczki wody drgają nieustannie w skali femtosekund oraz ma miejsce nieustanne zrywanie i powstawanie wiązań wodorowych, przekazywanie energii oraz inne niezwykle szybkie procesy fizyczne i chemiczne. Pijąc wodę lub wino nie zastanawiamy się nad tym i prawdę mówiąc, w tym momencie nie ma to dla nas większego znaczenia. Może najwyżej zastanawiamy się dlaczego wino jest czerwone i dlaczego nasze reakcje są inne po wypiciu obu tych cieczy. I tu dochodzimy do sedna sprawy. Własności materiałów, obecnych w naszym życiu, od materiałów ubraniowych, przez masy plastyczne, farby, ekrany video, olej, benzynę, leki oraz wiele procesów (np. mechanizmy powodujące zdolność widzenia) są zdeterminowane przez ultraszybkie procesy zachodzące na poziomie molekularnym. Przebieg reakcji chemicznych, których wynikiem jest tak powszechnie używany proszek, barwnik, mydło, margaryna zależy od elementarnych procesów tworzenia i zrywania wiązań chemicznych zachodzących w skali czasowej femtosekund i skali przestrzennej rzędu angstermów (10^{-8} m). Dlatego zrozumienie ultraszybkich procesów jest kluczowym etapem, od którego zależy będzie wyprodukowanie doskonalszego materiału czy leku. Aby jednak śledzić ultraszybkie procesy, należy znaleźć metodę ich monitorowania. Nie uczyni tego żadna najszybsza kamera video, ale może sprawić to laser, który wysyła bardzo krótkie impulsy. Badania spektroskopowe ultraszybkich reakcji chemicznych polegają zazwyczaj na stosowaniu dwóch wiązek laserowych, choć bardziej wyrafinowane metody stosują ich więcej. Pierwszy impuls pompujący inicjuje w próbce proces chemiczny przez wzbudzenie cząsteczek do odpowiedniego poziomu elektronowego, wibracyjnego lub stanu w którym cząsteczka dysocjuje (czyli wiązanie chemiczne ulega rozerwaniu). Drugi impuls – sondujący, opóźniony w stosunku do pierwszego o kilkanaście lub kilkadziesiąt femtosekund (czyli impuls, który przeszedł trochę dłuższą drogę zanim napotkał

próbce) monitoruje zmiany obsadzenia stanów energetycznych reagentów, produktów przejściowych lub substratów.

Niektóre dziedziny badań, takich jak śledzenie dynamiki stanu przejściowego zachodzącej w czasach femtosekundowych, jeszcze do niedawna w obszarze teoretycznych spekulacji, są spektakularnym przykładem zastosowań spektroskopii laserowej. Lasery femtosekundowe pozwalają śledzić krok po kroku przebieg reakcji i jej najdrobniejsze szczegóły z dokładnością wyrażoną w femtosekundach. Powstała nowa dziedzina badań, zwana femtochemią. Ziściły się marzenia o eksperymentalnej weryfikacji teoretycznych modeli Arrheniusa i teorii stanu przejściowego Eyringa. Badania w tej dziedzinie rozpoczęto od najbardziej elementarnych reakcji, jakimi jest zrywanie wiązań w dwuatomowych cząsteczkach. Przykładem badania dynamiki dysocjacji takich prostych cząsteczek, na przykład jodku sodu są wspaniałe prace prowadzone w laboratorium profesora Zewaila, amerykańskiego obywatela pochodzenia egipskiego, który w 1999 roku otrzymał nagrodę Nobla w dziedzinie chemii.

Kiedy naukowa nagroda Nobla przywędruje do Polski? Chyba nieprędko. Pierwsze lasery femtosekundowe, takie same na których pracował Noblista 1999 w dziedzinie chemii, dotarły do Polski w 1997 roku, tylko trzy lata wcześniej niż pierwszy femtosekundowy laser zainstalowany na kontynencie afrykańskim. W Polsce są 3-4 femtosekundowe układy laserowe, a uszczęśliwione jednostki borykają się z trudnościami utrzymania aparatury. Dla porównania, w Niemczech liczba laserów femtosekundowych i układów laserowych jest kilkadziesiąt razy wyższa.

2. PERSPEKTYWY BADAŃ NAUKOWYCH ZA POMOCĄ LASERÓW FEMTOSEKUNDOWYCH



Promieniowanie emitowane przez konwencjonalne źródła światła, jak żarówki, lampy błyskowe itd., nie jest monochromatyczne ani spójne w czasie i przestrzeni. Natężenie pola elektrycznego promieniowania emitowanego z konwencjonalnych źródeł światła jest niewielkie ($10\text{-}10^3$ V/cm) i jego oddziaływanie z materią (odbicie, rozpraszanie, absorpcja, załamanie światła) nie

zmienia własności mikroskopowych materii. Jest bowiem kilka rzędów mniejsze niż natężenie pola elektrycznego panującego w materii (rzędu 10^9 V/cm). Natężenie światła laserowego, szczególnie z laserów impulsowych generujących krótkie impulsy, może z łatwością osiągać wartości rzędu 10^{12} W/cm², a odpowiadające mu natężenie pola elektrycznego promieniowania rzędu 10^5 V/cm - 10^8 V/cm są porównywalne z natężeniem pól elektrycznych w materii.

Typowe moce szczytowe współczesnych laserów femtosekundowych są rzędu megawatów (MW), zaś po wzmocnieniu lasery femtosekundowe mogą osiągać moc szczytową rzędu terrawatów (TW). Przykładem takiego układu jest ASTRA znajdująca się w Rutherford Appleton Laboratory, UK, która bazuje na laserze tytanowo-szafirowym i wysyła impulsy femtosekundowe o długości 40 fs, długości fali 800 nm i energii pojedynczego impulsu 500 mJ. Takie układy femtosekundowe są w stanie dostarczyć natężeń rzędu 10^{19} Wcm⁻² i oferują nowe, nieznane dotąd możliwości w badaniu oddziaływania światła z materią. Astra jest obecnie rozbudowywana (projekt Gemini), aby dostarczyć jeszcze wyższych natężeń, rzędu 10^{22} Wcm⁻². Przy natężeniach 10^{22} Wcm⁻² możliwe będą eksperymenty z **przyśpieszaniem elektronów do energii GeV**. Nie jest to mrzonka, bowiem już obecnie pracujące lasery dostarczające natężeń rzędu 10^{20} Wcm⁻² produkują elektrony o energii 200 MeV. Tak więc potężne współczesne akceleratory zostaną w przyszłości zastąpione całkowicie optycznymi układami generującymi elektrony o energii GeV. Może się okazać, że potężne centra badawcze, w rodzaju CERN, zostaną zastąpione przez femtosekundowe centra optyczne do **generowania cząstek elementarnych**. Rzeczywiście, gdy dwie wiązki laserowe o natężeniu 10^{20} Wcm⁻² każda, uderzą z naprzeciwka w bardzo cienką warstwę materiału wytworzą gęstość energii zdolną do wygenerowania elektronów o energii TeV, a te z kolei spowodują powstanie par elektron-pozytron w wyniku oddziaływania z jądrami o dużej liczbie Z, a nawet pionów (gdy uda się wyprodukować protony o odpowiednio wysokiej energii) i neutrino (gdy druga wiązka laserowa przyśpieszy piony).

Gigantyczne pola magnetyczne rzędu gigagaussów generowane w plazmie laserowej stworzą w laboratorium optycznym warunki do badania zjawisk astrofizycznych, bowiem takie pola magnetyczne panują w gwiazdach neutronowych. Już obecne lasery generujące światło o natężeniu 10^{20} Wcm⁻² wytwarzają w plazmie pola magnetyczne rzędu 200 megagaussów.

Procesy jądrowe kontrolowane przez lasery o natężeniu 10^{22} Wcm⁻² uczynią możliwą bezpośrednią syntezę lekkich jonów, włączając reakcję syntezy deuteru i trytu.

Femtosekundowe lasery o natężeniu 10^{22} Wcm⁻² wytworzą wyższe harmoniczne, o czasie **trwania rzędu attosekund**, tysiąc razy krótszych od femtosekund, i pozwolą badać dynamikę elektronów w cząsteczkach (dotychczasowe impulsy femtosekundowe pozwalają badać dynamikę drgań wibracyjnych). Jednocześnie będą źródłem ultra-krótkich **impulsów promieniowania X**.

Ponadto, lasery o natężeniu 10^{22} Wcm⁻² są w stanie wywołać bezpośrednią jonizację atomów z powłoki K. Spowoduje to krótkotrwałą inwersję obsadzeń z fotonami o energii 10 keV, czyli zbudowanie **pierwszych laserów wysoko**

energetycznego promieniowania X. W laserach X będą zachodzić zjawiska optyki nieliniowej, takie jak mieszanie częstości, co spowoduje wygenerowanie jeszcze krótszego [promieniowania. Terapeutyczne wykorzystywanie promieniowania gamma może odejść w zapomnienie, i nuklearna medycyna zacznie korzystać z dobrodziejstw optyki.

3. JAK DZIAŁA LASER FEMTOSEKUNDOWY?

Lasery femtosekundowe są laserami wysyłającymi impulsy światła spójnego trwające kilka-kilkadziesiąt femtosekund. Lasery te pracują w tzw. reżimie synchronizacji modów. Niżej opisano zasadę synchronizacji modów [H.Abramczyk, Wstęp do spektroskopii laserowej, PWN, 2000]

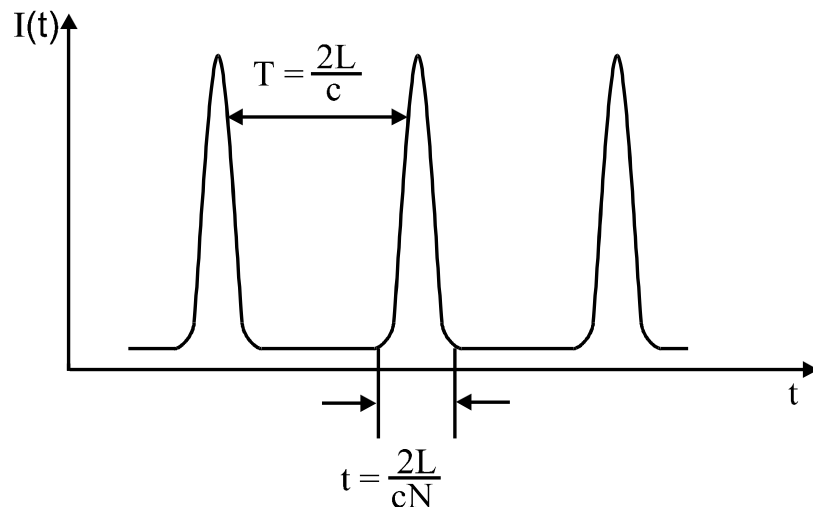
Synchronizacja modów. Metody synchronizacji modów. Synchronizacja aktywna i pasywna

W warunkach generacji swobodnej lasery gazowe, ciekłe i stałe wytwarzają chaotyczną mieszaninę modów poprzecznych i podłużnych z różnicą faz między modami, która zmienia się w czasie. Spójność jest bowiem tylko cechą pojedynczego modu. Jeżeli w jakiś sposób (potem zobaczymy jaki) doprowadzimy do tego, aby różnica faz między sąsiednimi modami była stała, to emisja lasera odbywa się jako ciąg regularnych impulsów wysyłanych w odstępach czasu

$T = \frac{2L}{c}$ z czasem trwania pojedynczego impulsu:

$$t = \frac{T}{N} = \frac{2L}{cN}, \quad (4.1)$$

gdzie N jest liczbą modów generowanych przez rezonator optyczny (rys. 4.1), L - długość rezonatora, c - prędkość światła. Procedura eksperymentalna, którą omówimy później, wymuszająca utrzymanie stałej różnicy faz między modami prowadzi do reżimu pracy zwanego *synchronizacją modów*.



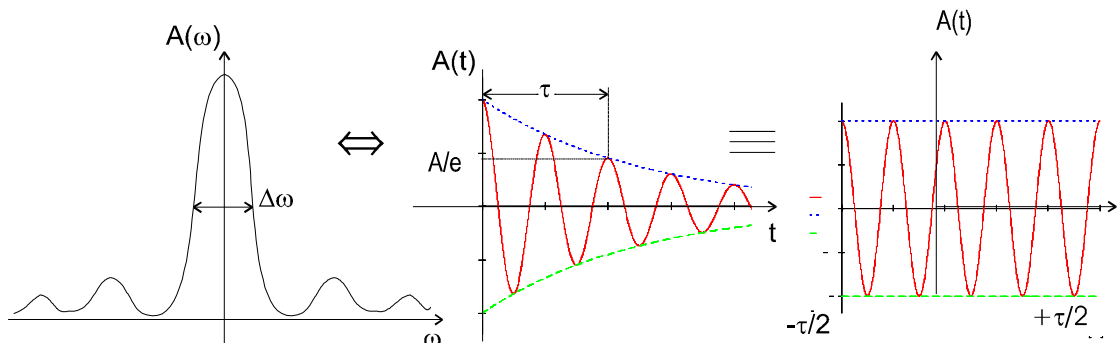
Rys. 4.1. Przebieg czasowy emisji lasera pracującego w reżimie synchronizacji modów.

Pokazaliśmy wcześniej, że liczba modów N zależy od szerokości linii emisji spontanicznej (fluorescencji) $\delta\lambda$:

$$N = \frac{4L\delta\lambda}{\lambda_0^2}. \quad (4.2)$$

Ze wzoru (4.1) i (4.2) wynika, że własności widmowe ośrodka czynnego decydują o czasie trwania impulsu. W barwnikach linie fluorescencyjne $\delta\lambda$ są szerokie, co prowadzi do dużej liczby modów N i dlatego w laserach barwnikowych można generować impulsy pikosekundowe ($1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$). Dla laserów gazowych linia emisji jest wąska i w konsekwencji nie można wygenerować w nich impulsów krótszych niż 10^{-9} s . W laserach stałych pasma fluorescencji są szersze niż w gazach z powodu niejednorodnego poszerzenia. Dlatego w laserach stałych (np. Nd:YAG) można generować impulsy pikosekundowe. Istnieje specjalna klasa laserów na ciele stałym (lasery wibronowe), w których sprzężenie elektronowo-wibronowe powoduje znaczne poszerzenie linii fluorescencyjnych, a w konsekwencji umożliwia wygenerowanie impulsów femtosekundowych ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$). Do takich laserów należy laser tytanowo-szafirowy. Szczegółowe omówienie różnych typów laserów przedstawione będzie w następnym rozdziale.

Pokażemy teraz, że w warunkach synchronizacji modów otrzymujemy ciąg impulsów o okresie repetycji $T = 2L/c$ i czasie trwania pojedynczego impulsu $t = 2L/cN$. Załóżmy dla uproszczenia, że generowane mody są falami płaskimi $E(t) = E_0 e^{i\omega t}$. Oznacza to, że rozkład widmowy pojedynczego modu podłużnego jest opisany deltą Diraca $\delta(\omega - \omega_0)$ o nieskończenie wąskiej szerokości. Zastosujemy to przybliżenie, pamiętając, że z teorii transformacji Fouriera wynika, iż linię widmową o skończonej szerokości $\Delta\omega$ (rys. 4.2a), której odpowiada sygnał tłumiony w nieskończonym interwale czasowym $(0, \infty)$ w domenie czasowej (rys. 4.2b), można zastąpić transformatą sygnału nietłumionego w skończonym interwale czasowym $(-\tau/2, +\tau/2)$ (rys. 4.2c), a więc falą płaską. Wypadkowe pole elektryczne pochodzące od $N = 2n + 1$ modów jest więc określone sumą



Rys. 4.2. Związek między szerokością linii widmowej $\Delta\omega$ w domenie częstości (a) i sygnałem w domenie czasu (b). Sygnał (b) jest równoważny sygnałowi (c). Wyjaśnienie w tekście.

$$E(t) = \sum_{k=-n}^n E_0 \exp\{i[(\omega_0 + k\Delta\omega_q)t + k\Delta\varphi_q]\}, \quad (4.3)$$

gdzie $\Delta\omega_q$ jest różnicą częstości między sąsiednimi modami podłużnymi, $\Delta\varphi_q$ zaś jest różnicą faz między nimi. Skorzystajmy z tożsamości

$$\sum_{k=-n}^n e^{ik\alpha} = 2 \sum_{k=0}^n \cos k\alpha - 1 \quad (4.4)$$

i relacji trygonometrycznej

$$\sum_{k=-n}^n \cos(k\alpha) = \frac{\cos \frac{n\alpha}{2} \sin \frac{\alpha(n+1)}{2}}{\sin \frac{\alpha}{2}}. \quad (4.5)$$

Wstawiając (4.4) i (4.5) do (4.3), otrzymujemy:

$$\begin{aligned} E(t) &= E_0 \exp(i\omega_0 t) \sum_{k=-n}^n \exp[i(k\Delta\omega_q t + k\Delta\varphi_q)] \\ &= E_0 \exp(i\omega_0 t) [2 \sum_{k=0}^n \cos(k\Delta\omega_q t + k\Delta\varphi_q) - 1] \\ &= E_0 \exp(i\omega_0 t) \left[\frac{2 \cos \left(n \frac{\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q}{2} \right) \sin \left[(n+1) \frac{\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q}{2} \right]}{\sin \frac{\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q}{2}} - 1 \right] \end{aligned} \quad (4.6)$$

Podstawmy $\alpha = (\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q)$ do (4.6)

$$\begin{aligned}
E &= E_0 \exp(i\omega_0 t) \left[\frac{2 \cos \frac{n\alpha}{2} \sin \frac{(n+1)\alpha}{2} - \sin \frac{\alpha}{2}}{\sin \frac{\alpha}{2}} \right] \\
&= E_0 \exp(i\omega_0 t) \frac{2 \cos \frac{n\alpha}{2} \left(\sin \frac{n\alpha}{2} \cdot \cos \frac{\alpha}{2} + \cos \frac{n\alpha}{2} \cdot \sin \frac{\alpha}{2} \right) - \sin \frac{\alpha}{2}}{\sin \frac{\alpha}{2}} \\
&= E_0 \exp(i\omega_0 t) \frac{\cos \frac{2n\alpha}{2} \sin \frac{\alpha}{2} + \sin \frac{2n\alpha}{2} \cos \frac{\alpha}{2}}{\sin \frac{\alpha}{2}} \\
&= E_0 \exp(i\omega_0 t) \frac{\sin \left[(2n+1) \frac{\alpha}{2} \right]}{\sin \frac{\alpha}{2}}
\end{aligned} \tag{4.7}$$

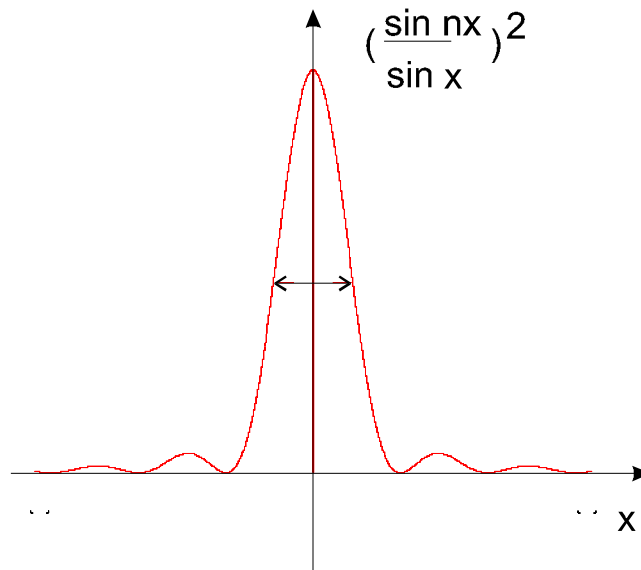
Ponieważ $2n + 1 = N$ jest równe liczbie zsynchronizowanych modów, możemy napisać

$$E = E_0 \exp(i\omega_0 t) \frac{\sin \frac{N(\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q)}{2}}{\sin \frac{(\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q)}{2}} \cdot \tag{4.8}$$

Jeżeli różnica faz między kolejnymi modami podłużnymi $\Delta\varphi_q$ zależy od czasu i zmienia się w sposób przypadkowy, to również wypadkowe pole elektryczne E pochodzące od N modów podłużnych zmienia się chaotycznie w czasie. Jeżeli jednak różnica faz $\Delta\varphi_q$ między modami jest stała, to całkowite natężenie pola elektrycznego E powstające w wyniku interferencji N zsynchronizowanych modów podłużnych jest zmodulowanym amplitudowo drganiem o częstotliwości nośnej ω_0 , równej częstotliwości modu centralnego o obwiedni, wyrażonej wzorem

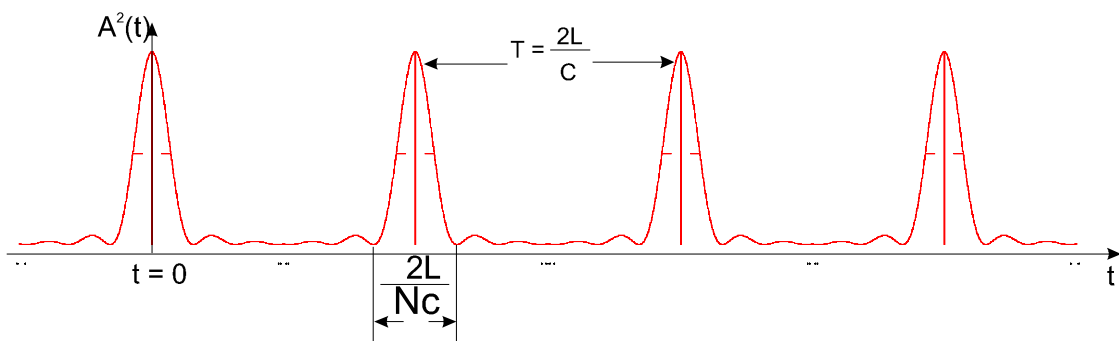
$$A(t) = E_0 \frac{\sin N(\Delta\omega t + \Delta\varphi_q) / 2}{\sin(\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q) / 2} \cdot \tag{4.9}$$

Natężenie promieniowania $I(t) = A^2(t)$, które powstało w wyniku interferencji jest więc funkcją typu dyfrakcyjnego $\left(\frac{\sin nx}{\sin x} \right)^2$ z maksimum dla $x = 0$; postać tej funkcji została przedstawiona na rys. 4.3.



Rys. 4.3. Przebieg funkcji $\left(\frac{\sin nx}{\sin x}\right)^2$

Ponieważ funkcja przedstawiona wzorem (4.9) jest funkcją periodyczną, wykres natężenia promieniowania, które powstało w wyniku interferencji N zsynchronizowanych modów podłużnych w zależności od czasu, przybiera postać przedstawioną na rysunku 4.4. Pokazaliśmy więc, że jeżeli różnica faz $\Delta\varphi_q$ między sąsiednimi modami jest stała, to emisja lasera odbywa się jako ciąg regularnych impulsów następujących po sobie w odstępach czasowych T . Odstępy czasowe między impulsami T można łatwo policzyć, jest to bowiem odległość między dużymi maksimumami na rys 4.4. Ze wzoru (4.9) wynika, że pierwsze maksimum dla czasu t_1 występuje, gdy spełniony jest warunek



Rys. 4.4. Wykres natężenia promieniowania, które powstało w wyniku interferencji N modów podłużnych w funkcji czasu.

$$\Delta\omega_q t_1 + \Delta\varphi_q = 0, \quad (4.10)$$

a następne maksimum dla czasu t_2 musi spełniać warunek:

$$\Delta\omega_q t_2 + \Delta\varphi_q = 2\pi. \quad (4.11)$$

Odejmując stronami równania (4.11) i (4.10), otrzymujemy $\Delta\omega_q T = \Delta\omega_q(t_2 - t_1) = 2\pi$, czyli

$$T = \frac{2\pi}{\Delta\omega_q} = \frac{2\pi}{2\pi\Delta\nu_q} = \frac{L}{2c}. \quad (4.12)$$

$\Delta\nu_q$

W równaniu (4.12) skorzystaliśmy z relacji wyprowadzonej w rozdziale 2 dla różnicy częstotliwości sąsiednich modów $\Delta\nu_q$, która wynosi $\frac{2c}{L}$. Czas trwania pojedynczego impulsu możemy policzyć jako przedział czasu, w którym wypromieniowana została praktycznie cała energia impulsu (czyli odległość między pierwszymi dwoma minimami wokół "dużego" maksimum) na rysunku 4.3. Warunek ten jest spełniony, gdy licznik wyrażenia (4.9) zeruje się:

$$\sin N(\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q) / 2 = 0, \quad (4.13)$$

czyli

$$N(\Delta\omega_q t_1 + \Delta\varphi_q) / 2 = 0, \quad (4.14)$$

oraz

$$N(\Delta\omega_q t_2 + \Delta\varphi_q) / 2 = \pi. \quad (4.15)$$

Tak więc czas trwania pojedynczego impulsu t_{imp} wynosi

$$t_{\text{imp}} = t_2 - t_1 = \frac{2\pi}{N\Delta\omega_q} = \frac{2L}{Nc}. \quad (4.16)$$

Pokazaliśmy wcześniej, że liczba modów podłużnych N zależy od zakresu widmowego oraz szerokości linii fluorescencyjnej $\delta\lambda$ i wyraża się wzorem (4.2). Wstawiając (4.2) do (4.16), otrzymujemy czas trwania impulsu t_{imp}

$$t_{\text{imp}} = t_2 - t_1 = \frac{\lambda_0^2}{2c\delta\lambda}. \quad (4.17)$$

Wzór (4.17), który przed chwilą wyprowadziliśmy, jest niezwykle ważną relacją wiążącą długość trwania impulsu t_{imp} z szerokością widmową pasma fluorescencyjnego emisji spontanicznej, odpowiadającego przejściu kwantowemu, które uczestniczy w akcji laserowej. Z relacji tej wynika, że im szersza linia fluorescencyjna $\delta\lambda$, tym krótszy impuls można wygenerować. Na relację tę będziemy się powoływać wielokrotnie. Relacja (4.17) jest konsekwencją zależności między domeną czasową i domeną częstości opisanej za pomocą transformaty Fouriera (wzór 2.15) omawianej w rozdziale 2. Szczególnym przypadkiem zależności między domeną czasową i domeną częstości jest zasada nieoznaczoności Heisenberga

$$\Delta t \Delta E \geq h / 2\pi, \quad (4.18)$$

gdzie Δt określa nieoznaczoność czasu, która może być interpretowana jako czas trwania impulsu t_{imp} , a $\Delta E = \hbar\Delta\omega = 2\pi c / \delta\lambda$ określa nieoznaczoność energii, a więc szerokość widmową pasma spektroskopowego. Należy jednak podkreślić, że szerokość widmowa pasma spektroskopowego $\delta\lambda$ jest zazwyczaj dużo większa niż

wynikałoby to z zasady nieoznaczoności i zależy głównie od procesów relaksacyjnych i niejednorodności ośrodka, które omówimy w rozdziale 7 i 8. Naturalne poszerzenie wynikające z zasady nieoznaczoności Heisenberga daje niewielki wkład do szerokości widmowej, który jest zazwyczaj zaniedbywalny w porównaniu z wkładem pochodzącym od procesów relaksacyjnych i niejednorodności ośrodka.

Wielkość iloczynu czasu i szerokości widmowej $\Delta t \cdot \Delta E$ zależy od kształtu impulsu czasowego. Załóżmy, że impuls czasowy ma kształt opisany funkcją Gaussa, z natężeniem pola elektrycznego opisanym wzorem

$$E(t) = \frac{E_0}{\tau} \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right). \quad (4.19)$$

Widmo częstości $E(\omega)$ w domenie częstości można wyznaczyć stosując transformatę Fouriera

$$E(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt = \frac{E_0}{2\pi} \exp\left[-\frac{\tau^2}{2}(\omega - \omega_0)^2\right]. \quad (4.20)$$

Oznacza to, że kształt pasma spektroskopowego w domenie częstości jest również opisany funkcją Gaussa. Szerokość w połowie wysokości (FWHH - *full width at half height*) profilu natężenia impulsu czasowego $E(t)$, opisanego wzorem (4.19) wynosi

$$\Delta t_{\text{FWHH}} = 2\tau(\ln 2)^{1/2}, \quad (4.21)$$

zaś szerokość FWHH profilu natężenia $E(\omega)$ w domenie częstości opisanej wzorem (4.20) wynosi

$$\Delta \omega_{\text{FWHH}} / 2\pi = \Delta \nu_{\text{FWHH}} = (\ln 2)^{1/2} / \pi \tau. \quad (4.22)$$

Tak więc dla profilu gaussowskiego iloczyn czasu i szerokości widmowej wynosi

$$\Delta t_{\text{FWHH}} \cdot \Delta \nu_{\text{FWHH}} = 0,441. \quad (4.23)$$

Dla innych kształtów profilu czasowego iloczyn ten jest różny od 0,441. W tabeli 4.1 przedstawiliśmy wartości iloczynu dla najczęściej spotykanych kształtów impulsów czasowych.

Tabela 4.1.

Iloczyn czasu i szerokości widmowej $\Delta t_{\text{FWHH}} \Delta \nu_{\text{FWHH}}$ dla różnych kształtów impulsu czasowego

Funkcja	$I(t)$	$\Delta t_{\text{FWHH}} \Delta \nu_{\text{FWHH}}$
Kwadratowa	$I(t)=1; t \leq t_{\text{imp}}/2$ $I(t)=0; t > t_{\text{imp}}/2$	1,000
Dyfrakcyjna	$I(t) = \frac{\sin^2\left(\frac{t}{\Delta t_{\text{FWHH}}}\right)}{\left(\frac{t}{\Delta t_{\text{FWHH}}}\right)}$	0,886

Gauss	$I(t) = \exp\left(- (4\ln 2)t^2 / 2\Delta t_{\text{FWHH}}^2\right)$	0,441
Secans hiperboliczny	$I(t) = \text{sech}^2\left(\frac{1,76t}{\Delta t_{\text{FWHH}}}\right)$	0,315
Lorentz	$I(t) = \frac{1}{1 + \left(\frac{4t^2}{\Delta t_{\text{FWHH}}^2}\right)}$	0,221
Wykładnicza	$I(t) = \exp\left(\frac{-(\ln 2)t}{\Delta t_{\text{FWHH}}}\right)$	0,142

Pokazaliśmy, że jeżeli w jakiś sposób doprowadzimy do tego, aby różnica faz między sąsiednimi modami była stała, to laser emituje ciąg regularnych impulsów oddalonych od siebie o czas $T = 2L / c$ z czasem trwania pojedynczego impulsu $t_{\text{imp}} = T / N = 2L / cN$.

Powstaje pytanie, jak spowodować synchronizację modów, czyli jak doprowadzić do sytuacji, w której różnica faz $\Delta\varphi_q$ między sąsiednimi modami we wzorach (4.3), (4.8) oraz (4.9) nie zmienia się w czasie? Istnieje wiele różnych sposobów synchronizacji, ale zasada każdego z nich sprowadza się do periodycznej modulacji parametrów rezonatora (amplitudy lub częstotliwości) z częstotliwością równą różnicy częstotliwości sąsiednich modów podłużnych $\Delta\omega_q$. Metody synchronizacji modów dzielimy na metody synchronizacji aktywnej (wymuszonej z zewnątrz) i synchronizacji pasywnej. Szczególnym przypadkiem synchronizacji pasywnej jest autosynchronizacja zachodząca samorzutnie w ośrodku czynnym z wykorzystaniem zjawiska samoogniskowania.

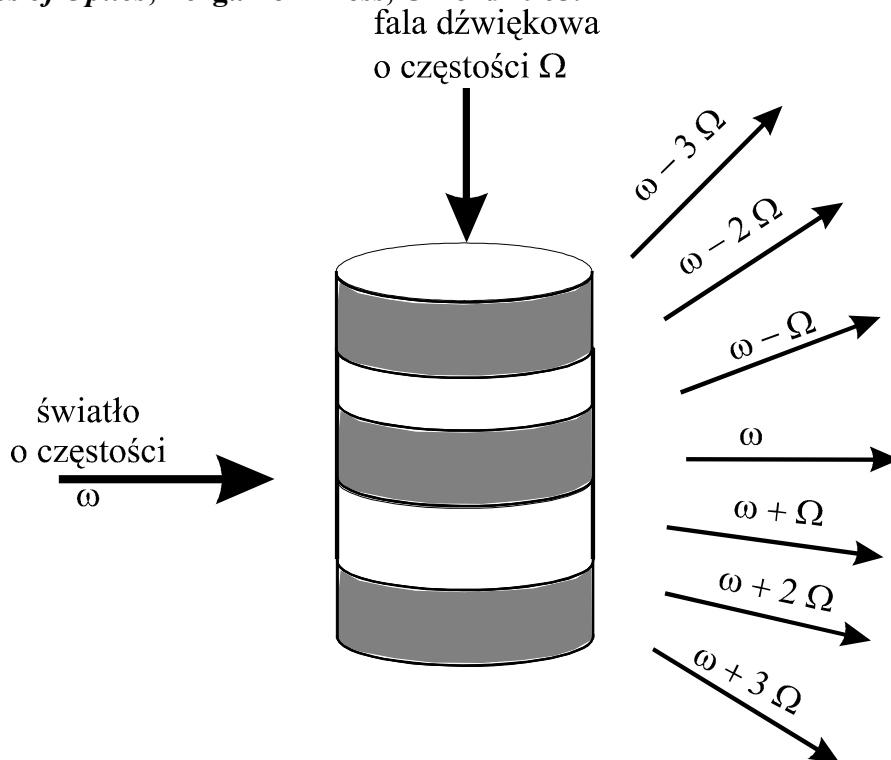
Modulowanie parametrów rezonatora z częstością $\Delta\omega_q$ można przeprowadzić na wiele sposobów:

- modulując długość rezonatora L poprzez wprowadzenie w drganie jednego ze zwierciadeł z częstością międzymodową $\Delta\omega_q$ (modulacja częstotliwości-synchronizacja aktywna),
- stosując przetwornik optoakustyczny, który wytwarzając falę akustyczną, moduluje natężenie światła przechodzącego przez rezonator z częstością $\Delta\omega_q$ (modulacja amplitudy);
- modulując współczynnik wzmocnienia ośrodka aktywnego (modulacja amplitudy) metodą nasycających się absorbentów (wybielających się filtrów).

Jaki jest mechanizm powodujący, że mody podłużne, które przed synchronizacją są niezależnymi oscylatorami wykazującymi brak korelacji między fazami $\Delta\varphi_q$, zaczynają drgać w zsynchronizowanych fazach pod wpływem czynnika wymuszającego o częstości modulacji $\Delta\omega_q$? Gdy modulujemy amplitudę

lub częstotliwość określonego modu podłużnego o częstotliwości ω_0 , pojawiają się dodatkowe składowe promieniowania odstrojone od częstotliwości podstawowej ω_0 o wielokrotność częstotliwości modulacji ω_{mod} ($e^{-i\omega_0 t \pm n\omega_{\text{mod}} t}$). Jeżeli częstotliwość modulacji ω_{mod} jest równa różnicy częstotliwości sąsiednich modów $\Delta\omega_q$, to te dodatkowe składowe pokrywają się z częstotliwościami kolejnych sąsiadujących modów, powodując ich sprzęganie i wymuszając zachowania tej samej różnicy faz między nimi (rys.4.7). Efekt ten nazywamy *synchronizacją modów podłużnych*.

Zajmijmy się teraz metodami modulacji częstotliwości lub amplitudy. Sposób (a) jest oczywisty: modulując długość rezonatora, zmieniamy długość fali λ a więc również częstotliwość fali, $\frac{n\lambda}{2} = L$ jest bowiem warunkiem na powstawanie fali stojącej w rezonatorze. Zajmijmy się teraz dokładniej metodą (b); czyli przetwornikiem optoakustycznym, który generując falę akustyczną, moduluje amplitudę natężenia światła w rezonatorze optycznym. Zapoznanie się z mechanizmami rządzącymi oddziaływaniami światła z falami dźwiękowymi jest tym ważniejsze, że urządzenia optoakustyczne używane są często w technologiach laserowych, nie tylko do synchronizacji modów, ale również w selekcji impulsów (ang. *cavity dumping*). Selektor impulsów pełni rolę aktywnego zwierciadła zamykającego rezonator i pozwala kumulować energię. Obecnie stosuje się raczej selektory impulsów działające na zasadzie pasywnego wycinania impulsów. Oddziaływanie światła z falami dźwiękowymi przedstawimy w sposób opisowy. Szersze omówienie tych zjawisk znajdzie Czytelnik w książce M. Borna i E. Wolfa, *Principles of Optics*, Pergamon Press, Oxford 1965.



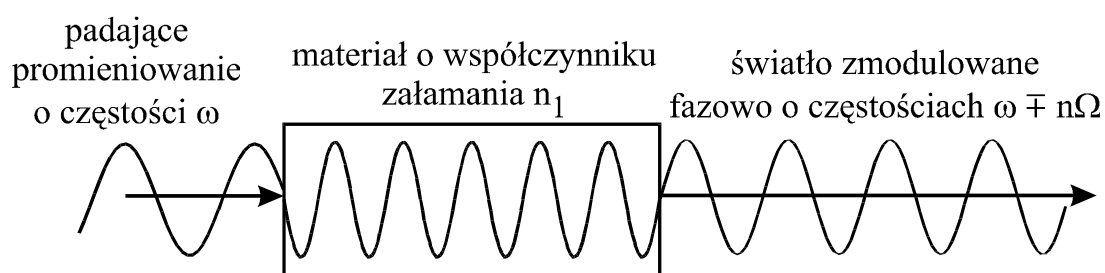
Rys. 4.5. Ilustracja oddziaływania światła z falami dźwiękowymi.

Jeżeli nadajnik emitujący fale o częstotliwości Ω z zakresu fal dźwiękowych (czyli kilka megaherców) umieścimy na przykład w szklance z wodą (rys. 4.5) i oświetlimy ją wiązką laserową o częstotliwości ω , zauważymy, że światło, które przechodzi przez szklankę, rozszczepia się na kilka wiązek. Po obu stronach wiązki o częstotliwości ω , która ma ten sam kierunek co wiązka padająca, obserwujemy wiązki boczne o częstotliwościach $\omega \pm n\Omega$. Zjawisko to znane jest jako *efekt Debye'a i Searsa*, od nazwisk autorów, którzy opisali je po raz pierwszy w 1932 roku. Zjawisko to przypomina trochę dyfrakcję światła na szczelinach. Różnica polega na tym, że w dyfrakcji wszystkie wiązki ugięte pod innym kątem niż wiązka padająca mają tę samą częstotliwość ω co wiązka padająca. Biorąc pod uwagę fakt, że fala dźwiękowa jest falą podłużną, a jej rozchodzenie się polega na tworzeniu obszarów różnej gęstości (rys. 4.5), analogia z dyfrakcją nie powinna specjalnie dziwić, generowane bowiem przez falę dźwiękową obszary zagęszczeń i rozrzedzeń przypominają siatkę dyfrakcyjną. Rzeczywiście, obszary zmniejszonej gęstości można traktować jako szczeliny, przez które przechodzi więcej światła niż przez obszary zwiększonej gęstości. Dlaczego jednak pojawiają się częstotliwości: $\omega \pm \Omega$; $\omega \pm 2\Omega$; $\omega \pm 3\Omega$ itd.? Wyobraźmy sobie, że światło o częstotliwości ω pada na ośrodek o współczynniku załamania n_1 (rys. 4.6). Jeżeli współczynnik załamania ośrodka n_1 jest większy niż

współczynnik załamania otoczenia n_0 , światło w ośrodku rozchodzi się $\frac{n_1}{n_0}$ razy

wolniej (bo $\lambda v = \frac{c}{n}$). Załóżmy, że znaleźliśmy sposób na modulowanie

współczynnika załamania n_1 ze stałą częstotliwością Ω . Modulacja sprawia, że światło w ośrodku porusza się szybciej lub wolniej, a zmiany te następują z częstotliwością Ω . Modulacja powoduje, że światło opuszczające ośrodek ma zmodulowaną częstotliwość nośną ω promieniowania padającego, a to oznacza pojawienie się dodatkowych składowych o częstotliwości $\omega \pm n\Omega$ (rys. 4.7).



Rys. 4.6. Modulacja światła za pomocą periodycznych zmian współczynnika załamania światła n_1 .

Im dłuższa droga l światła w materiale, tym większe amplitudy bocznych pasm o częstotliwości $\omega \pm n\Omega$. Wzmocnienie pasm bocznych odbywa się kosztem

amplitudy wiązki o częstotliwości nośnej ω . Długość drogi optycznej l jest parametrem, który określa, kiedy może zajść efekt Debye'a - Searsa. Rozróżniamy dwa przypadki graniczne

$$l \ll \frac{A}{2\pi\lambda} \quad (4.24)$$

i

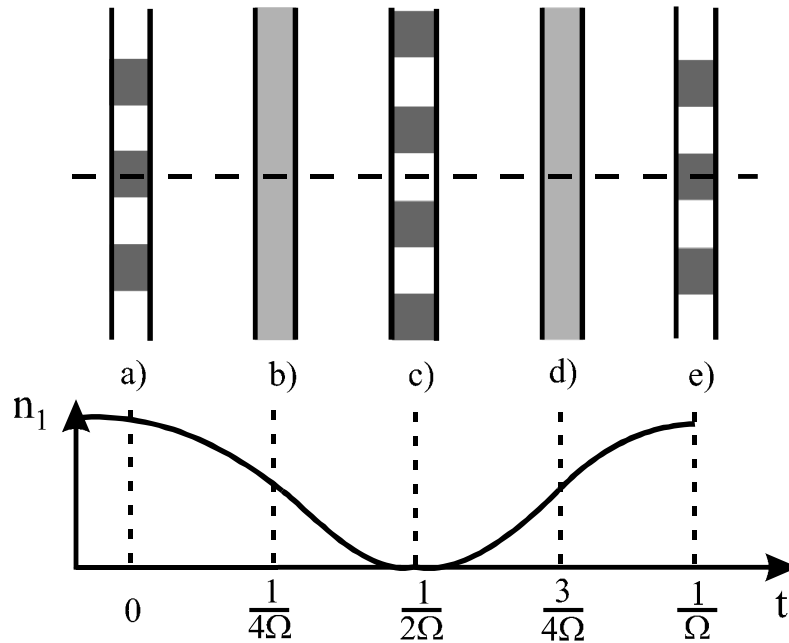
$$l \gg \frac{A}{2\pi\lambda}, \quad (4.25)$$

gdzie λ jest długością fali optycznej, A zaś długością fali dźwiękowej. Relacja (4.24) określa krytyczną długość drogi optycznej, dla której efekt Debye'a-Searsa może być obserwowany. Ten obszar pracy urządzenia optoakustycznego nosi nazwę reżimu *Ramana-Natha*, od nazwisk autorów, którzy wyprowadzili ten warunek. Określa on obszar pracy urządzeń optoakustycznych służących do synchronizacji modów. Relacja (4.25) wykorzystywana jest w innym urządzeniu optoakustycznym – przyrządzie do selekcji impulsów zwanym *cavity dumper*. Określa ona warunki wystąpienia tzw. odbicia Bragga.

Najprostszym sposobem modulowania współczynnika załamania n_1 jest periodyczna zmiana gęstości ośrodka, którą można osiągnąć przepuszczając przez ośrodek sinusoidalną falę dźwiękową. Tworzy ona w ośrodku obszar zagęszczeń i rozrzedzeń, periodycznie zmieniający się z częstotliwością Ω fali dźwiękowej. W rzeczywistych urządzeniach optoakustycznych generuje się dźwiękową falę stojącą zamiast fali płaskiej, której czoło porusza się z prędkością v . Fala stojąca przedstawiona jest na rys. 4.8. Fala stojąca zamiast poruszać się w dół kolumny z prędkością v , pozostaje nieruchoma, a współczynnik załamania n_1 w każdym ustalonym miejscu kolumny (np. w miejscu zaznaczonym przerywaną kreską) zmienia się sinusoidalnie z częstotliwością Ω . Dwa razy w czasie cyklu gęstość jest rozłożona równomiernie wzdłuż całej kolumny (b i d) i dwa razy osiąga taką gęstość, dla której współczynnik załamania n_1 jest największy (a i e) oraz jeden raz osiąga gęstość dla której współczynnik załamania jest najmniejszy (c) (rys. 4.8).

Tak więc dwa razy w czasie cyklu $T = \frac{1}{\Omega}$, gdy gęstość jest rozłożona

równomiernie, padająca wiązka światła przechodzi niezaburzona, czyli częstość wiązki wychodzącej jest równa ω , a amplituda promieniowania jest równa amplitudzie promieniowania padającego, co oznacza że efekt Debye'a-Searsa nie występuje. Z kolei w sytuacjach opisanych na rys.4.8a, c, e efekt Debye'a-Searsa jest najsilniejszy, powodując pojawienie się dodatkowych pasm $\omega \pm n\Omega$ kosztem osłabienia amplitudy fali nośnej o częstotliwości ω . Rozumiemy już teraz, dlaczego przetwornik optoakustyczny moduluje amplitudę natężenia światła w rezonatorze optycznym. Jeżeli modulacja ta odbywa się z częstotliwością równą różnicy częstotliwości międzymodowej $\Delta\nu = \frac{c}{2L}$, to efekt Debye'a-Searsa prowadzi do synchronizacji modów.

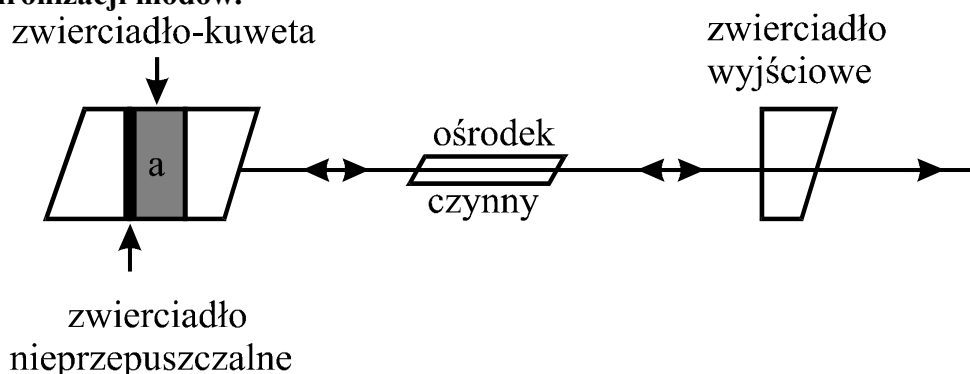


4.8. Ilustracja periodycznych zmian współczynnika załamania przez zmiany gęstości ośrodka wywołanych falą dźwiękową.

W praktycznych zastosowaniach przetwornik optoakustyczny składa się z małego elementu kwarcowego (pryzmatu lub płytki płasko-równoległej) umieszczonych w pobliżu zwierciadła rezonatora optycznego (rys. 4.9). Pryzmat stosuje się w laserach wielobarwnych, np. w laserach argonowych dla selekcji długości fali. Wewnątrz elementu kwarcowego umieszczony jest piezoelektryczny nadajnik fal akustycznych o częstotliwości $\frac{c}{2L}$. Boczne ściany elementu kwarcowego są wypolerowane tak, aby wewnątrz powstała stojąca fala dźwiękowa. Wiązka laserowa znajdująca się wewnątrz rezonatora optycznego przechodzi przez obszar powstawania stojącej fali dźwiękowej, oddziałująca z nią w sposób opisany wyżej. W wyniku tego oddziaływania wiązka laserowa o częstotliwości ω jest periodycznie osłabiana z częstotliwością $\Omega = \frac{c}{2L}$, a kosztem jej osłabienia powstają pasma boczne o częstości $\omega \pm n\Omega$. W akcji laserowej uczestniczy tylko wiązka osiowa, pasma boczne bowiem odchyłone od osi głównej zostaną wygaszone bowiem długość drogi optycznej dla pasm bocznych jest różna od L , dla której spełniony jest warunek $\frac{n\lambda}{2} = L$

Jeszcze innym sposobem osiągnięcia synchronizacji modów jest synchronizacja pasywna, uzyskana metodą nasycających się absorbentów. W tym celu zwierciadło rezonatora zastępuje się zwierciadłem połączonym z kuwetą (rys. 4.10). Załóżmy, że w kuwecie umieszczono substancję pochłaniającą (oznaczoną jako a na rys. 4.10) charakteryzowaną przez poziomy energetyczne E_1 oraz E_2 , które spełniają warunek $E_2 - E_1 = \hbar\omega$ gdzie ω jest częstotliwością promieniowania wiązki laserowej. Niech czas życia cząsteczek substancji pochłaniającej na poziomie wzbudzonym wynosi τ . Jeżeli poziomy E_1 i E_2 oznaczają poziomy

elektronowe, to czas τ jest rzędu nanosekund (10^{-9} s), czyli jest tego samego rzędu co okres dwukrotnego przebiegu światła w rezonatorze $T = \frac{1}{\Delta\nu} = \frac{2L}{c}$. Substancja umieszczona w zwierciadle połączonym z kuletą pełni więc rolę filtra. Rzeczywiście światło wiązki laserowej znajdującej się w rezonatorze optycznym padając na zwierciadło- kuletę przenosi cząsteczki znajdujące się na poziomie niższym E_1 na poziom wyższy E_2 powodując osłabienie wiązki w wyniku absorpcji. Pod wpływem absorpcji światła o dużym natężeniu, substancja ulegnie nasyceniu (wybieli się), czyli spełniony zostanie warunek $N_1 = N_2$, gdzie N_1 i N_2 oznaczają liczbę cząsteczek na poziomie E_1 i E_2 . Absorbent w kulecie stanie się więc przezroczysty dla wiązki laserowej, która dotrze do zwierciadła odbijającego (nieprzepuszczalnego), co spowoduje wzmocnienie akcji w ośrodku czynnym. Przepuszczalność substancji w kulecie zmaleje po czasie τ (cząsteczki z poziomu E_2 powrócą na poziom E_1 i proces absorpcji światła będzie mógł zostać powtórzony). Tak więc transmisja modulowana będzie przez częstotliwość występowania kolejnych impulsów wiązki laserowej, jeśli tylko odstępy czasowe między impulsami $T = \frac{2L}{c}$ są dłuższe od czasu życia τ na poziomie E_2 . Prowadzi to do modulacji natężenia promieniowania we wnętrzu rezonatora i w konsekwencji do synchronizacji modów.



Rys. 4.10. Synchronizacja pasywna osiągnięta metodą nasycających się absorbentów.

Na zakończenie tego rozdziału chcielibyśmy wspomnieć o innych metodach synchronizacji modów. Należą do nich: synchronizacja za pomocą dodatkowego impulsu (ang. *additive pulse mode locking* - APM), samosynchronizacja (ang. *self mode-locking*), synchronizacja regeneratywna (ang. *regenerative mode locking*). Metoda APM używa interferometrycznie sprzężonego zewnętrznego nieliniowego rezonatora światłowodowego. Szczegóły można znaleźć w pracy: P.M. French, J.A.R. Williams, J.R. Taylor, Femtosecond pulse generation from a titanium-doped sapphire laser using nonlinear external cavity feedback, *Opt. Lett.*, **14**, 686 (1989). Zjawisko samosynchronizacji zachodzi samorzutnie w ośrodku czynnym lasera. Dotyczy to głównie laserów na ciele stałym, w których ośrodkiem czynnym jest kryształ. Lasery na ciele stałym omówimy w rozdziale 5. Zjawisko samosynchronizacji jest rodzajem synchronizacji pasywnej, w której rolę samonasycającego się absorbenta pełni sam kryształ ośrodka czynnego. Efekt ten

jest wynikiem nieliniowego oddziaływania światła z ośrodkiem czynnym i wynika z faktu, że współczynnik załamania zależy od natężenia padającego promieniowania. Zjawisko to znane jest w literaturze jako synchronizacja metodą samoogniskowania Kerra (ang. *Kerr lens mode locking* - KLM). Zainteresowanych szczegółami odsyłam do podręcznika F. Kaczmarka, *Wstęp do fizyki laserów*, PWN, Warszawa 1986 i artykułu F. Krausza i in., *IEEE J. Quant. Electron.* QE-28, 2097 (1992). Zjawisko KLM powoduje, że praktycznie we wszystkich laserach na ciele stałym (Cr:YAG, Pr:YLF, Ti:szafir) synchronizacja modów powstaje samorzutnie, generując impulsy pikosekundowe i femtosekundowe bez dodatkowych urządzeń modulujących, rolę modulatora pełni bowiem sam ośrodek czynny. Jednak, aby impulsy te były stabilne, powtarzalne i miały ściśle zdefiniowany kształt, należy zastosować urządzenie kontrolujące dyspersję prędkości grupowej (ang. *Group Velocity Dispersion* - GVD). Zjawisko GVD omówimy w podrozdziale 6.6. Tutaj powiemy tylko, że dyspersję prędkości grupowej kontrolujemy najczęściej za pomocą układu pryzmatów (femtosekundy) lub interferometru Gires-Tournoisa (GTI) (pikosekundy).

Często zdarza się jednak, że lasery pikosekundowe i femtosekundowe wykorzystujące wyłącznie zjawisko KLM mogą pracować niestabilnie z powodu zmian temperatury otoczenia, drgań w pomieszczeniach czy innych niekontrolowanych czynników. Z tego powodu niektóre firmy wybierają metodę, która jest połączeniem zjawiska KLM i synchronizacji aktywnej za pomocą przetwornika optoakustycznego. Ten typ synchronizacji nosi nazwę *synchronizacji regeneratywnej*. Gdy laser na ciele stałym zaczyna pracować w reżimie pracy ciągłej (cw), powstają mody podłużne o częstotliwościach różniących się o $\Delta\nu = c / 2L$. Częstości większości modów nie są skorelowane i różnica faz między nimi zmienia się chaotycznie. Jednak niewielka liczba modów jest częściowo uporządkowana i częstotliwość $\Delta\nu = c / 2L$ zaczyna modulować natężenie światła w początkowej fazie emisji lasera. Ta modulacja jest rejestrowana przez fotodiode, wzmacniana i przesłana do przetwornika optoakustycznego. Przetwornik zaczyna modulować ośrodek czynny z częstością, której wartość otrzymał z lasera poprzez fotodiode. Takie rozwiązanie usuwa główną wadę aktywnej synchronizacji, która polega na tym, iż długość rezonatora L musi być ściśle dopasowana do częstości przetwornika. W synchronizacji regeneratywnej, gdy długość rezonatora zmieni się nieznacznie, sygnał przesłany do przetwornika, zmieni częstość modulowania automatycznie. Szczegółowy opis synchronizacji regeneratywnej znajdzie czytelnik w artykule: J.D. Kafka, M.L. Watts, J.W.J. Pieterse, Picosecond and Femtosecond Pulse Generation in a Generatively Mode-Locked Ti:Sapphire Laser, *IEEE J. Quant. Electron.*, 28, 2151 (1992).

Podsumowując, synchronizacja modów polega na utrzymaniu stałej różnicy faz między modami podłużnymi. Jeżeli warunek ten zostanie spełniony, to emisja lasera odbywa się jako ciąg regularnych impulsów wysyłanych w odstępach czasowych $T = \frac{2L}{c}$, a czas trwania pojedynczego impulsu wynosi $t = \frac{2L}{cN}$, gdzie N jest liczbą modów podłużnych. Synchronizację modów można osiągnąć przez periodyczną modulację parametrów rezonatora optycznego (amplitudy lub

częstotliwości modów podłużnych) z częstotliwością równą różnicy częstości sąsiednich modów $\Delta\nu = \frac{c}{2L}$.