

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET
FIZIČKI ODSJEK

SILVIJE VDOVIĆ

**NELINEARNI EFEKTI INTERAKCIJE LASERA I
ATOMSKIH PARA**

DISERTACIJA

ZAGREB, 2010.

Sveučilište u Zagrebu
Prirodoslovno-matematički fakultet
Poslijediplomski studij prirodnih znanosti
Fizika

SILVIJE VDOVIĆ

**NELINEARNI EFEKTI INTERAKCIJE LASERA I
ATOMSKIH PARA**

Doktorska disertacija
predložena Fizičkom odsjeku
Prirodoslovno-matematičkog fakulteta Sveučilišta u Zagrebu
radi stjecanja akademskog stupnja
doktora prirodnih znanosti (fizika)

ZAGREB, 2010.

TEMELJNA DOKUMENTACIJSKA KARTICA

Sveučilište u Zagrebu
Prirodoslovno-matematički fakultet
Fizički odsjek

Doktorska disertacija

NELINEARNI EFEKTI INTERAKCIJE LASERA I ATOMSKIH PARA

SILVIJE VDOVIĆ
Institut za fiziku, Zagreb

Istraživana je nelinearna interakcija atomskih para alkalijskih i laserskih izvora u različitim uvjetima. Elektromagnetski inducirana transparentnost nastaje zbog interakcije između kontinuiranih lasera i atomskih para rubidija u V shemi vezanja stanja. Transparentnost je ponajviše rezultat smanjenja populacije osnovnog nivoa zbog saturacije prijelaza vezanog jakim veznim laserom. Usporedbom s teorijskim modelom zaključeno je da, osim saturacije, i stvorena koherencija u atomima također doprinosi povećanju transparentnosti. Istražena je interakcija femtosekundnih pulseva s rezonantnim parama rubidija različite koncentracije korištenjem tehnike frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja (FROG). Efekti prostiranja femtosekundnih laserskih pulseva optički tankim sredstvom mogu se opisati stvaranjem $0-\pi$ pulseva kod kojih dolazi do značajnih vremenskih modulacija električnog polja pulsa. Dobiveni rezultati uspoređeni su s teorijskim simulacijama prostiranja pulsa rezonantnim medijem u okviru linearne disperzijske teorije, čime su određene granice primjene FROG tehnike na karakterizaciju kompleksnih pulseva. FROG tehnikom mjereni su i pulsevi nakon rezonantne nelinearne interakcije s gustim parama rubidija. Rezultat takve interakcije je konusna emisija. U okviru aproksimacije adijabatske slijednosti zbog različitog predznaka razlike između centralne valne duljine pulsa i valne duljine najbliže rezonantne linije dolazi do prostornog samofokusiranja odnosno samodefokusiranja. U frekventnoj domeni dolazi do samomodulacije faze pulsa koja također ovisi o predznaku razlike valnih duljina pulsa i rezonantne linije. Mjerenja faze pulsa potvrdila su gore navedene teze kroz različito ponašanje spektralne i vremenske faze pulsa ovisno o položaju spektra pulsa u odnosu na rezonanciju. Degenerirano četverovalno miješanje (DFWM) femtosekundnih pulseva u natrijevim parama mjereno je u režimu tranzijentne rešetke u BOXCARS geometriji. Proučavan je vremenski razvoj UV emisije uzrokovane višefotonskom apsorpcijom u mediju kao i vremenski razvoj generiranog DFWM signala. Modulacije intenziteta tranzijenata objašnjavaju se kvantnim udarima zbog koherentnog pobuđivanja stanja fine strukture. Period modulacije određen je razlikom energija nivoa različitog spina. Modulacije eksponencijalno trnu u vremenu određenom karakterističnim vremenom relaksacije koherencija.

Disertacija sadrži: 154 stranice, 82 slike, 1 tablicu, 113 literaturnih navoda.

Jezik izvornika: hrvatski.

Rad je pohranjen u Središnjoj knjižnici za fiziku, PMF - Fizički odsjek, Bijenička c. 32, Zagreb.

Ključne riječi: elektromagnetski inducirana transparentnost / frekventno razlučivo optičko uzorkovanje / femtosekundni puls / degenerirano četverovalno miješanje / konusna emisija / samofazno moduliranje / samofokusiranje / kvantni udari / stvaranje trećeg harmonika

Mentor: dr. sc. Goran Pichler, znanstveni savjetnik, *Institut za fiziku*

Ocjenjivači: prof. dr. sc. Damir Veža, redovni profesor, *PMF, Fizički odsjek*
dr. sc. Goran Pichler, znanstveni savjetnik, *Institut za fiziku*
prof. dr. sc. Hrvoje Buljan, izvanredni profesor, *PMF, Fizički odsjek*

Rad prihvaćen 6. srpnja 2010.

BASIC DOCUMENTATION CARD

University of Zagreb
Faculty of Science
Department of Physics

Doctoral thesis

NONLINEAR EFFECTS IN THE INTERACTION BETWEEN THE LASER AND THE ALKALI VAPOR

SILVIJE VDOVIĆ
Institute of Physics, Zagreb

This thesis examines nonlinear interaction between the alkali vapor and different laser sources in various conditions. Interaction between cw lasers and rubidium atomic vapor in the V coupling scheme produces electromagnetically induced transparency, where the main contribution to the induced transparency comes from nonlinear saturation effects on the strongly coupled transition. By comparing the theoretical model and experimental results it is shown that part of the induced transparency comes from coherences induced between the uncoupled transitions. Interaction between the femtosecond (fs) pulses and resonant rubidium atomic vapor is investigated using frequency-resolved optical gating (FROG) technique. Propagation of the fs pulses in the optically thin medium results in formation of $0-\pi$ pulses which have strong modulation of the electric field amplitude on a time scale of several ps. Since it is impossible to cover the whole time evolution of the $0-\pi$ pulse, the FROG reconstruction process can never be accurate enough. Propagation of nearly-resonant pulses through the optically thick rubidium vapor results in conical emission due to the self-focusing of the pulse in time domain and self-phase modulation in frequency domain. Using the adiabatic following approximation, it is shown that the physical processes depend on the sign of detuning of pulse wavelength from the rubidium resonance lines. The pulse electric field phase in both domains, retrieved from the FROG measurements, shows different behavior with respect to the sign of the pulse detuning. Degenerate four-wave mixing (DFWM) of femtosecond pulses in sodium vapor was performed in BOXCARS geometry. When on three-photon atomic resonance, transient grating signal appeared on the frequency of the third harmonic of fundamental frequency at negative delay times with modulations whose period corresponds to the energy difference between the coherently excited upper state fine structure levels. In positive time delays signal appears at the fundamental frequency and there is no signal at third harmonic frequency. This is explained by destructive interference between the fundamental field and the field at the frequency of third harmonic. The amplitudes of modulations at negative time delays have exponential time dependence determined by the coherence relaxation time.

Thesis contents: 154 pages, 82 figures, 1 table, 113 references. Thesis language: Croatian.

Thesis deposited in The Central Library for Physics, Faculty of Science - Department of Physics, Bijenička c. 32, Zagreb.

Keywords: electromagnetically induced transparency / frequency-resolved optical gating / femtosecond pulse / degenerate four-wave mixing / conical emission / self-phase modulation / self-focusing / quantum beats / third-harmonic generation

Supervisor: dr. sc. Goran Pichler, Senior Scientist, *Institute of Physics*

Reviewers: prof. dr. sc. Damir Veža, Professor of Physics, *Faculty of Science*
dr. sc. Goran Pichler, Senior Scientist, *Institute of Physics*
prof. dr. sc. Hrvoje Buljan, Associate Professor, *Faculty of Science*

Thesis accepted: July 6th 2010.

Disertacija je u potpunosti izrađena na *Institutu za fiziku* u Zagrebu, u *Laboratoriju za femtosekundnu lasersku spektroskopiju*, u sklopu rada na projektima *Femtosekundna laserska spektroskopija i ultrahladne molekule* i *Femtosekundna laserska fizika atoma i molekula*.

Sadržaj

1	Uvod	1
1.1.	Uvod	1
2	Osnovni pojmovi	5
2.1.	Fizikalna svojstva ultrakratkih pulseva	5
2.1.1.	Kompleksna reprezentacija električnog polja	5
2.1.2.	Definiranje vremenske i spektralne dimenzije pulsa	11
2.1.3.	Prostiranje pulsa kroz medij	12
2.1.4.	Dijagnostičke tehnike mjerenja ultrakratkih pulseva	15
2.2.	Nelinearna optika	19
2.2.1.	Nelinearni optički procesi drugog i trećeg reda	19
2.2.2.	Rješavanje nelinearne valne jednačbe	23
2.2.3.	Fazno usklađivanje	25
2.3.	Kvantno-mehanički opis sistema preko matrice gustoće stanja	29
2.3.1.	Jednačbe gibanja matrice gustoće stanja za sistem atoma s dva nivoa	32
3	Elektromagnetski inducirana transparentija	37
3.1.	Efekti interferencija atomskih koherencija	38
3.1.1.	Koherentno zarobljavanje populacije	40
3.1.2.	Laserski efekt bez inverzije naseljenosti	42
3.2.	Teorijski opis elektromagnetski inducirane transparentije	44
3.3.	EIT u <i>V</i> -shemi para rubidija	48
3.4.	Optičko poluvodičko pojačalo	61
3.5.	Zaključak	65

4 Međudjelovanje femtosekundnih pulseva i rezonantnog medija mjereno FROG tehnikom	67
4.1. Metoda frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja	67
4.2. Međudjelovanje rubidijevih atoma i femtosekundnih pulseva u optički tankom mediju	74
4.3. Konusna emisija u optički debelim parama rubidija	84
4.3.1. FROG autokorelacijska mjerenja konusne emisije	92
4.3.2. XFROG međukorelacijska mjerenja konusne emisije	101
4.4. Zaključak	104
5 Degenerirano četverovalno miješanje u gustim parama natrija	109
5.1. Uvod	109
5.2. Motivacija i eksperiment	112
5.3. Trofotonska pobuđenja atoma natrija	121
5.4. Koherentno pobuđenje atoma kalija u parama natrija	134
5.5. Zaključak	136
Popis slika	138
Bibliografija	143
Sažetak	148
Summary	150
Popis objavljenih znanstvenih radova	152
Životopis	154

1 Uvod

1.1. Uvod

Nelinearni optički efekti poznati su još od devetnaestog stoljeća (Pockelsov i Kerrov efekt). No do Maimanovog otkrića lasera 1960. godine [1], intenziteti dovoljni za ulazak u režim nelinearnog optičkog odziva bili su mogući samo primjenom elektrostatskih polja. Iz tog je razloga razvoj nelinearne optike bio usporen, sve do klasičnog eksperimenta Frankena [2] u kojem je prvi puta demonstrirano stvaranje drugog harmonika u kvarcu pomoću rubinskog lasera. Kako su koherentni izvori optičkog zračenja postajali sve dostupniji ubrzano su stizali izvještaji o opaženim novim fenomenima. U najznačajnije radove toga vremena ubrajaju se opažanja dvofotonske apsorpcije [3], stimuliranog Raman raspršenja [4], stvaranja trećeg harmonika [5] i anti-Stokes miješanja frekvencija [6]. Ubrzo nakon prvih eksperimentalnih rezultata uslijedila su i prva teorijska objašnjenja optičkih nelinearnosti bazirana na nelinearnom odzivu titrajućeg elektrona u elektrostatskom polju atoma.

Rad s poljima visokog intenziteta ima neke neželjene efekte, kao što je primjerice optička degradacija materijala, ali i brojne korisne efekte koji su u znatnoj mjeri proširili područje primjene lasera u fizici. Efekt stvaranja drugog harmonika omogućuje stvaranje svjetlosti „nove boje“, na frekvenciji dvostruko višoj od ulazne frekvencije¹. Međudjelovanje četiri koherentna optička polja kroz nelinearnu susceptibilnost trećeg reda razotkrila je brojne nove fizikalne procese kao što su degenerirano četverovalno miješanje, stimulirano Raman raspršenje, Raman inducirani Kerr efekt itd. Korištenjem tih procesa razvijene su tehnike koje se primjenjuju u optički konjugiranim procesima, holografiji u realnom vremenu, optičkom procesiranju te mjerenju atomske strukture i vremena relaksacija sistema.

Nelinearni efekti često se pojavljuju u proučavanju međudjelovanja između ultrakratkih,

¹1981. g. N. Bloembergen dobio je Nobelovu nagradu za fiziku „za doprinos u razvoju laserske spektroskopije“, između ostalog zbog „razvoja metoda koje miješanjem dvaju ili više laserskih snopova stvaraju lasersku svjetlost na novoj valnoj duljini“ [7].

femtosekundnih laserskih pulseva i atoma u kristalima, tekućinama i plinovitim sustavima. Razlog tome je velika energija pohranjena u tim pulsevima čija je prosječna snaga najčešće reda veličine snage kontinuiranih laserskih izvora. S druge strane, razvojem kontinuiranih (*cw*) lasera stvoreni su izvori iznimno visoke energije, koji mogu imati vrlo uzak spektar a time i veliku spektralnu gustoću energije, pa su danas nelinearne pojave često prisutne i u ovom području.

Struktura ovog doktorskog rada je slijedeća: nakon kratkog pregleda osnovnih fizikalnih pojmova koji su važni za razumijevanje predstavljenih rezultata u trećem je poglavlju opisan princip elektromagnetski inducirane transparencije (*electromagnetically induced transparency - EIT*) [8, 9], fenomena iz kvantne optike koji je vrlo aktualan zadnjih godina. U kratkom uvodu opisani su prvi eksperimenti vezani uz interferenciju atomskih koherencija. Definiran je pojam atomskih koherencija i objašnjen proces koherentnog zarobljavanja populacije, na kojem se temelji EIT efekt. Dan je osvrt na fenomen usporavanja i zarobljavanja svjetlosti u mediju u kojem se inducira transparentija. Zatim su prezentirani rezultati eksperimentalnog i teorijskog istraživanja transparencije inducirane u nehomogeno proširenim parama rubidija u tzv. V shemi vezanja laserskih polja i atoma. Korištenje teorijskih simulacija omogućilo je razlučivanje različitih fizikalnih procesa koji doprinose povećanju transparencije, a koji do sada nisu bili adekvatno opisani. Razlučen je efekt transparencije zbog saturacije prijelaza vezanog pum-pnim poljem od transparencije zbog stvorene koherencije među nevezanim prijelazima (EIT efekt). Uz pomoć teorijskih simulacija ispitana je mogućnost povećanja EIT efekta pojačanjem snage veznog lasera. Suprotno očekivanjima, rezultati simulacija pokazuju povećanu koherenciju kod atoma u brzinskim grupama s većom relativnom brzinom, dok kod brzinskih grupa čija je relativna brzina blizu nuli dolazi do smanjenja koherencije. Zaključeno je da parametri koji određuju iznos pojedine koherencije među nevezanim nivoima pobuđenih stanja nisu međusobno nezavisni i da je potrebna dodatna teorijska analiza i usporedba s eksperimentalnim rezultatima. U zadnjem odlomku ovog poglavlja predstavljena je izrada i princip rada optičkog poluvodičkog pojačala, uređaja za pojačavanje laserske emisije, prvenstveno poluvodičkih laserskih sistema. Izrada pojačala vezana je uz buduća istraživanja promjena koherencija nevezanih stanja s povećanjem snage veznog polja u nehomogenom mediju.

Metoda frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja nezamjenjiva je eksperimentalna tehnika u području opisa ultrakratkih pulseva, a temelji se između ostalog, na nelinearnoj pojavi stvaranja viših (najčešće drugog) harmonika u optičkim kristalima kao rezultat vre-

menskog i prostornog preklapanja dviju replika promatranog pulsa. Iz snimljene vremenske ovisnosti spektra stvorenog signala na frekvenciji drugog harmonika o vremenskoj razlici u dolasku pulseva u točku preklapanja može se dobiti informacija o obliku električnog polja pulsa i njegovoj fazi, te odgovarajućim Fourier transformacijama u spektralnoj domeni. Upravo opisana metoda opširnije je predstavljena u 4. poglavlju gdje je primjenjena na pulseve koji u rezonantnom međudjelovanju s gustim parama rubidija (optički debelo sredstvo) doživljavaju bitne promjene u spektru i vremenskom obliku električnog polja. Konačan rezultat takvog međudjelovanja je konusna emisija, koja se opaža u dalekom polju (*far-field*). U okviru aproksimacije adijabatske slijednosti pokazano je da zbog različitog predznaka razlike između centralne valne duljine pulsa i valne duljine najbliže rezonantne linije dolazi do samofokusiranja odnosno samodefokusiranja, kada širenje pulsa medijem promatramo u prostornoj domeni. U frekventnoj domeni dolazi do samomodulacije faze pulsa koja također ovisi o predznaku razlike valnih duljina pulsa i rezonantne linije. Osim toga, efekt disperzije rezonantnog medija uzrokuje disperziju grupne brzine pulsa. Korištenjem metode frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja izmjerena je spektralna faza pulsa konusne emisije te su potvrđene gore navedene teze kroz različito ponašanje spektralne i vremenske faze pulsa ovisno o položaju spektra pulsa u odnosu na rezonanciju. Efekti širenja femtosekundnih laserskih pulseva optički tankim rezonantnim sredstvom mogu se opisati stvaranjem $0-\pi$ pulseva. Takvi pulsevi nisu dobro definirani u vremenskoj domeni jer, zbog međudjelovanja s rezonantnim sredstvom (atomske pare rubidija), dolazi do modulacija električnog polja pulsa koje su, strogo gledano, beskonačne u vremenu. Spektar pulsa biva apsorbiran na valnim duljinama koje odgovaraju rezonantnim linijama rubidija. Na niskim temperaturama, do $100\text{ }^{\circ}\text{C}$, apsorpcija je toliko spektralno uska da je nerazlučiva u spektrometrima umjerene rezolucije ($\approx 1\text{ nm}$). Na višim temperaturama modulacije električnog polja pulsa postaju značajne na vremenskoj skali od nekoliko ps. Tehnika frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja snimanjem spektrograma objedinjuje mjerenja u vremenskoj i spektralnoj domeni. Algoritam koji se koristi za računanje električnog polja pulsa iz snimljenih spektrograma zbog brzine računanja koristi FFT transformaciju za prelazak iz jedne u drugu domenu. Stoga su promatrani vremenski prozor i rezolucija u frekventnoj domeni obrnuto proporcionalni. Mjerenja $0-\pi$ pulseva zahtijevaju veliku spektralnu razlučivost i široki vremenski prozor mjerenja što za algoritam frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja znači korištenje velike (kvadratne) matrice za spremanje snimljenih spektrograma. Zbog drastičnog opadanja brzine računanja električnog polja pulsa s povećanjem dimenzija matrice,

postoji ograničenje na kompleksnost pulsa koju je moguće snimiti ovom tehnikom. Dobiveni rezultati uspoređeni su s teorijskim simulacijama širenja pulsa rezonantnim medijem u okviru linearne disperzijske teorije. Pokazano je da su pogreške u izmjerenim poljima koja su dobivena uzorkovanjem u vremenskom prozoru koji ne sadržava „cijeli“ $0-\pi$ puls rezultat uzorkovanja u preuskom vremenskom prozoru a ne, kao što se prije mislilo, nedovoljne rezolucije mjerenja spektara pulseva.

Degenerirano četverovalno miješanje (*degenerate four-wave mixing* - DFWM) u natrijevim parama opisano je u 5. poglavlju. Proučavan je vremenski razvoj UV emisije uzrokovane višefotonskom apsorpcijom u mediju kao i vremenski razvoj stvorenog DFWM signala (UV zračenje na frekvenciji trećeg harmonika zapravo nastaje miješanjem deset valova). Korištenjem femtosekundnog laserskog pojačala bitno se (za faktor 10^4) povećava energija pohranjena u svakom pojedinom pulsu čime je drastično povećana mogućnost višefotonske apsorpcije u mediju, pa čak i ionizacije. Iz tog su razloga trofotonski rezonantni, kao i drugi, kaskadni prijelazi opaženi u ovom eksperimentu posve razumljivi. Novonastali DFWM signal također u sebi sadrži komponente raznih valnih duljina, ovisno o valnoj duljini na koju je ugođena ulazna pobuda, dok je prostorna odijeljenost stvorene zrake i ostalih zraka ostvarena korištenjem tzv. BOXCARS geometrije. Pomoću procesa destruktivne interferencije polja na fundamentalnoj frekvenciji i polja na frekvenciji trećeg harmonika objašnjena je činjenica da se u snimljenim tranzijentima UV signal pojavljuje samo u negativnim vremenima. Modulacije intenziteta tranzijenata objašnjavaju se kvantnim udarima uzrokovanim koherentnim pobuđivanjem stanja fine strukture zbog vezanja spinskog i orbitalnog angularnog momenta. Period titraja određen je razlikom energija nivoa različitog spina. Titraji eksponencijalno trnu u vremenu određenom karakterističnim vremenom relaksacija koherencija. Osim na trofotonskim rezonancijama, kvantni udari uočeni su i na fundamentalnoj frekvenciji lasera kada je valna duljina lasera podešena na rezonantne linije kalijevog 4p dubleta. Mjerenjem perioda titraja stvorenog vibracijskog valnog paketa u natrijevim molekulama pobuđenog $A^1\Sigma_u^+$ stanja dobivene su energetske razlike susjednih vibracijskih nivoa. Iako su dobivena relativno dobra slaganja s ranije objavljenim rezultatima ova mjerenja pokazala su potrebu korištenja još kraćih femtosekundnih pulseva veće spektralne širine.

U radu se često spominje izraz ultrakratki puls ili signal pri čemu se misli na signale na vremenskoj skali ispod pikosekunde, premda se u nekim slučajevima može odnositi i na pikosekundne pulseve.

2 Osnovni pojmovi

2.1. Fizikalna svojstva ultrakratkih pulseva [10]

2.1.1. Kompleksna reprezentacija električnog polja

Za razliku od kontinuiranih izvora svjetlosti, čija vremenska ovisnost električnog polja ima oblik beskonačne sinusoide, femtosekundni pulsevi opisuju se umnoškom brzo oscilirajućeg sinusoidalnog vala nosioca i anvelope (ovojnice) pulsa. Opis pulsa pomoću anvelope koristan je jer femtosekundni pulsevi trajanja nekoliko desetaka femtosekundi u vidljivom području sadrže nekoliko stotina tisuća titraja vala nosioca. Kako bi se izbjegao vektorski karakter polja na početku se pretpostavlja laserski puls linearne polarizacije. Ova aproksimacija naziva se još i *skalarna aproksimacija*. Budući da se uglavnom razmatra vremenska promjena električnog polja, može se ignorirati prostorna ovisnost polja i električno polje pulsa zapisati u obliku:

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} \sqrt{I(t)} e^{i[\omega t - \phi(t)]} + c.c. \quad (2.1.1)$$

Iako su fizikalno mjerljive veličine realne, za opis femtosekundnih pulseva je puno pogodniji kompleksni oblik polja. Stoga se najčešće radi tzv. aproksimacija *analitičkog signala* te se u jednadžbi (2.1.1) zanemaruje kompleksno konjugirani dio. Kompleksnom amplitudom vala naziva se izraz:

$$E(t) \equiv \sqrt{I(t)} e^{i[-\phi(t)]}, \quad (2.1.2)$$

gdje je zanemaren brzo oscilirajući dio kompleksnog polja, te je ostatak još pomnožen s faktorom 2. Intenzitet polja tada je:

$$I(t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n |E(t)|^2. \quad (2.1.3)$$

Faza kompleksnog električnog polja pulsa dana je relacijom:

$$\phi(t) = -\arctan \left\{ \frac{\text{Im}[E(t)]}{\text{Re}[E(t)]} \right\}. \quad (2.1.4)$$

Prelazak iz vremenskog opisa u frekventni opis električnog polja pulsa omogućava Fourier transformacija:

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \mathcal{F}[\mathcal{E}(t)] = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}(t)e^{-i\omega t} dt. \quad (2.1.5)$$

Funkciju $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$ ¹ možemo rastaviti na umnožak spektralnog intenziteta (spektra) i dijela koji sadrži spektralnu fazu:

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \sqrt{S(\omega)}e^{-i\varphi(\omega)}. \quad (2.1.6)$$

Ovako definirani spektar tipično ima vrijednosti različite od nule za pozitivne i negativne frekvencije. Kako je $\mathcal{E}(t)$ realna funkcija, oba područja sadrže ekvivalentnu informaciju pa se obično spektar negativnih frekvencija zanemaruje. Definiranje anvelope električnog polja u frekventnoj domeni, koristeći realno umjesto kompleksnog polja u vremenskoj domeni, opravdava se činjenicom da ta definicija, uz zanemarivanje negativnih frekvencija, daje spektar pulsa smješten na stvarnim frekvencijama umjesto da je centriran oko nule, što bi se dobilo korištenjem kompleksne anvelope. Spektar i spektralna faza definirani su slijedećim izrazima:

$$S(\omega) = \left| \tilde{\mathcal{E}}(\omega) \right|^2, \quad (2.1.7)$$

$$\varphi(\omega) = -\arctan \left\{ \frac{\text{Im}[\tilde{\mathcal{E}}(\omega)]}{\text{Re}[\tilde{\mathcal{E}}(\omega)]} \right\}. \quad (2.1.8)$$

Budući da se ultrakratki pulsevi u frekventnoj domeni eksperimentalno najčešće karakteriziraju preko spektra kao funkcije valne duljine, a ne frekvencije, prikladno je još navesti i te transformacije za spektar i spektralnu fazu:

$$\varphi_\lambda(\lambda) = \varphi_\omega(2\pi c/\lambda), \quad (2.1.9)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} S_\lambda(\lambda) d\lambda = \int_{-\infty}^{\infty} S_\omega(\omega) d\omega = \int_{-\infty}^{\infty} S_\omega(2\pi c/\lambda) \frac{-2\pi c}{\lambda^2} d\lambda, \quad (2.1.10)$$

$$S_\lambda = S_\omega(2\pi c/\lambda) \frac{2\pi c}{\lambda^2}. \quad (2.1.11)$$

Trenutna frekvencija pulsa definira se kao:

$$\nu_{\text{tren}}(t) = \nu_0 - [d\phi/dt]/2\pi. \quad (2.1.12)$$

Kao što vremenska faza sadrži informaciju o ovisnosti frekvencije o vremenu, spektralna faza sadrži informaciju o ovisnosti vremena o frekvenciji. Stoga možemo definirati ovisnost grupnog kašnjenja (*group delay*) o frekvenciji:

$$t_{\text{grupno}}(\omega) = d\varphi/d\omega. \quad (2.1.13)$$

¹kroz rad će biti korišten simbol $\tilde{}$ za označavanje Fourier transformata

Kako je iz gornjih definicija očito da su faze derivabilne funkcije može ih se razviti u Taylorov red oko $t = 0$ i $\omega = \omega_0$:

$$\phi(t) = \phi_0 + t\phi_1 + t^2\phi_2/2 + \dots \quad (2.1.14)$$

$$\varphi(\omega) = \varphi_0 + (\omega - \omega_0)\varphi_1 + (\omega - \omega_0)^2\varphi_2/2 + \dots \quad (2.1.15)$$

Za dobro definirane pulseve dovoljno je u razvoju zadržati samo prvih par članova razvoja.

Treba napomenuti da je opis električnog polja pulsa pomoću vala nosioca i anvelope dobro definiran samo u slučaju kada je spektralna širina pulsa puno manja od frekvencije vala nosioca, tj. kada vrijedi:

$$\frac{\Delta\omega}{\omega_l} \ll 1. \quad (2.1.16)$$

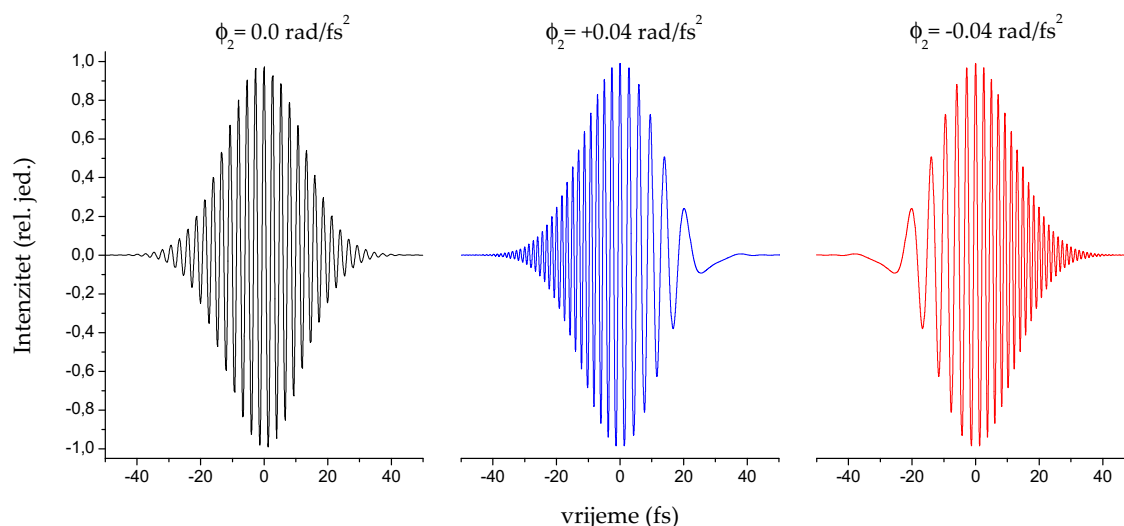
Odgovarajući uvjet za kompleksnu anvelopu polja je:

$$\frac{dE(t)}{dt} \ll \omega_l |E(t)|. \quad (2.1.17)$$

Uvjet 2.1.17 naziva se još i aproksimacijom sporo promjenjive anvelope (*slowly varying envelope approximation* - SVEA). Analogni uvjet postoji i u spektralnoj domeni (izraz 2.2.20).

Pogledajmo malo detaljnije značenje pojedinih članova u razvoju 2.1.14, odnosno 2.1.15. Prvi članovi, faze nultog reda, iste su u obje domene: $\phi_0 = \varphi_0$. Pomnožimo li neku funkciju sa konstantom i zatim napravimo Fourier transformaciju umnoška rezultat će biti Fourier transformat te funkcije pomnožen s tom istom konstantom. Ovaj član u razvoju često se naziva i apsolutnom fazom, a zapravo predstavlja relativnu fazu između anvelope i najbliže amplitude vala-nosioca (*carrier-envelope offset*). Apsolutna faza naročito je važna u radu sa tzv. frekventnim češljem, dok je u drugim područjima od manjeg značaja zbog činjenice da se pulsevi duljine više od nekoliko optičkih perioda ne razlikuju bitno prema vrijednostima apsolutne faze. Mijenjanjem faze prvog reda puls pomičemo u vremenu (linearna spektralna faza) ili mu pomičemo spektar (linearna vremenska faza) ne mijenjajući širinu anvelope. Slijedeći član u razvoju naziva se obično linearni cvrkut (*linear chirp*). Iz definicije trenutne frekvencije pulsa 2.1.12 jasno je da ovaj član u biti predstavlja linearnu promjenu frekvencije pulsa u vremenu (linearni cvrkut). Jednostavnije rečeno, kod pulseva sa linearnim cvrkutom spektar pulsa u nekoj točki prostora u vremenu se kontinuirano mijenja od manjih prema većim valnim duljinama, i obrnuto. Grafički je to predočeno na slici 2.1. Ultrakratki pulsevi prolaskom kroz različite materijale najčešće dobivaju pozitivni linearni cvrkut. Ta činjenica može predstavljati velike eksperimentalne probleme, pogotovo radi li se o pulsevima trajanja ispod 50 fs. Puls koji ima negativni linearni cvrkut skratiti će se u vremenu prolaskom kroz materijale jer se

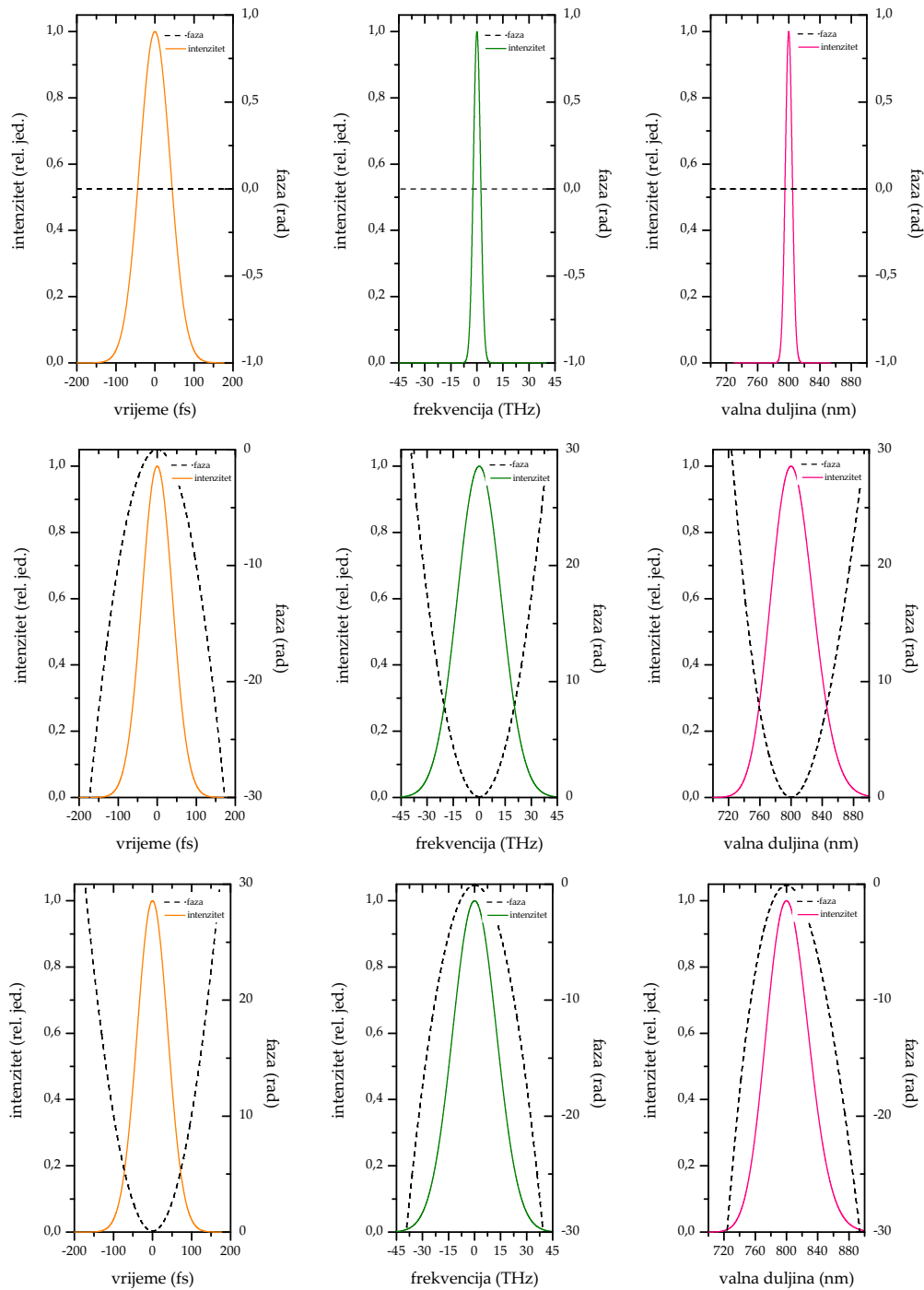
zbog disperzije materijala komponente manje valne duljine, koje su kod pulsa sa negativnim linearnim cvrkutom u prednjem dijelu pulsa, sporije gibaju od komponenti veće valne duljine koje dolaze kasnije. Zato dolazi do „stiskanja” pulsa u vremenskoj domeni. Faze višeg reda



Slika 2.1: Promjena frekvencije vala nosioca kod pulseva koji posjeduju fazu drugoga reda. Početni puls bez faze drugoga reda ima anvelopu Gaussovog oblika, trajanja $\tau_p=20$ fs, te centralnu valnu duljinu od 800 nm (lijevo). Nakon dodavanja negativnog linearnog cvrkuta valnom paketu pulsa valna duljina vala nosioca raste u vremenu, dok kod pozitivnog linearnog cvrkuta ona opada u vremenu.

najčešće se javljaju kao posljedica nelinearnih optičkih procesa i rezultiraju vrlo kompleksnim pulsevima. Tako je na primjer zbog samofaznog moduliranja (*self-phase modulation*) faza pulsa u vremenskoj domeni proporcionalna intenzitetu ulaznog pulsa u vremenu. I prostiranje pulseva optičkim vlaknima može uzrokovati disperziju višeg reda, koja se očituje u deformacijama faza višeg reda dok nelinearni optički procesi mogu još više izmijeniti oblik faza i intenziteta u obje domene. Na slici 2.2 prikazan je intenzitet polja te faze u vremenskoj i spektralnoj domeni za puls trajanja $\tau_p=92$ fs pretpostavljenog Gaussovog oblika anvelope što odgovara spektralnoj širini na polovici maksimuma (*full width at half maximum* - FWHM) intenziteta od ≈ 10 nm. Polje je centrirano na 800 nm. Odabrane vrijednosti odgovaraju tipičnom polju koje nastaje u femtosekundnom laserskom pojačalu *Spectra Physics Spitfire* kojim raspolaže *Laboratorij za femtosekundnu lasersku spektroskopiju* Instituta za fiziku. Na puls je zatim dodana pozitivna i negativna faza drugoga reda (linearni cvrkut). Jasno je uočljivo širenje spektra pulsa u oba slučaja: spektar koji bi odgovarao puno kraćem pulsu u vremenskoj domeni vezan je za polje jednako

onome koje pripada pulsu bez faze drugoga reda. To zapravo znači da je puls produljen u



Slika 2.2: Utjecaj faze drugoga reda na intenzitet i fazu pulsa u vremenskoj i spektralnoj domeni te spektraru pulsa u ovisnosti o valnoj duljini. Gore: Polje bez faze drugoga reda. Sredina: uključen pozitivni linearni cvrkut iznosa $-0.001 \text{ rad}/f s^2$. Dolje: uključen negativni linearni cvrkut iznosa $0.001 \text{ rad}/f s^2$. Puls je centriran na 800 nm sa anvelopom Gaussovog oblika te vremenskim trajanjem od $\tau_p=92 \text{ fs}$ što odgovara spektralnoj širini od $\approx 10 \text{ nm}$ (FWHM).

vremenu u odnosu na tzv. Fourier ograničeni (*Fourier limited*) puls istog spektra. Definicija Fourier ograničenog pulsa dana je u odlomku 2.1.2. Spektri i spektralne faze prikazani su i u

ovisnosti o valnoj duljini jer se eksperimentalni podaci najčešće prikazuju u tom obliku. Za potpuni vremenski opis laserskog pulsa potrebno je poznavati amplitudu i fazu njegovog električnog polja. Iako su obje informacije jednako važne, na neki je način faza pulsa ipak važnija. To se najbolje uočava kod ultrakratkih pulseva trajanja nekoliko optičkih perioda kod kojih su promjene u spektralnoj amplitudi (ti pulsevi imaju vrlo širok spektar) manje bitne za stabilnost od promjena u spektralnoj fazi. Na slici 2.3 kombinirana je dvodimenzionalna diskretna Fourier transformacija (DFT) dviju fotografija [11] pri čemu je u jednom slučaju izvršena inverzna transformacija uz korištenje DFT amplitude prve i DFT faze druge fotografije, dok se u drugom slučaju koristila DFT faza prve i DFT amplituda druge fotografije. Očito je kako rezultat kombiniranja puno više nalikuje fotografiji koja daje faznu informaciju, nego li onoj



Slika 2.3: Gore: originalne fotografije. Napravi li se njihova dvodimenzionalna Fourier transformacija (DFT) i uzmeme li se 2D DFT amplituda jedne te 2D DFT faza druge inverznom transformacijom dobivamo rezultat prikazan u donjem redu. Lijevo: amplituda lijevog originala povezana s fazom desnog originala. Desno: amplituda desnog originala povezana s fazom lijevog originala.

koja daje informaciju o amplitudi. Za potpunu karakterizaciju ultrakratkih pulseva potrebno je točno poznavanje faze električnog polja pulsa. Bez toga, „slika“ koju imamo o pulsu biti će

uvijek djelomično zamućena.

2.1.2. Definiranje vremenske i spektralne dimenzije pulsa

Najosnovnije informacije vezane uz opis ultrakratkog laserskog pulsa su njegovo vremensko trajanje i širina njegova spektra. Nažalost, ne postoje jedinstvene definicije tih veličina. U ovom odlomku opisane su najčešće korištene definicije širine pulsa u vremenskoj i spektralnoj domeni. Kako su vremenske i spektralne karakteristike električnog polja pulsa međusobno povezane Fourier transformacijama, trajanje pulsa $\Delta\tau_p$ i spektralna širina $\Delta\omega_p$ ne mogu se neovisno mijenjati. Ova tvrdnja može se izraziti i kroz matematičku nejednakost :

$$\Delta\tau_p\Delta\omega_p \geq 2\pi c_B, \quad (2.1.18)$$

gdje je c_B numerička konstanta koja ovisi o pretpostavljenom obliku pulsa. Najčešće se koristi definicija koja vrijeme trajanja pulsa definira kao širinu intenzitetskog profila na polovici maksimuma. Ova definicija je češća u eksperimentalnom opisu ultrakratkih pulseva. Nedostatak joj je što male promjene u obliku pulsa (sateliti) mogu dovesti do velikih promjena u trajanju pulsa. Poluširina $1/e$ (*half width 1/e*) odgovara širini intenzitetskog profila u točkama u kojima je intenzitet pao na vrijednost od $1/e$ (oko 0.36) u odnosu na maksimalnu vrijednost. Ova definicija je naročito prikladna ako puls ima oblik Gaussijana jer tada omogućava pregledniji zapis anvelope električnog polja pa se češće koristi kod teorijskog opisa ultrakratkih pulseva. Treća definicija širine pulsa vezana je uz korijen iz srednje vrijednosti kvadrata (*root-mean-square*) odstupanja od prosječnog vremena dolaska pulsa. Riječ je dakle o momentu drugoga reda oko srednjeg vremena dolaska pulsa:

$$\tau_{\text{rms}}^2 \equiv \langle t^2 - \langle t \rangle^2 \rangle = \langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2, \quad (2.1.19)$$

gdje je:

$$\langle t \rangle^n \equiv \int_{-\infty}^{\infty} t^n I(t) dt. \quad (2.1.20)$$

$I(t)$ je normaliziran kako bi integracija po intezitetu dala jedinicu. τ_{rms} je dobar indikator „krila“ pulsa jer mu bitno doprinose vrijednosti daleko od centra pulsa. Zadnja definicija naziva se ekvivalentna širina pulsa i definirana je kao:

$$\tau_e = \frac{1}{I_{\text{max}}} \int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt. \quad (2.1.21)$$

Ova definicija korisna je za pulseve komplicirane strukture.

Umnožak širine pulsa u vremenskoj i frekventnoj domeni (*time-bandwidth product* - TBP) je bezdimenzionalni parametar kojim se najlakše opisuju svojstva ultrakratkih pulseva. Mali TBP (blizu 1) indikator je jednostavne strukture, „čistog“ pulsa. TBP je i mjera broja podpulseva unutar pulsa, no pulsevi s linearnim cvrkutom mogu imati veliki TBP, a da pri tome sam puls nema nikakvu podstrukturu. Puls će uvijek biti najkraći, dakle najmanjeg TBP-a, ako mu je spektralna faza ravna bez obzira na njegovu spektralnu širinu. Isto tako, ravna vremenska faza daje najuži mogući spektar pulsa. Očito je da širina pulsa i funkcija intenzitetskog profila pulsa nisu egzaktne veličine, već ovise o izboru definicije širine pulsa i aproksimacije profila jednom od pogodnih funkcija. Kada je riječ odabiru funkcije intenzitetskog profila pulsa, najčešće se koriste dvije funkcije, Gaussova i tzv. Sech funkcija. Treba napomenuti da od svih standardnih profila Gaussov oblik ima najmanji TBP. Bitno je imati na umu da intenzitetska autokorelacija daje širinu pulsa veću od stvarne širine pulsa τ_p . U slučaju pretpostavljenog Gaussovog oblika anvelope širina je veća za najmanji faktor koji iznosi $\sqrt{2} = 1.41$. Stoga se ta funkcija često izbjegava prilikom računanja izmjerenih širina pulsa kako bi se „dobio“ što kraći puls. U tablici 2.1 navedeni su osnovne informacije za dvije najčešće reprezentacije ultrakratkih pulseva.

Naziv	Intenzitetski profil $I(t)$	τ_p FWHM	Spektralni profil $S(\omega)$	$\Delta\omega_p$ FWHM	c_B	TBP _{rms}
Gauss	$e^{-2(t/\tau_G)^2}$	$1.177\tau_G$	$e^{-\left(\frac{\Omega\tau_G}{2}\right)^2}$	$2.355/\tau_G$	0.441	0.5
Sech	$\text{sech}^2(t/\tau_s)$	$1.763\tau_s$	$\text{sech}^2\frac{\pi\Omega\tau_s}{2}$	$1.122/\tau_s$	0.315	0.525

Tablica 2.1: Parametri dvaju standardnih intenzitetskih profila pulsa.

2.1.3. Prostiranje pulsa kroz medij [12]

U ovom odlomku definirane su osnove jednostavne, linearne propagacijske teorije prostiranja pulseva medijem koja je korištena u proučavanju međudjelovanja femtosekundnih rezonantnih pulseva s rubidijevim parama niske koncentracije (nastajanje $0-\pi$ pulseva). Polazeći od Maxwellovih jednadžbi za uniformni nemagnetični medij valna jednadžba u Kartezijevim koordinatama ima oblik:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{\mathcal{E}}(x, y, z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(x, y, z, t). \quad (2.1.22)$$

Polarizacija \vec{P} opisuje utjecaj medija na električno polje pulsa kao i odziv medija na pobudu. Uobičajeno je polarizaciju podijeliti na linearni i nelinearni dio:

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL}. \quad (2.1.23)$$

Ukoliko se napravi linearna aproksimacija i zanemare se nelinearni efekti, te uz pretpostavku linearne polarizacije električnog polja pulsa koje je oblika ravnoga vala koji se prostire u z -smjeru dobiva se „reducirana valna jednadžba“:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathcal{E}(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^L(z, t). \quad (2.1.24)$$

Veza između linearne polarizacije i električnog polja dana je preko dielektrične susceptibilnosti χ , u frekventnoj domeni sa:

$$\tilde{P}^L(\omega, z) = \epsilon_0 \chi(\omega) \tilde{\mathcal{E}}(\omega, z). \quad (2.1.25)$$

U vremenskoj domeni linearna polarizacija i električno polje vezani su konvolucijskim integralom:

$$P^L(t, z) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^t dt' \chi(t') \mathcal{E}(z, t - t'). \quad (2.1.26)$$

Kako odziv medija na pobudu nije trenutna iz relacije 2.1.26 slijedi da $\chi(\omega)$ i $\epsilon(\omega)$ ne mogu biti konstante. Također slijedi da su $\chi(\omega)$ i $\epsilon(\omega)$ nužno kompleksne veličine. Fourier transformacijom 2.1.24 i korištenjem izraza 2.1.25 dobiva se konačni oblik valne jednadžbe:

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \omega^2 \epsilon(\omega) \mu_0 \right] \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) = 0, \quad (2.1.27)$$

uz

$$\epsilon(\omega) = [1 + \chi(\omega)] \epsilon_0. \quad (2.1.28)$$

Opće rješenje jednadžbe 2.1.27 je oblika:

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega, z) = \tilde{\mathcal{E}}(\omega, 0) e^{-ik(\omega)z}. \quad (2.1.29)$$

Valni vektor $k(\omega)$ određen je disperzijskom relacijom:

$$k(\omega) = \omega \sqrt{\epsilon(\omega) \mu_0} = \frac{\omega}{c} n(\omega), \quad (2.1.30)$$

gdje su $k(\omega)$, $\epsilon(\omega)$ i $n(\omega)$ kompleksne veličine. Realni i imaginarni dio kompleksnog indeksa loma n povezuju Kramers-Kronigove disperzijske relacije [13]:

$$\text{Re}(n(\omega)) = 1 + \frac{Nq^2}{2\epsilon_0 m} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}, \quad (2.1.31)$$

$$\text{Im}(n(\omega)) = \frac{\lambda\alpha(\omega)}{4\pi} = \frac{Nq^2\omega_0}{c\epsilon_0 m} \frac{\gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2} \quad (2.1.32)$$

gdje N označava broj pobuđenih dipola u jediničnom volumenu, q označava naboj induciranog dipola mase m , ω_0 je rezonantna frekvencija prijelaza a γ je faktor gušenja. $\alpha(\omega)$ označava koeficijent apsorpcije na frekvenciji ω , a λ je odgovarajuća valna duljina.

Disperzija i apsorpcija u mediju bitno utječu na prostranje ultrakratkih laserskih pulseva. Disperzija kroz frekventno ovisni realni dio indeksa loma $n(\omega)$ mijenja fazne i grupne brzine pojedinih frekventnih komponenti u spektru pulsa. Koeficijent apsorpcije $\alpha(\omega)$ također ovisi o frekvenciji, a vezan je s imaginarnim dijelom indeksa loma preko relacije 2.1.32. Oba fenomena mogu se uključiti uvrštavanjem u jednadžbu 2.1.29:

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\omega, z) &= \mathcal{E}(\omega, 0)e^{-\alpha(\omega)z/2}e^{in(\omega)kz} \\ &= \mathcal{E}(\omega, 0)e^{-\alpha(\omega)z/2}e^{in(\omega)\frac{\omega}{c}z}. \end{aligned} \quad (2.1.33)$$

Iz gornje relacije očito je da apsorpcija mijenja spektar pulsa, dok mu disperzija mijenja spektralnu fazu:

$$S(\omega, z) = S(\omega, 0)e^{-\alpha(\omega)z}, \quad (2.1.34)$$

$$\varphi(\omega, z) = \varphi(\omega, 0) + in(\omega)\frac{\omega}{c}z. \quad (2.1.35)$$

Apsorpcijom dijela spektra pulsa može doći do sužavanja spektra, što može proširiti puls u vremenu. S druge strane, utjecaj promjene spektralne faze najčešće se može aproksimirati davanjem faze drugog reda, tj. pozitivnog ili negativnog linearnog cvrkuta. Treba naglasiti da gornji opis, kao i Kramers-Kronig relacije vrijede u linearnom optičkom režimu.

Daljnje pojednostavljenje problema [12] svodi se na pretpostavku da se u frekventnoj i vremenskoj domeni anvelopa pulsa mijenja sporo pri prostiranju pulsa disperzivnim medijem putem čija duljina odgovara centralnoj valnoj duljini pulsa. Definira se sporo varirajuća anvelopa linearne polarizacije u vremenskoj domeni te se valna jednadžba 2.1.22 rješava u sustavu koji se giba grupnom brzinom pulsa (retardirajući sustav). Uz primjenu SVEA aproksimacije i u slučaju da je disperzija višeg reda ($n \geq 3$) zanemariva dolazi se do jednadžbe koja ima strukturu jednodimenzionalne Schrödingerove jednadžbe. Ako se uz linearnu polarizaciju u valnu jednadžbu 2.1.22 uvrsti i nelinearna polarizacija dolazi se do jednodimenzionalne nelinearne Schrödingerove jednadžbe. Ta jednadžba opisuje prostiranje optičkih pulseva disperzivnim nelinearnim medijem. Jednadžba opisuje širenje pulseva zbog disperzije kao i zbog samomodulacije faze pulsa [14]. Izrada teorijskog modela koji bi objasnio efekte prostiranja

pulsa nelinearnim medijem opsežan je posao i sam za sebe predstavlja dobru disertacijsku temu. Ovaj rad je ipak prvenstveno usmjeren na eksperimentalno proučavanje nelinearnog međudjelovanja laserskih izvora i alkalijskih para.

2.1.4. Dijagnostičke tehnike mjerenja ultrakratkih pulseva

Činjenica da ne postoji elektronički instrument dovoljno brz da može razlučiti signale na femtosekundnoj vremenskoj skali potakla je razvoj novih mjernih tehnika takvih signala od kojih ću navesti samo najjednostavnije i najraširenije. Pri mjerenju vremenske ovisnosti nekog signala uvijek je nužno imati „okidač“ po mogućnosti kraći od samog signala. Za mjerenje ultrakratkih pulseva stoga je prirodno pokušati korelirati puls sa samim sobom jer je upravo puls najkraći „okidač“ kojim se raspolaže. Takva korelacija naziva se autokorelacijom, dok se korelacija između dva različita pulsa (ili općenito signala), gdje je npr. jedan od pulseva proširen u vremenu prolaskom kroz neki materijal, naziva međukorelacijom (*cross-correlation*).

Mjerenje intenzitetske autokorelacije ostvaruje se dijeljenjem pulsa koji se želi izmjeriti u dvije replike koje se zatim prostorno preklope u nekom nelinearnom mediju sa trenutnim odzivom kao što je npr. kristal za stvaranje drugog harmonika (*second harmonic generation* - SHG). Ukoliko je moguće kontinuirano mijenjati vrijeme dolaska jednog pulsa u točku preklapanja u odnosu na drugi puls, na frekvenciji drugog harmonika ulaznog signala električno polje biti će oblika:

$$E_{\text{sig}}^{\text{SHG}}(t, \tau) \propto E(t)E(t - \tau), \quad (2.1.36)$$

gdje je τ razlika u vremenu dolaska pulseva. Intenzitet koji se mjeri odgovara umnošku dvaju intenziteta:

$$I_{\text{sig}}^{\text{SHG}}(t, \tau) \propto I(t)I(t - \tau). \quad (2.1.37)$$

Budući da detektor koji mjeri izlazni signal nema dovoljnu vremensku rezoluciju, izmjerena intenzitetska autokorelacija ima matematički zapis:

$$A^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt. \quad (2.1.38)$$

Svojstva autokorelacije (skraćeno od intenzitetske autokorelacije) da ima uvijek maksimum u $\tau = 0$ i da je simetrična znače da se autokorelacijom ne može razlučiti puls od njegove zrcalne slike. Pitanje koje se nameće je može li se iz autokorelacije dobiti informacija o intenzitetu $I(t)$?

Primjeni li se autokorelacijski teorem:

$$\left| \tilde{E}(\omega) \right|^2 = \mathcal{F} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} E(t) E^*(t - \tau) dt \right\} \quad (2.1.39)$$

na funkciju intenzitetske autokorelacije imamo:

$$\tilde{A}^{(2)}(\omega) = \left| \tilde{I}(\omega) \right|^2. \quad (2.1.40)$$

Iz jednadžbe 2.1.40 slijedi da je Fourier transformat autokorelacije $\tilde{A}^{(2)}(\omega)$ realna pozitivna funkcija. Kako $\tilde{A}^{(2)}(\omega)$ odgovara kvadratu apsolutne vrijednosti Fourier transformata od $I(t)$, znači da intenzitetska autokorelacija daje samo amplitudu ali ne i fazu Fourier transformata od $I(t)$. Ovo je primjer općenito nerješivog jednodimenzionalnog problema izvlačenja faze (*one-dimensional phase retrieval problem*).

Druga informacija koju je moguće dobiti o pulsu odnosi se na njegov spektar, odnosno intenzitet $S(\omega)$ i fazu u frekventnoj domeni. Spektralni intenzitet pulsa je relativno jednostavno izmjeriti i za to su dovoljni spektrometri umjerene rezolucije (≈ 0.1 nm). Za veće rezolucije moguće je koristiti interferometre. S druge strane, mjerenje spektralne faze pulsa iznimno je zahtjevno i ograničenih mogućnosti. Problem leži u činjenici da za dani spektralni intenzitet pulsa postoji beskonačan broj mogućih pulseva, čak i uz pretpostavku konačnog trajanja pulsa. Problem izvlačenja faze iz spektralnog intenziteta također spada u klasu jednodimenzionalnog problema izvlačenja faze. Između ostalog, teškoće stvaraju i tzv. trivijalne nejednoznačnosti koje uključuju funkcije čiji Fourier transformat daje isti spektar kao i funkcija $E(t)$. To su funkcije:

$$E(t)e^{i\varphi_0},$$

$$E(t - t_0),$$

$$E^*(-t),$$

koje redom odgovaraju pomaku apsolutne faze, translaciji u vremenu i vremenskoj inverziji. No čak i ako se te nejednoznačnosti zanemare može se pokazati [15, 16] da spektralna faza pulsa ne može biti jednoznačno određena iz poznavanja spektra pulsa.

Osim intenzitetske autokorelacije drugoga reda (nazvane tako jer koristi nelinearne procese drugoga reda) upotrebljava se i intenzitetska autokorelacija trećega reda. U tom slučaju dolazi do narušenja simetrije autokorelacije oko $\tau = 0$ te se uklanja neodređenost smjera vremena prisutna u autokorelaciji drugoga reda. Neki od fizikalnih procesa koji se koriste

za stvaranje signala uključuju polarizacijsko uzorkovanje (*polarization gating*), samoraspršenje (*self-diffraction*) i stvaranje trećeg harmonika (*third-harmonic generation*).

Međukorelacija $C^{(2)}(\tau)$ dana je izrazom:

$$C^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I_g(t - \tau)dt, \quad (2.1.41)$$

gdje je $I(t)$ intenzitet pulsa koji mjerimo a $I_g(t)$ je intenzitet poznatog pulsa kojim se uzorkuje (*gate* puls) korelaciju. Što je $I_g(t)$ kraći to je točnost dobivanja inteziteta iz međukorelacije veća.

Gore opisane korelacije spadaju u grupu intenzitetskih korelacija. Osim njih, postoje i interferometrijske korelacije. Interferometrijska autokorelacija drugoga reda proporcionalna je funkciji:

$$G^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \langle |[E_1(t - \tau) + E_2(t)]^2|^2 \rangle dt. \quad (2.1.42)$$

Uvrštavanjem električnog polja opisanog anvelopom, valom nosiocem i fazom, te nakon usrednjavanja dobiva se:

$$G^{(2)}(\tau) = A(\tau) = A^{(0)}(\tau) + \text{Re}[A^{(1)}(\tau)e^{-i\omega_l\tau}] + \text{Re}[A^{(2)}(\tau)e^{-2i\omega_l\tau}], \quad (2.1.43)$$

gdje su

$$\begin{aligned} A^{(0)}(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} [E_1^4(t - \tau) + E_2^4(t) + 4E_1^2(t - \tau)E_2^2(t)] dt, \\ A^{(1)}(\tau) &= 4 \int_{-\infty}^{\infty} E_1(t - \tau)E_2(t) [E_1^2(t - \tau) + E_2^2(t)] e^{i[\varphi_1(t-\tau) - \varphi_2(t)]} dt, \\ A^{(2)}(\tau) &= 2 \int_{-\infty}^{\infty} E_1^2(t - \tau)E_2^2(t) e^{2i[\varphi_1(t-\tau) - \varphi_2(t)]} dt. \end{aligned} \quad (2.1.44)$$

Gornja dekompozicija otkriva da se korelacija sastoji od tri različite frekvencijske komponente postavljene oko nulte frekvencije, ω_l i $2\omega_l$. Najčešće se detektira samo prvi član u razvoju $A^{(0)}(\tau)$ koji se sastoji od člana koji definira pozadinski intenzitet i bezpozadinske intenzitetske korelacije. Bitno svojstvo interferometrijske autokorelacije jest da signal, izuzev na rubovima ne pada u nulu (nije *background-free*), te da omjer maksimuma signala i pozadinskog signala iznosi 8 naspram 1.

Nadogradnja gore opisanih tehnika ostvarena je razvojem metode frekventno-razlučivog optičkog uzorkovanja (*frequency-resolved optical gating* - FROG) koja se najkraće može opisati kao mjerenje spektra autokorelacijskog signala ultrakratkog pulsa. Ta metoda omogućava da se,

pomoću iterativnog algoritma, dobije informacija o amplitudi i fazi električnog polja pulsa. Metoda se detaljno opisuje u 4. poglavlju gdje je i konkretno primjenjena na karakterizaciju pulseva nakon rezonantne interakcije s rubidijevim parama.

2.2. Nelinearna optika [14]

Valna jednačba 2.1.22 opisuje kroz induciranu polarizaciju utjecaj elektromagnetskog vala na medij i medija na val. Osim već spomenutih linearnih optičkih efekata sadržanih u linearnom dijelu polarizacije, pri velikim intenzitetima upadnog vala javljaju se i nelinearni optički efekti kroz nelinearni dio polarizacije. Razvije li se polarizaciju u red, u skalarnoj aproksimaciji:

$$\mathcal{P} = \epsilon_0[\chi^{(1)}\mathcal{E} + \chi^{(2)}\mathcal{E}^2 + \chi^{(3)}\mathcal{E}^3 + \dots] \quad (2.2.1)$$

gdje je $\chi^{(n)}$ ($n=1, 2, 3, \dots$) električna susceptibilnost n -tog reda, u valnoj jednačbi će zbog nezanemarivih iznosa susceptibilnosti viših redova biti prisutni članovi proporcionalni n -toj potenciji električnog polja. Ti članovi induciraju polarizaciju u mediju koja stvara elektromagnetske valove frekvencija titranja različitih od frekvencije ulaznog elektromagnetskog vala. Za provjeru je dovoljno raspisati umnožak električnog polja u dva karakteristična primjera.

2.2.1. Nelinearni optički procesi drugog i trećeg reda

Pogleda li se, na primjer, kvadrat vremenskog dijela realnog električnog polja:

$$\mathcal{E}^2(t) = \frac{1}{4}E^2(t)e^{2i\omega t} + \frac{1}{2}E(t)E^*(t) + \frac{1}{4}E^{*2}(t)e^{-2i\omega t}, \quad (2.2.2)$$

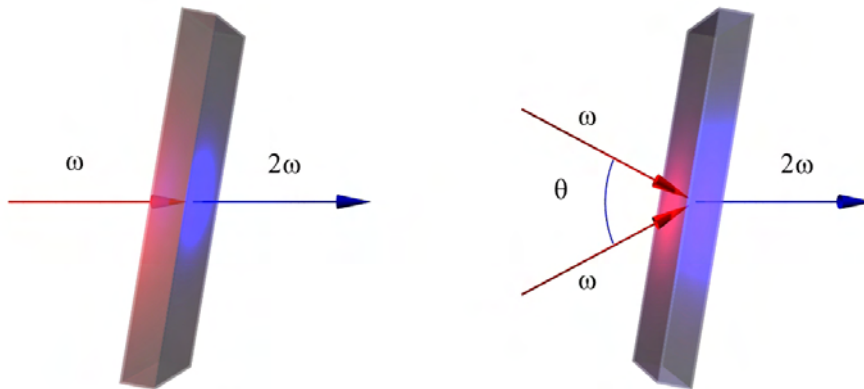
u izrazu se nalazi doprinos koji oscilira frekvencijom 2ω i doprinos koji ne ovisi o vremenu. Prvi dio je odgovoran za proces stvaranja drugog harmonika u nelinearnom mediju dok se drugi naziva optičko ispravljanje (*optical rectification*). Uzme li se u obzir i prostorna ovisnost vektora električnog polja lasera tada međudjelovanje dva laserska polja:

$$\mathcal{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2}E_1(\vec{r}, t)e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + \frac{1}{2}E_2(\vec{r}, t)e^{i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} + c.c. \quad (2.2.3)$$

sa nelinearnim medijem uzrokuje polarizaciju u mediju proporcionalnu sa:

$$\begin{aligned}
 \mathcal{E}^2(\vec{r}, t) = & \frac{1}{4} E_1^2 e^{2i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \\
 & + \frac{1}{2} E_1 E_1^* + \frac{1}{4} (E_1^*)^2 e^{-2i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \\
 & + \frac{1}{4} E_2^2 e^{2i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} + \frac{1}{2} E_2 E_2^* \\
 & + \frac{1}{4} (E_2^*)^2 e^{-2i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \\
 & + \frac{1}{2} E_1 E_2 e^{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} \\
 & + \frac{1}{2} E_1^* E_2^* e^{-i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} \\
 & + \frac{1}{2} E_1 E_2^* e^{i[(\omega_1 - \omega_2)t - (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} \\
 & + \frac{1}{2} E_1^* E_2 e^{-i[(\omega_1 - \omega_2)t - (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} .
 \end{aligned} \tag{2.2.4}$$

Pogledaju li se ponašanja pojedinih članova u jednažbi 2.2.4 vidimo da imamo članove koji titraju frekvencijama $2\omega_1$ i $2\omega_2$ (SHG), ali i članove koji titraju frekvencijama $\omega_1 + \omega_2$ i $\omega_1 - \omega_2$. Ovi potonji odgovorni su za nelinearne procese stvaranja sume i razlike frekvencija (*sum-frequency generation* - SFG, i *difference-frequency generation* - DFG). Bitno je također uočiti da će se stvoreni signali prostirati u smjerovima $\vec{k}_1 + \vec{k}_2$ odnosno $\vec{k}_1 - \vec{k}_2$ koji su različiti u odnosu na smjerove kojima dolaze pobudni valovi, što olakšava njihovu detekciju zbog velike razlike u intenzitetima u odnosu na intezitet pobude. Primjer stvaranja razlike frekvencija (DFG) je efekt optičkog



Slika 2.4: Stvaranje drugog harmonika u kolinearnoj konfiguraciji za koju je dovoljno samo jedno polje i nekolinearnoj konfiguraciji gde se signal stvara u području preklapanja i čiji je smjer prostiranja drugačiji od smjera prostiranja pobudnih zraka.

parametarskog pojačanja (*optical parametric amplification* - OPA) za stvaranje nižih frekvencija ω_2 i $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ iz pobude frekvencije ω_1 uz prisutnost dodatnog polja na frekvenciji ω_2 koje

inducira proces stimulirane emisije. Na tom procesu bazira se rad optičkih parametarskih oscilatora. Iako jednačba 2.2.4 predviđa stvaranje četiri signala na isto toliko različitih frekvencija, tipično se zbog uvjeta faznog usklađivanja (*phase matching*) pojavljuje samo jedan od njih. Porijeklo uvjeta faznog usklađivanja biti će objašnjeno nešto kasnije. Na slici 2.4 prikazano je kolinearno i nekolinearno stvaranje drugog harmonika u nelinearnom mediju. Jednačba 2.2.1 implicitno pretpostavlja trenutni odziv medija na pobudu, tj. da polarizacija \mathcal{P} u trenutku t ovisi samo o trenutnoj jakosti električnog polja. Trenutni odziv medija također, kroz Kramers-Kronigove relacije (2.1.31, 2.1.32), pretpostavlja da u mediju nema niti disperzije niti apsorpcije (*lossless*). U protivnom susceptibilnosti ne bi bile konstante već funkcije frekvencije upadnih valova. Uključi li se vektorska priroda polarizacije i električnog polja susceptibilnosti postaju tenzorske veličine. Bitno je napomenuti i da je susceptibilnost drugog reda, odgovorna za stvaranje drugih harmonika, prisutna jedino u necentrosimetričnim medijima, tj. onima koji ne posjeduju centar inverzije. Naprotiv, procesi trećega reda prisutni su i u centrosimetričnim i necentrosimetričnim medijima. Razvoj 2.2.1 ne mora uvijek konvergirati. U takvim slučajevima potrebno je naći druge procedure za opis odnosa odziva materijala na primjenjeno električno polje. Primjeri u kojima razvoj 2.2.1 ne mora konvergirati su rezonantna interakcija popraćena efektom saturacije i nerezonantna interakcija sa pobudnim poljem usporedivim sa karakterističnim jakostima električnih polja unutar atoma. U slučaju rezonantne interakcije koeficijent apsorpcije α povezan je s intenzitetom zračenja preko izraza:

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s}, \quad (2.2.5)$$

gdje je α_0 koeficijent apsorpcije za slučaj slabog polja, a I_s se naziva saturacijskim intenzitetom. Ako nazivnik u 2.2.5 razvijemo u red imamo:

$$\alpha = \alpha_0 [1 - I/I_s + (I/I_s)^2 - (I/I_s)^3 + \dots]. \quad (2.2.6)$$

Jasno je da će red konvergirati samo u slučaju da je $I < I_s$ te će se samo u tom slučaju saturacijska apsorpcija moći opisati razvojem 2.2.1.

Nelinearni efekti trećega reda mogu se raspisati slično izrazu 2.2.4. Zajednički naziv svim procesima trećeg reda je četverovalno miješanje (*four-wave mixing*), jer se u nelinearnom mediju stvara četvrti val miješanjem triju ulaznih valova. Pretpostavi li se da je pobudni val monokromatski te zanemari prostorna ovisnost imamo:

$$\mathcal{P}^{(3)}(t) = \frac{1}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}E^3(t)e^{i3\omega t} + \frac{3}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}E^3(t)e^{i\omega t} + c.c. \quad (2.2.7)$$

Prvi član u 2.2.7 opisuje proces stvaranja trećeg harmonika (THG). Drugi član opisuje nelinearni doprinos polarizaciji na frekvenciji pobudnog vala što zapravo predstavlja nelinearni doprinos indeksu loma. Taj doprinos može se opisati izrazom (optički Kerr efekt):

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t), \quad (2.2.8)$$

gdje n_0 predstavlja linearni („obični“) indeks loma, a

$$n_2 = \frac{3\pi}{n_0^2 c \epsilon_0} \chi^{(3)} \quad (2.2.9)$$

je optička konstanta koja karakterizira jakost nelinearnosti dok $I(t)$ označava intenzitet upadnog zračenja. Jedna od fizikalnih pojava vezanih uz intenzitetski ovisan indeks loma je proces samofokusiranja (*self-focusing*) intenzivnog snopa zračenja koje ima neuniformni prostorni profil zbog kojega pojedini dijelovi snopa osjećaju različiti, intenzitetski ovisan, indeks loma. Ukoliko je $n_2 > 0$ doći će do samofokusiranja snopa u mediju. U općenitom slučaju miješanja triju različitih valova raspisivanjem $\mathcal{E}^3(\vec{r}, t)$ nalaze se 44 komponente različitih frekvencija (ako je $\omega \neq -\omega$). Procesi vezani za kombinacije u kojima se pojavljuje jedno kompleksno konjugirano polje, s negativnim vrijednostima \vec{k} i ω , često se nazivaju efektima inducirane rešetke. Dva nekonjugirana polja u mediju induciraju sinusoidalne prostorne modulacije svojstava medija. Proces se tada može modelirati kao raspršenje trećeg, konjugiranog, polja na tako induciranoj rešetci. Jedna od primjena efekta inducirane rešetke, između ostalog korištena i u dijagnostici ultrakratkih pulseva FROG, je tzv. polarizacijsko uzorkovanje (*polarization gating*). Princip je jednostavan. Od dva ulazna snopa jedan je recimo horizontalno polariziran, a drugi je polariziran pod kutem od 45° . Ako ovaj drugi rastavimo na dvije međusobno okomite komponente imamo tri ulazna polja. Polje horizontalno polariziranog snopa i horizontalna komponenta iz drugog snopa induciraju rešetku na kojoj se raspršuje vertikalna komponenta iz drugog snopa u smjeru prvog snopa. Ta komponenta inducira polarizaciju ortogonalnu na i kolinearnu sa polarizacijom prvog snopa. Efekt se može uočiti ako se na smjer prvog snopa stavi analizador okomit na polarizaciju tog snopa. Najveća prednost ove metode je velika osjetljivost i intuitivnost jer je smjer vremena dobro definiran. Također, metoda nije ograničena spektralnom širinom pulsa koji se mjeri.

Na prostiranje ultrakratkih pulseva u disperzivnom nelinearnom optičkom mediju bitno utječe proces samomodulacije faze pulsa. Samomodulacija faze pulsa promjena je faze optičkog pulsa zbog nelinearnog indeksa loma sredstva. Taj proces je naročito izražen kod pulseva vi-

sokih vršnih intenziteta. Električno polje pulsa dano je izrazom:

$$\mathcal{E}(z, t) = \mathcal{A}(z, t)e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + c.c. \quad (2.2.10)$$

Promatramo prostiranje pulsa medijem karakteriziranim nelinearnim indeksom loma opisanim izrazom 2.2.8. Pretpostavljamo da medij ima trenutni odziv na promjenu intenziteta pulsa te da je medij dovoljno kratak da ne dolazi do znatnije promjene oblika pulsa. Jedini efekt medija na puls je promjena faze iznosa:

$$\phi_{NL}(t) = -n_2 I(t) \omega_0 L / c. \quad (2.2.11)$$

Zbog vremenski ovisne faze pulsa dolazi do mijenjanja spektra pulsa. Najčešće dolazi do spektralnog širenja pulsa. Trenutna frekvencija pulsa opisana je s:

$$\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t) \quad (2.2.12)$$

gdje je:

$$\delta\omega(t) = \frac{d}{dt} \phi_{NL}(t). \quad (2.2.13)$$

Koncept trenutne frekvencije valjan je sve dok vrijedi i SVEA aproksimacija. Ako se pretpostavi *sech* oblik pulsa:

$$I(t) = I_0 \operatorname{sech}^2(t/\tau_0) \quad (2.2.14)$$

nelinearni pomak faze biti će dan izrazom:

$$\phi_{NL}(t) = -n_2 \frac{\omega_0}{c} L I_0 \operatorname{sech}^2(t/\tau_0). \quad (2.2.15)$$

Uvrštavanjem 2.2.15 u 2.2.13 promjena trenutne frekvencije određena je izrazom:

$$\delta\omega(t) = 2n_2 \frac{\omega_0}{c\tau_0} L I_0 \operatorname{sech}^2(t/\tau_0) \tanh(t/\tau_0). \quad (2.2.16)$$

Gledano u vremenu, ako je n_2 pozitivan prednji dio pulsa biti će pomaknut u spektru prema nižim frekvencijama, dok će stražnji dio biti pomaknut prema višim frekvencijama. Ako je n_2 negativan vremenski slijed pomaka frekvencija je okrenut.

2.2.2. Rješavanje nelinearne valne jednadžbe

Rješavanje valne jednadžbe zahtjeva neke aproksimacije. Najprije pretpostavimo da se frekvencije daleke od frekvencije vala nosioca mogu zanemariti jer nisu fazno usklađene s poljima i induciranim polarizacijama. Također možemo uzeti da su nelinearni efekti dovoljno slabi da

ne utječu bitno na pobudni signal. Sljedeća, vrlo važna aproksimacija je aproksimacija sporo promjenjive anvelope, čiji je zapis u vremenskoj domeni dan sa 2.1.17. Isti uvjet u spektralnoj domeni može se izvesti razvijemo li propagacijsku konstantu 2.1.30 u red oko frekvencije vala nosioca ω_l :

$$k(\omega) = k(\omega_l) + \delta k = k(\omega_l) + \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_l} (\omega - \omega_l) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2k}{d\omega^2} \right|_{\omega_l} (\omega - \omega_l)^2 + \dots \quad (2.2.17)$$

Rješenje valne jednadžbe, jednadžbu 2.1.29, možemo zapisati u obliku:

$$\mathcal{E}(\omega, z) = \mathcal{E}(\omega, 0) e^{-ik(\omega)z} e^{-i\delta k z}. \quad (2.2.18)$$

Pretpostavimo li da vrijedi:

$$\frac{\Delta k}{k_l} \ll 1 \quad (2.2.19)$$

i

$$\left| \frac{d}{dz} E(\omega, z) \right| \ll k_l |E(\omega, z)|, \quad (2.2.20)$$

možemo definirati sporo varirajuću amplitudu polja:

$$E(\omega, z) = \mathcal{E}(\omega + \omega_l, 0) e^{-i\delta k z}. \quad (2.2.21)$$

Napravimo li Fourier transformat od $E(\omega, z)$ definiran u 2.2.18 električno polje ima oblik:

$$\mathcal{E}(t, z) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega E(\omega, 0) e^{-i\delta k z} e^{i(\omega - \omega_l)t} \right\} e^{i(\omega_l t - k_l z)} \quad (2.2.22)$$

što se može napisati i kao:

$$\mathcal{E}(t, z) = \frac{1}{2} E(t, z) e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c.c. \quad (2.2.23)$$

gdje je s indeksom 0 označen izlazni signal nakon nelinearnog međudjelovanja. Napišemo li polarizaciju koristeći sporo varirajuću anvelopu, uz pretpostavku da polarizacija stvara svjetlost frekvencije jednake frekvenciji pobude i u istom smjeru određenom vektorom k_l :

$$\mathcal{P}(t, z) = \frac{1}{2} P(t, z) e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c.c. \quad (2.2.24)$$

možemo raspisati pojedine derivacije valne jednadžbe:

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{2} \left[\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + 2i\omega_0 \frac{\partial E}{\partial t} - \omega_0^2 E \right] e^{i(\omega_l t - k_l z)} + c.c., \quad (2.2.25)$$

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z^2} = \frac{1}{2} \left[\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - 2ik_0 \frac{\partial E}{\partial z} - k_0^2 E \right] e^{i(\omega_l t - k_l z)} + c.c., \quad (2.2.26)$$

$$\frac{\partial \mathcal{P}}{\partial t^2} = \frac{1}{2} \left[\frac{\partial^2 P}{\partial t^2} + 2i\omega_0 \frac{\partial P}{\partial t} - \omega_0^2 P \right] e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c.c. \quad (2.2.27)$$

U gornjim izrazima možemo zanemariti članove s drugim derivacijama u vremenskoj i frekventnoj domeni (SVEA). Kod polarizacije, koja je puno manja veličina od električnog polja možemo zanemariti i prvu derivaciju. Valna jednačba sada postaje:

$$\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E}{\partial t} = -i \frac{\mu_0 \omega_0^2}{2k_0} P. \quad (2.2.28)$$

Jednačba 2.2.28 dodatno se pojednostavljuje ukoliko se ishodište vremenske osi postavi u centar pulsa. Konačni oblik je:

$$\frac{\partial E}{\partial z} = -i \frac{\mu_0 \omega_0^2}{2k_0} P. \quad (2.2.29)$$

Rješenje jednačbe je 2.2.29 je:

$$E(t, z) = -i \frac{\mu_0 \omega_0^2}{2k_0} P z \quad (2.2.30)$$

i pokazuje da će polje, zbog inducirane polarizacije, rasti linearno s prostiranjem kroz nelinearni medij.

2.2.3. Fazno usklađivanje

Jedna od pretpostavki od koje smo krenuli u izvođenje jednačbe 2.2.29 bila je da električno polje i polarizacija dijele valni vektor k_l , dakle da su fazno usklađeni. Ta pretpostavka je u biti dosta nerealna. Elektromagnetski val nastao u nelinearnom mediju vremenom prestaje biti u fazi s induciranom polarizacijom. Tada će se val koji nastaje kasnije poništiti s valom koji je prethodno nastao, a koji se prostire u istom smjeru. To je moguće izbjeći jedino ako inducirana polarizacija i valovi koji iz nje nastaju imaju iste fazne brzine. Kako su im frekvencije nužno iste, moraju imati i iste valne vektore da bi im fazne brzine $v_f = \omega/k$ bile jednake. Pretpostavimo li da je valni vektor k_l elektromagnetskog vala različit od valnog vektora k_p inducirane polarizacije i uvrstimo li tako definirano električno polje i polarizaciju u 2.2.29 dobivamo:

$$2ik_0 \frac{\partial E}{\partial z} e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} = \mu_0 \omega_0^2 P e^{i(\omega_0 t - k_p z)} \quad (2.2.31)$$

ili skraćeno:

$$\frac{\partial E}{\partial z} = -i \frac{\mu_0 \omega_0^2}{2k_0} P e^{i\Delta k z}, \quad (2.2.32)$$

gdje je

$$\Delta k \equiv k_0 - k_p. \quad (2.2.33)$$

Rješenje jednačbe 2.2.32 ima oblik:

$$E(L, t) = -i \frac{\mu_0 \omega_0^2}{k_0} P L \operatorname{sinc}\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) e^{i\Delta k L/2}. \quad (2.2.34)$$

Izračuna li se intenzitet induciranog elektromagnetskog vala nakon prostiranja nelinearnim medijem duljine L dobiva se izraz:

$$I(L, t) = -i \frac{c\mu_0\omega_0^2}{4} |P|^2 L^2 \operatorname{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right). \quad (2.2.35)$$

Kako funkcija $\operatorname{sinc}(x)$ ima maksimum u $x = 0$ nelinearni efekti su najizraženiji za $\delta k = 0$. Uvjeti faznog usklađivanja za slučaj miješanja N valova dani su sa:

$$\omega_0 = \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \dots \pm \omega_N \quad (2.2.36)$$

$$\vec{k}_0 = \pm\vec{k}_1 \pm \vec{k}_2 \pm \dots \pm \vec{k}_N. \quad (2.2.37)$$

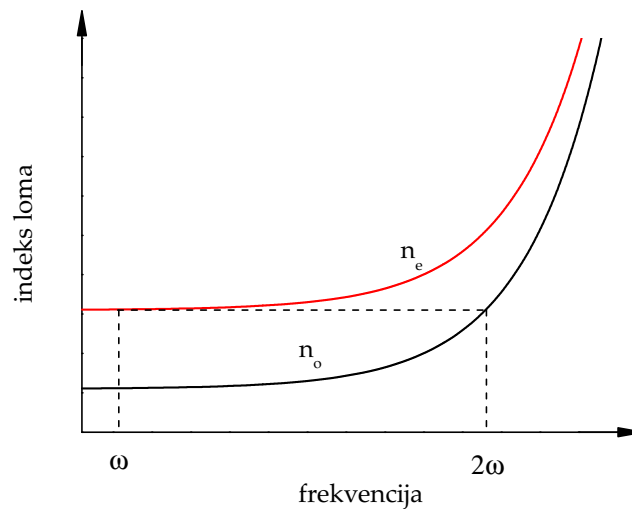
U slučaju stvaranja drugog harmonika u kolinearnoj geometriji (slika 2.4) upadna zraka (često se još naziva i fundamentalna) ima valni vektor $k_1 = \omega_1 n(\omega_1)/c_0$. Drugi harmonik ima frekvenciju $\omega_0 = 2\omega_1$ i valni vektor $k_0 = 2\omega_1 n(2\omega_1)/c_0$, a valni vektor polarizacije je $k_p = 2k_1 = 2\omega_1 n(\omega_1)/c_0$. Uvjet faznog usklađivanja:

$$k_0 = 2k_1 \quad (2.2.38)$$

analogan je uvjetu:

$$n(\omega_1) = n(2\omega_1). \quad (2.2.39)$$

Ovaj zadnji uvjet teško je zadovoljiti jer, zbog disperzije, materijali imaju frekventnu ovisnost



Slika 2.5: Disperzija indeksa loma kod pozitivnog jednoosnog kristala. Za slučaj negativnog jednoosnog kristala ordinarni indeks loma n_o je veći od ekstraordinarnog indeksa n_e

indeksa loma. Ipak, u materijalima u kojima je prisutan efekt dvoloma (*birefringence*) fazno

usklađivanje je moguće jer međusobno okomite polarizacije, tj. ordinarna i ekstraordinarna zraka, osjećaju različiti indeks loma te je u određenom pojasu frekvencija fazno usklađivanje ostvarivo (slika 2.5). Za nekolinearnu geometriju stvaranja drugog harmonika uvjet faznog usklađivanja postaje:

$$2k_1 \cos(\theta/2) = k_0, \quad (2.2.40)$$

odnosno

$$n(\omega_1) \cos(\theta/2) = n(2\omega_1). \quad (2.2.41)$$

Gore opisano fazno usklađivanje kod kojeg je polarizacija valova niže frekvencije (bilo ulaznih ili izlaznih) jednaka naziva se fazno usklađivanje tipa I. Kod faznog usklađivanja tipa II polarizacije valova niže frekvencije je međusobno okomita. U primjeru stvaranja drugog harmonika to znači da međusobno ortogonalne ulazne polarizacije stvaraju signal na frekvenciji drugog harmonika čija je polarizacija zakrenuta u odnosu na polarizacije ulazne i izlazne zrake za kut od 45° . Kod nelinearnih procesa trećeg reda fazno usklađivanje se najčešće postiže puno lakše nego li kod procesa drugog reda jer na raspolaganju imamo još jedan valni vektor.

Iz slike 2.5 očito je da je fazno usklađivanje moguće trenutno ostvariti samo za jednu frekvenciju. Za metodu frekventno razlučivog uzorkovanja (FROG) pomoću procesa stvaranja drugog harmonika (SHG) u nelinearnom kristalu bitno je da se SHG proces ostvaruje trenutno za sve frekvencije prisutne u pulsu koji mjerimo. Taj problem je naročito izražen kod ultrakratkih pulseva čija spektralna širina može biti reda veličine $\Delta\lambda_{\text{FWHM}} \propto 100 \text{ nm}$. Zato je korisno procijeniti raspon valnih duljina koje je moguće fazno uskladiti u SHG procesu. Ako pretpostavimo da je egzaktno fazno usklađivanje postignuto za valnu duljinu λ_0 razliku valnih vektora Δk možemo napisati kao:

$$\begin{aligned} \Delta k(\lambda) &= 2k_1 - k_2 \\ \Delta k(\lambda) &= \left[2\pi \frac{n(\lambda)}{\lambda} \right] - \left[2\pi \frac{n(\lambda/2)}{\lambda/2} \right] \\ \Delta k(\lambda) &= \frac{4\pi}{\lambda} [n(\lambda) - n(\lambda/2)]. \end{aligned} \quad (2.2.42)$$

Razvijemo li u red $1/\lambda$ i $n(\lambda)$ uz zadržavanje samo linearnih članova u razvoju imamo:

$$\Delta k(\delta\lambda) = \frac{4\pi}{\lambda_0} \left[1 - \frac{\delta\lambda}{\lambda_0} \right] \left[n(\lambda_0) + \delta\lambda n'(\lambda_0) - n(\lambda_0/2) + \frac{\delta\lambda}{2} n'(\lambda_0/2) \right]. \quad (2.2.43)$$

Uzmemo li u obzir uvjet faznog usklađivanja 2.2.39 koji za jednadžbu 2.2.43 glasi $n(\lambda) = n(\lambda/2)$, te zanemarivanjem članova uz $\delta\lambda^2$ konačno dolazimo do izraza:

$$\Delta k(\delta\lambda) = \frac{4\pi}{\lambda_0} \left[\delta\lambda n'(\lambda_0) + \frac{\delta\lambda}{2} n'(\lambda_0/2) \right]. \quad (2.2.44)$$

Intenzitet induciranog elektromagnetskog zračenja nakon prostiranja medijem duljine L ima funkcijsku ovisnost oblika $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ (2.2.35). Intenzitet pada na polovicu svoje vrijednosti u maksimumu kada je $\Delta kL/2 = \pm 1.39$. Uvrštavanjem u 2.2.44 dolazimo do konačne procjene raspona valnih duljina u kojima je SHG proces dovoljno efikasan:

$$\delta\lambda_{\text{FWHM}} = \frac{0.44\lambda_0/L}{|n'(\lambda_0) - \frac{1}{2}n'(\lambda_0/2)|}. \quad (2.2.45)$$

Područje valnih duljina u kojima je fazno usklađivanje dobro je obrnuto proporcionalno debljini nelinearnog medija što u praksi znači da je poželjno koristiti što tanje kristale za SHG kod ultrakratkih pulseva. Intenzitet SHG definiran sa 2.2.35 je proporcionalan sa L^2 pa je potrebno uskladiti debljinu kristala kako bi intenzitet ostao dovoljno velik a fazno usklađivanje dovoljno dobro za efikasno udvostručavanje svih frekvencija unutar pulsa. Rezultat ekvivalentan 2.2.45 dobiva se ako se cijeli problem promatra u vremenskoj domeni i ako se zahtijeva da fundamentalni puls i stvoreni puls na frekvenciji drugih harmonika imaju istu grupnu brzinu. Ukoliko grupne brzine ne bi bile iste, ne bismo imali koherentnu superpoziciju fundamentalnog i stvorenog pulsa tijekom prostiranja kroz nelinearni medij što bi bitno smanjilo efikasnost SHG procesa.

2.3. Kvantno-mehanički opis sistema preko matrice gustoće stanja

[14]

Formalizam matrice gustoće slijedi iz osnovnih zakona kvantne mehanike. Ako se kvantno-mehanički sistem (atom) nalazi u nekom određenom kvantno-mehaničkom stanju s , tada sva fizikalna svojstva sistema možemo opisati valnom funkcijom $\psi_s(\vec{r}, t)$ tog stanja. Ta valna funkcija zadovoljava Schrödingerovu jednadžbu

$$i\hbar \frac{\partial \psi_s(\vec{r}, t)}{\partial t} = \hat{H} \psi_s(\vec{r}, t). \quad (2.3.1)$$

\hat{H} je operator Hamiltonijana sistema koji možemo pisati kao

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t), \quad (2.3.2)$$

gdje je \hat{H}_0 Hamiltonijan slobodnog atoma, a $\hat{V}(t)$ predstavlja energiju međudjelovanja. Pri opisu vremenske evolucije valne funkcije iskoristit ćemo činjenicu da svojstvena stanja Hamiltonijana slobodnog atoma čine potpun skup baznih funkcija pa za valnu funkciju stanja s možemo pisati

$$\psi_s(\vec{r}, t) = \sum_n C_n^s(t) u_n(\vec{r}), \quad (2.3.3)$$

gdje su funkcije $u_n(r)$ rješenja vremenski neovisne Schrödingerove jednadžbe

$$\hat{H}_0 u_n(\vec{r}) = E_n u_n(\vec{r}). \quad (2.3.4)$$

Koeficijent $C_n^s(t)$ predstavlja amplitudu vjerojatnosti da se atom nalazi u stanju n u vremenu t . Uvođenjem zapisa (2.3.3) u Schrödingerovu jednadžbu (2.3.1) dobivamo:

$$i\hbar \sum_n \frac{dC_n^s(t)}{dt} u_n(\vec{r}) = \sum_n C_n^s(t) \hat{H} u_n(\vec{r}). \quad (2.3.5)$$

Izraz se može pojednostaviti množenjem obje strane s $u_m^*(\vec{r})$ i integriranjem po prostoru, pri čemu se suma na lijevoj strani reducira na samo jedan član (upotrebom uvjeta ortogonalnosti funkcija $u_n(\vec{r})$), dok se desna strana pojednostavljuje uvođenjem matričnog elementa operatora Hamiltonijana \hat{H} definiranog kao

$$H_{mn} = \int u_m^*(\vec{r}) \hat{H} u_n(\vec{r}) d^3r. \quad (2.3.6)$$

Pojednostavljeni izraz je oblika:

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_m^s(t) = \sum_n H_{mn} C_n^s(t), \quad (2.3.7)$$

koji je ekvivalentan Schrödingerovoj jednačini, ali izražen pomoću amplituda vjerojatnosti $C_n^s(t)$.

Na temelju poznavanja valne funkcije sistema moguće je odrediti očekivanu vrijednost bilo koje fizikalne mjerljive veličine A prema izrazu:

$$\langle A \rangle = \int \psi_s^* \hat{A} \psi_s d^3r. \quad (2.3.8)$$

Očekivana vrijednost $\langle A \rangle$ izražena pomoću amplituda vjerojatnosti $C_n^s(t)$ dobiva se uvođenjem zapisa (2.3.3) u izraz (2.3.8), što daje:

$$\langle A \rangle = \sum_{mn} C_m^{s*} C_n^s A_{mn}, \quad (2.3.9)$$

gdje je uveden matrični element A_{mn} operatora \hat{A} definiran sa:

$$A_{mn} = \langle u_m | \hat{A} | u_n \rangle = \int u_m^* \hat{A} u_n d^3r. \quad (2.3.10)$$

Ako je poznato početno stanje i Hamiltonijan sistema, izrazi (2.3.1-2.3.10) daju potpun opis vremenske evolucije sistema i njemu pripadajućih mjerljivih veličina. Međutim, postoje uvjeti u kojima nije moguće točno poznavati stanje sistema. Primjer je skup atoma u atomskoj pari, gdje atomi mogu međusobno međudjelovati sudarima. Pri svakom sudaru valna funkcija atoma se promijeni, a kako je računski nemoguće pratiti zasebno svaki atom u pari, možemo reći da stanje atoma nije poznato. U takvim uvjetima pogodno je koristiti se opisom sistema pomoću matrice gustoće.

Označimo s $p(s)$ vjerojatnost da se sistem nalazi u stanju s . Pri tome veličinu $p(s)$ treba promatrati kao klasičnu, a ne kvantno-mehaničku vjerojatnost, budući da $p(s)$ reprezentira naše nepotpuno poznavanje stvarnog kvantno-mehaničkog stanja sistema. Pomoću $p(s)$ definiraju se elementi matrice gustoće sistema:

$$\rho_{nm} = \sum_s p(s) C_m^{s*} C_n^s. \quad (2.3.11)$$

Simbolički ovaj izraz možemo pisati i kao

$$\rho_{nm} = \overline{C_m^* C_n}, \quad (2.3.12)$$

gdje $\overline{C_m^* C_n}$ predstavlja usrednjavanje po svim mogućim stanjima sistema.

Dijagonalni elementi matrice gustoće ρ_{nn} predstavljaju vjerojatnost da je sistem u stanju n . Nedijagonalni elementi ρ_{nm} daju koherenciju stanja n i m i bit će različiti od nule samo ako se sistem nalazi u koherentnoj superpoziciji stanja n i m .

Upotrebom matrice gustoće možemo izračunati očekivanu vrijednost bilo koje mjerljive veličine A usrednjavanjem izraza (2.3.9) po svim mogućim stanjima sistema:

$$\overline{\langle A \rangle} = \sum_s p(s) \sum_{mn} C_m^{s*} C_n^s A_{mn}, \quad (2.3.13)$$

što upotrebom izraza (2.3.11) možemo pisati kao:

$$\overline{\langle A \rangle} = \sum_{nm} \rho_{nm} A_{mn}. \quad (2.3.14)$$

Dvostruko sumiranje u gornjem izrazu možemo pojednostaviti na slijedeći način:

$$\sum_{nm} \rho_{nm} A_{mn} = \sum_n \left(\sum_m \rho_{nm} A_{mn} \right) = \sum_n (\hat{\rho} \hat{A})_{nn} \equiv \text{tr}(\hat{\rho} \hat{A}), \quad (2.3.15)$$

gdje je uvedena operacija traga, koja je za neki operator \hat{M} definirana kao $\text{tr}(\hat{M}) = \sum_n M_{nn}$.

Očekivana vrijednost mjerljive veličine A je tako dana izrazom:

$$\overline{\langle A \rangle} = \text{tr}(\hat{\rho} \hat{A}), \quad (2.3.16)$$

gdje $\hat{\rho}$ označava operator gustoće:

$$\hat{\rho} = \overline{|\psi\rangle\langle\psi|}, \quad (2.3.17)$$

čiji je matični element n, m označen sa ρ_{nm} .

Nakon što smo pokazali kako se očekivana vrijednost neke mjerljive veličine može odrediti pomoću matrice gustoće, potrebno je odrediti i vremensku evoluciju matrice gustoće. Derivacijom izraza (2.3.11) po vremenu dobivamo:

$$\frac{d\rho_{nm}}{dt} = \sum_s \frac{dp(s)}{dt} C_m^{s*} C_n^s + \sum_s p(s) \left(C_m^{s*} \frac{dC_n^s}{dt} + \frac{dC_m^{s*}}{dt} C_n^s \right). \quad (2.3.18)$$

Pretpostavimo da se $p(s)$ ne mijenja u vremenu, tako da je prvi član na desnoj strani jednak nuli. Drugi član možemo odrediti iz Schrödingerove jednadžbe za vremensku evoluciju amplituda vjerojatnosti dane izrazom (2.3.7), čime dobivamo izraze:

$$\begin{aligned} C_m^{s*} \frac{dC_n^s}{dt} &= \frac{-i}{\hbar} C_m^{s*} \sum_{\nu} H_{n\nu} C_{\nu}^s, \\ C_n^s \frac{dC_m^{s*}}{dt} &= \frac{i}{\hbar} C_n^s \sum_{\nu} H_{m\nu}^* C_{\nu}^{s*} = \frac{i}{\hbar} C_n^s \sum_{\nu} H_{\nu m} C_{\nu}^{s*}. \end{aligned}$$

Uvrštavanjem ova dva izraza u jednadžbu (2.3.18) dobivamo:

$$\frac{d\rho_{nm}}{dt} = \sum_s p(s) \frac{i}{\hbar} \sum_{\nu} (\rho_{n\nu} H_{\nu m} - H_{n\nu} \rho_{\nu m}). \quad (2.3.19)$$

Konačno, možemo provesti sumaciju po ν i rezultat pisati kao

$$\frac{d\rho_{nm}}{dt} = \frac{i}{\hbar}(\hat{\rho}\hat{H} - \hat{H}\hat{\rho})_{nm} = \frac{-i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}]_{nm}. \quad (2.3.20)$$

Izraz je napisan uz upotrebu komutatora, koji je za dva operatora \hat{A} i \hat{B} definiran sa $[\hat{A}, \hat{B}] = \hat{A}\hat{B} - \hat{B}\hat{A}$.

Jednadžba (2.3.20) opisuje kako se matrica gustoće mijenja u vremenu kao rezultat međudjelovanja uključenih u Hamiltonijan \hat{H} . Postoje međutim međudjelovanja (kao npr. ona koja dolaze od atomskih sudara) koja nije prikladno uključiti u Hamiltonijan. Takva međudjelovanja mogu dovesti do promjene stanja sistema pa tada ne vrijedi $dp(s)/dt = 0$. Takvi se efekti uključuju u formalizam matrice gustoće dodavanjem fenomenoloških članova gušenja u jednadžbu (2.3.20). Uobičajeno je pretpostaviti da se nedijagonalni elementi matrice gustoće guše s konstantom gušenja γ_{nm} , dok se gušenje dijagonalnih elementa opisuje dopuštanjem relaksacije populacije iz viših u niže energijske nivoe. U tom su slučaju jednadžbe gibanja matrice gustoće dane izrazima:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{nm}}{dt} &= \frac{-i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}]_{nm} - \gamma_{nm}\rho_{nm}, & n \neq m, \\ \frac{d\rho_{nn}}{dt} &= \frac{-i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}]_{nn} + \sum_{E_m > E_n} \Gamma_{nm}\rho_{mm} - \sum_{E_m < E_n} \Gamma_{mn}\rho_{nn}, \end{aligned} \quad (2.3.21)$$

gdje Γ_{nm} daje relaksaciju populacije iz nivoa m u nivo n , a γ_{nm} relaksaciju koherencije ρ_{nm} .

Konstante gušenja γ_{nm} nedijagonalnih elemenata matrice gustoće nisu neovisne od konstanti gušenja dijagonalnih elemenata. Općenito vrijedi:

$$\gamma_{nm} = \frac{1}{2}(\Gamma_n + \Gamma_m) + \gamma_{nm}^{\text{sud}}, \quad (2.3.22)$$

gdje Γ_n i Γ_m označavaju ukupnu relaksaciju populacija nivoa n i m , te vrijedi:

$$\Gamma_n = \sum_{n' (E_{n'} < E_n)} \Gamma_{n'n}, \quad (2.3.23)$$

a γ_{nm}^{sud} je član koji daje doprinos gušenju koherencije zbog procesa koji nisu vezani s prijenosom populacije (elastični sudari).

2.3.1. Jednadžbe gibanja matrice gustoće stanja za sistem atoma s dva nivoa

Promatramo najprije jednadžbe gibanja matrice gustoće stanja u aproksimaciji atoma s dva nivoa (a i b) bez uključenih efekata gušenja. Efekti gušenja mogu se jednostavno uvrstiti u model dodavanjem fenomenoloških članova kao npr. u izrazu 2.3.21. Hamiltonijan sistema

opisan je izrazom 2.3.2. Energije nivoa određene su s dijagonalnim elementima Hamiltonijana slobodnog atoma:

$$E_a = \hbar\omega_a \quad \text{i} \quad E_b = \hbar\omega_b. \quad (2.3.24)$$

Energija međudjelovanja može se opisati u okviru električne dipolne aproksimacije te je Hamiltonijan međudjelovanja oblika:

$$\hat{V}(t) = -\hat{\mu}\tilde{E}(t). \quad (2.3.25)$$

Zbog pretpostavke da promatrana stanja imaju dobro definirani paritet zbog čega dijagonalni elementi matrice operatora prijelaznog dipolnog momenta iščezavaju slijedi:

$$V_{aa} = V_{bb} = 0. \quad (2.3.26)$$

Nedijagonalni elementi su određeni sa:

$$V_{ba} = V_{ab}^* = -\mu_{ba}\tilde{E}(t). \quad (2.3.27)$$

Vremenski razvoj matrice gustoće stanja, još uvijek bez uvedenog gušenja, definiran je izrazom 2.3.20. Razdvajanjem Hamiltonijana u atomski i dio koji opisuje međudjelovanja imamo:

$$\frac{d\rho_{nm}}{dt} = -i\omega_{nm}\rho_{nm} - \frac{i}{\hbar} \sum_{\nu} (V_{n\nu}\rho_{\nu m} - \rho_{n\nu}V_{\nu m}), \quad (2.3.28)$$

gdje smo uveli frekvenciju prijelaza definiranu kao $\omega_{nm} = (E_n - E_m)/\hbar$. U slučaju atoma s dva nivoa jednačbe gibanja matričnih elemenata mogu eksplicitno napisati kao:

$$\frac{d\rho_{ba}}{dt} = -i\omega_{ba}\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}V_{ba}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (2.3.29)$$

$$\frac{d\rho_{bb}}{dt} = \frac{i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}) \quad (2.3.30)$$

$$\frac{d\rho_{aa}}{dt} = \frac{i}{\hbar}(V_{ab}\rho_{ba} - \rho_{ab}V_{ba}). \quad (2.3.31)$$

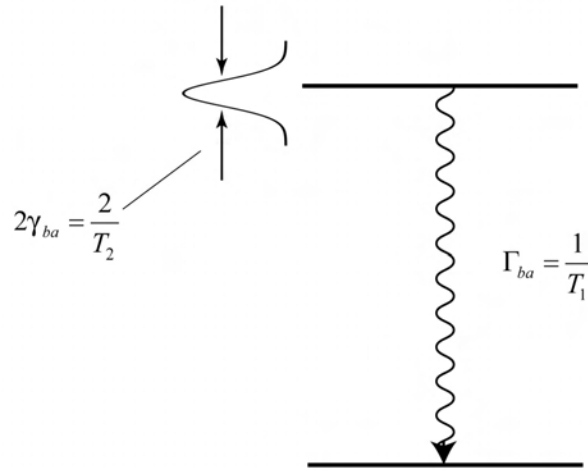
Kako vrijedi

$$\frac{d\rho_{bb}}{dt} + \frac{d\rho_{aa}}{dt} = 0, \quad (2.3.32)$$

može se zaključiti da je ukupna populacija sačuvana u vremenu. Iz definicije matrice gustoće stanja znamo da dijagonalni elementi $\hat{\rho}$ predstavljaju vjerojatnosti naseljenosti te slijedi:

$$\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1. \quad (2.3.33)$$

Jednačbe 2.3.31 daju prikladan opis rezonantnih nelinearnih optičkih procesa u situacijama kada se relaksacijski procesi mogu zanemariti, kao npr. kod pobuđivanja pulsevima čije je



Slika 2.6: Relaksacijski procesi u slučaju zatvorenog sistema atoma s dva nivoa.

trajanje puno kraće od vremena relaksacija medija. Efekti uključivanja relaksacijskih procesa u slučaju zatvorenog sistema atoma s dva nivoa prikazani su na slici 2.6. Zatvoreni sistem je onaj u kojem se sva izmjena populacije odvija između promatranih nivoa atoma. Pretpostavlja se da brzina relaksacije gornjeg b nivoa iznosi Γ_{ba} . Vrijeme života tog stanja tada je dano sa $T_1 = 1/\Gamma_{ba}$. Obično je vrijeme života stanja određeno spontanom emisijom, ali na višim koncentracijama i neelastični sudari doprinose relaksaciji populacija [17]. Također se pretpostavlja da atomski dipoli izlaze iz faze u karakterističnom vremenu T_1 , zbog čega je širina apsorpcijskih linija (ako nema saturacije) određena sa $2\gamma_{ba} = 2/T_2$. Dodavanjem fenomenoloških članova koji opisuju relaksacijske procese jednadžbe gibanja elemenata matrice gustoće stanja postaju:

$$\frac{d\rho_{ba}}{dt} = -\left(i\omega_{ba}\rho_{ba} + \frac{1}{T_2}\right)\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}V_{ba}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (2.3.34)$$

$$\frac{d\rho_{bb}}{dt} = \frac{-\rho_{bb}}{T_1} - \frac{i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}) \quad (2.3.35)$$

$$\frac{d\rho_{aa}}{dt} = \frac{\rho_{bb}}{T_1} + \frac{i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}). \quad (2.3.36)$$

Kako jednadžba za ρ_{ba} ovisi samo o razlici populacija $\rho_{bb} - \rho_{aa}$, korisno je pogledati jednadžbe gibanja za razliku populacija. Razlika 2.3.36 i 2.3.35 daje:

$$\frac{d}{dt}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) = \frac{-2\rho_{bb}}{T_1} - \frac{2i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}). \quad (2.3.37)$$

Koristeći relaciju $2\rho_{bb} = (\rho_{bb} - \rho_{aa} + 1)$ dobiva se:

$$\frac{d}{dt}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) = -\frac{(\rho_{bb} - \rho_{aa}) + 1}{T_1} - \frac{2i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}). \quad (2.3.38)$$

Ako se pretpostavi da ravnotežna razlika populacija može imati vrijednost različitu od -1 (koja proizlazi iz pretpostavke da je moguća samo spontana emisija iz gornjeg u donji nivo) dobiva se poopćenje izraza 2.3.38:

$$\frac{d}{dt}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) = -\frac{(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{\text{eq}}}{T_1} - \frac{2i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}). \quad (2.3.39)$$

Time se jednadžbe gibanja matrice gustoće stanja svode na dvije vezane jednadžbe, jedn. 2.3.34 i jedn. 2.3.39.

Da bi se provjerila opravdanost fenomenološkog ubacivanja relaksacijskih članova na način na koji su ubačeni u izraze 2.3.34 i 2.3.39 korisno je vidjeti rješenje sustava jednadžbi za slučaj kada nema vanjske pobude, tj. kada je $V_{ba}=0$. Rješenje jednadžbe 2.3.39 dano je sa:

$$\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t) = (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{\text{eq}} + \{[\rho_{bb}(0) - \rho_{aa}(0)] - (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{\text{eq}}\} e^{-t/T_1}. \quad (2.3.40)$$

Inverzija populacije $\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t)$ relaksira se iz početne vrijednosti $\rho_{bb}(0) - \rho_{aa}(0)$ u ravnotežnu vrijednost $(\rho_{bb} - \rho_{aa})^{\text{eq}}$ u vremenu reda veličine T_1 . Zato se vrijeme T_1 naziva vremenom relaksacije populacija. Rješenje jednadžbe 2.3.34 dano je za slučaj kada nema vanjske pobude sa:

$$\rho_{ba}(t) = \rho_{ba}(0)e^{-(i\omega_{ba} + 1/T_2)t}. \quad (2.3.41)$$

Ovaj rezultat lakše je interpretirati ako pogledamo očekivanu vrijednost inducirano dipolnog momenta:

$$\begin{aligned} \langle \tilde{\mu}(t) \rangle &= \mu_{ab}\rho_{ba}(t) + \mu_{ba}\rho_{ab}(t) = \mu_{ab}\rho_{ba}(0)e^{-(i\omega_{ba} + 1/T_2)t} + c.c. \\ &= [\mu_{ab}\rho_{ba}(0)e^{-i\omega_{ba}t + c.c.}] e^{-t/T_2}. \end{aligned} \quad (2.3.42)$$

Gornji izraz opisuje gušene titraje dipolnog momenta sa frekvencijom ω_{ba} . Karakteristično vrijeme gušenja titraja T_2 određuje vrijeme u kojem dipoli koji u početku titraju u fazi izlaze iz faze (*dephasing time*).

Vremena u kojem titrajući dipoli izlaze iz faze i vremena života populacije u pobuđenom stanju nisu međusobno neovisna, što pokazuje i izraz 2.3.22. U slučaju kada nema gušenja vrijedi odnos $T_2 = 2T_1$ koji se u realnom sistemu zbog gušenja modificira u oblik:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \gamma_c, \quad (2.3.43)$$

gdje je γ_c član koji opisuje procese zbog kojih dolazi relaksacije faznog titranja dipola zbog npr. elastičnih sudara. Kod atomskih para γ_c je obično dovoljno dobro opisan izrazom:

$$\gamma_c = C_s N + C_{\text{strani}} N_{\text{strani}}, \quad (2.3.44)$$

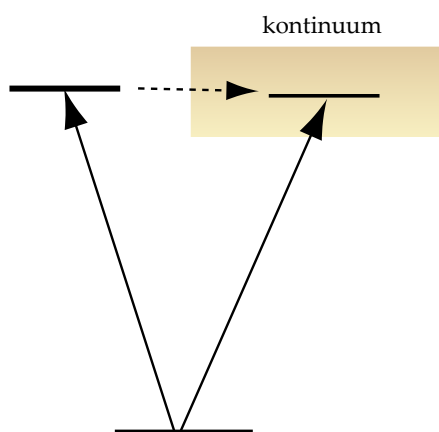
gdje je N broj atoma rezonantne frekvencije ω_{ba} a N_{strani} broj „stranih“ atoma neke druge vrste drugačije rezonantne frekvencije. Parametri C_s i C_{strani} su koeficijenti koji opisuju sudarno širenje linija zbog međusobnih sudara istovrsnih atoma odnosno sudara promatranih atoma sa „stranim“ atomima.

3 Elektromagnetski inducirana transparentcija

Elektromagnetski inducirana transparentcija (EIT) koherentni je fenomen koji se najjednostavnije može opisati kao uklanjanje apsorpcije u mediju koherentnim prepariranjem stanja atoma medija pomoću laserske svjetlosti. Sam naziv skovao je S.E. Harris 1990. u članku [8] u kojem predviđa postojanje velike nelinearne susceptibilnosti medija na valnim duljinama na kojima je imaginarni dio linearne susceptibilnosti zanemariv, tj. gdje je medij transparentan. Prvi eksperimentalni rad kojim je potvrđen EIT u parama stroncija napravila je također Harrisova grupa 1991. godine [18]. Svojstva medija u kojem je uspostavljena transparentcija omogućavaju efekte kao što su efikasnije nelinearno miješanje valova [19, 20, 21], laserski efekt bez inverzije naseljenosti [22, 23, 24], usporavanje i pohranjivanje svjetlosti [25, 26]. Dobar uvid u najvažnije znanstvene doprinose ovoj temi može se naći u preglednim radovima [9, 21]. Osnovni fizikalni proces koji omogućava pojavu transparentcije temelji se na kvantnoj interferenciji koherentnih atomskih stanja. Iako sam EIT fenomen nije nelinearna optička pojava on može stimulirati nelinearne efekte u mediju. Osim induciranjem koherencija u mediju, inducirana transparentcija može biti rezultat saturacije jednog prijelaza u mediju zbog čega na drugom prijelazu koji povezuje probni laser dolazi do smanjenja apsorpcije. To naročito vrijedi u shemi atomskih nivoa u kojoj je jedno donje, metastabilno stanje vezano s dva gornja, pobuđena stanja. Upravo je takav atomski sistem bio predmetom istraživanja koja su opisana u ovom poglavlju. Rezultati pokazuju da je opažena transparentcija rezultat kombinacije nelinearnog efekta, saturacije, i koherentnog efekta elektromagnetski inducirane transparentcije.

3.1. Efekti interferencija atomskih koherencija

Koherencije opisuju vanjskim poljem inducirana titranja atomskih dipola [13]. Dipoli koji titraju na frekvenciji jednakoj frekvenciji titranja vanjskog polja izvori su novog zračenja. Ako je pobuda koherentna dipoli titraju u fazi te će i novostvoreno zračenje biti koherentna fazno osjetljiva superpozicija amplituda novog polja zračenja. Nakon isključenja pobude koherentno titranje dipola se nastavlja dok relaksacijski procesi ne promjene fazne odnose među dipolima. Karakteristično vrijeme u kojem se zadržava fazni odnos među titrajućim dipolima naziva se vremenom života koherencija. Jedan od prvih eksperimenata u kojem su atomske koherencije imale bitnu ulogu izveo je i objasnio Wilhelm Hanle [27]. On je uočio da se polarizacija fluorescencije živine pare koja je osvijetljena usmjerenim linearno polariziranim elektromagnetskim zračenjem mijenja uključivanjem slabog homogenog magnetskog polja okomitog na smjer upadnog zračenja. Kada je u atomu uklonjena degeneracija Zeemanovih podnivoa, pobuđivanjem linearno polariziranim koherentnim izvorom atom prelazi u koherentnu superpoziciju osnovnih i pobuđenih Zeemanovih nivoa. U takvoj situaciji smjer inducirano atomskog dipola precesira u vremenu u ravnini okomitoj na smjer magnetskog polja brzinom koja ovisi o razlici energija Zeemanovih podnivoa [28]. Na taj se način mijenja polarizacija i smjer promatrane fluorescencije. Može se pokazati da inducirana polarizacija ovisi o stvorenim koherencijama između nevezanih Zeemanovih komponenti [28].



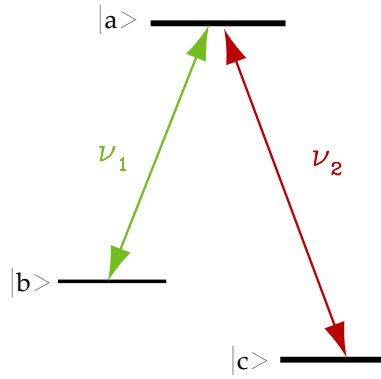
Slika 3.1: Fano interferencija u blizini autoionizacijske rezonancije.

U atomskoj fizici pojam interferencije atomskih koherencija uveo je Fano 1961. godine [29] proučavajući fotoionizaciju višeelektronskih atoma. Fotoionizacijska stanja imaju kratko vrijeme života te brzo prelaze u stanja kontinuuma pa se stoga nazivaju i autoionizacijskim

stanjima. Fano je uočio da u blizini autoionizacijske rezonancije eksitacijski spektri imaju asimetričan oblik te da na jednoj strani rezonancije vjerojatnost prijelaza iščezava. Ta pojava transparentnosti inače rezonantnog medija može se objasniti interferencijom između dva različita eksitacijska kanala ionizacijskog kontinuuma. Naime, osim preko autoionizacijskih stanja, stanja kontinuuma su i direktno dostupna te ta dva kanala mogu konstruktivno ili destruktivno interferirati (slika 3.1). Vrlo bitan koherentni fenomen koji se često veže uz EIT je fenomen Autler-Townes cijepanja nivoa poznat još i kao dinamički ili AC Stark efekt. Radi se o cijepanju nivoa vezanih elektromagnetskim poljem čija je Rabi frekvencija veća od odmaka (*detuning*) polja od rezonantne frekvencije. Efekt je prvi puta opažen u mikrovalnoj spektroskopiji [30]. Autler-Townes cijepanje može se objasniti kao modulacija kvantnog dipolnog momenta koji uzrokuje pojavu signala u krilima linije. Energije obučanih (*dressed*) stanja koja su svojstvena stanja Jaynes-Cummings hamiltonijana [31] su dubleti načinjeni od linearnih kombinacija neobučanih degeneriranih stanja. U aproksimaciji jakog vezanja razlika među energijama obučanih stanja je proporcionalna Rabi frekvenciji tj. jakosti polja [32]. Spektar rezonantne fluorescencije atoma s dva nivoa u slučaju jakog vezanja posjeduje usputne vrpce (*sidebands*) na udaljenosti od centralne komponente proporcionalnoj jakosti polja [33]. Promatra li se apsorpcija na neki treći nivo s probom ispod nivoa saturacije uočava se Autler-Townes dublet u apsorpcijskom spektru koji su među prvima u optičkim spektrima izmjerili Delsart i Keller [34]. Mollow i ostali [35] analizirali su apsorpciju probe na sistemu atoma s dva stanja koja su pod utjecajem jakog polja vezanja rascijepljena u Autler-Townes dublete. Spektar probe sastoji se od apsorpcijskog profila na frekvenciji pomaknutoj od rezonantne frekvencije za iznos efektivne Rabi frekvencije u smjeru nižih frekvencija (crveni pomak), zatim od disperzijskog oblika na rezonantnoj frekvenciji, a na frekvenciji pomaknutoj od rezonantne frekvencije za iznos efektivne Rabi frekvencije u smjeru viših frekvencija (plavi pomak) dolazi do pojačanja signala probe (*gain*). Bitno je naglasiti razliku između snimljenih profila koji odgovaraju Autler-Townes cijepanju i elektromagnetski induciranoj transparentnosti. U prvom slučaju apsorpcijski profil na rezonantnoj frekvenciji je suma dva Lorentzijana razmaknuta za iznos efektivne Rabi frekvencije koja može biti takva da sumirani profil nije jednak nuli, dok je kod EIT-a apsorpcija na rezonanciji za istu Rabi frekvenciju uvijek manja, a potencijalno može biti i jednaka nuli.

3.1.1. Koherentno zarobljavanje populacije

Koherentno zarobljavanje populacije u koherentnoj superpoziciji neapsorbirajućih stanja atoma ostvaruje se zbog destruktivne kvantne interferencije mogućih dipolno dozvoljenih prijelaza. Na taj način medij postaje transparentan za zračenje na odgovarajućim frekvencijama. Koherentno zarobljavanje populacije (*coherent population trapping* - CPT) prvi su eksperimentalno pokazali i objasnili G. Orriols i E. Arimondo [36, 37] 1976. godine. Eksperiment je pokazao da dolazi do smanjenja fluorescencije u ćeliji s natrijevim parama kada se ista osvijetli multimodnim laserom kojemu razmak među modovima odgovara razmaku hiperfinih nivoa donjih stanja. CPT na primjeru tzv. Λ sistema prikazanog na slici 3.2 može se objasniti u slici



Slika 3.2: Λ shema atoma s tri nivoa.

„obučenih“ svojstvenih stanja Hamiltonijana koji opisuje sistem atoma i elektromagnetskog zračenja danog sa [28]:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{int} \quad (3.1.1)$$

gdje su

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_a|a\rangle\langle a| + \hbar\omega_b|b\rangle\langle b| + \hbar\omega_c|c\rangle\langle c| \quad (3.1.2)$$

$$\mathcal{H}_{int} = -\frac{\hbar}{2} \left(\Omega_{R1} e^{-i\phi_1} e^{-i\nu_1 t} |a\rangle\langle b| + \Omega_{R2} e^{-i\phi_2} e^{-i\nu_2 t} |a\rangle\langle c| \right) + H.c. \quad (3.1.3)$$

redom Hamiltonijan slobodnog atoma s tri nivoa i Hamiltonijan međudjelovanja atoma i elektromagnetskog zračenja polja frekvencija ν_1 i ν_2 koja povezuju stanja $|b\rangle$ i $|a\rangle$ odnosno $|c\rangle$ i $|a\rangle$. Članovi $\Omega_{R1} e^{-i\phi_1}$ i $\Omega_{R2} e^{-i\phi_2}$ predstavljaju kompleksne Rabi frekvencije koje određuju jakost vezanja stanja. Valna funkcija može se napisati kao superpozicija valnih funkcija slobodnog atoma:

$$|\psi(t)\rangle = c_a(t) e^{-i\omega_a t} |a\rangle + c_b(t) e^{-i\omega_b t} |b\rangle + c_c(t) e^{-i\omega_c t} |c\rangle. \quad (3.1.4)$$

Jednadžbe za amplitude vjerojatnosti mogu se dobiti uvrštavanjem valne funkcije u vremenski ovisnu Schrödingerovu jednadžbu $i\hbar\partial|\psi\rangle/\partial t = \mathcal{H}|\psi\rangle$. Uz pretpostavku rezonantnih polja slijedi:

$$\begin{aligned}\frac{dc_a}{dt} &= \frac{i}{2} \left(\Omega_{R1} e^{-i\phi_1} c_b + \Omega_{R2} e^{-i\phi_2} c_c \right) \\ \frac{dc_b}{dt} &= \frac{i}{2} \Omega_{R1} e^{i\phi_1} c_a \\ \frac{dc_c}{dt} &= \frac{i}{2} \Omega_{R2} e^{i\phi_2} c_a.\end{aligned}\quad (3.1.5)$$

Pretpostavi li se da se u trenutku uključivanja polja atomski sistem već nalazi u koherentnoj superpoziciji donjih stanja, tj. da je atom već u tzv. „tamnom“ stanju:

$$|\psi\rangle(0) = \cos(\theta/2)|b\rangle + \sin(\theta/2)e^{-i\psi}|c\rangle, \quad (3.1.6)$$

gdje je ψ faza između stanja $|b\rangle$ i $|c\rangle$, amplitude vjerojatnosti dobivene rješavanjem sistema jednadžbi 3.1.5 dane su sa:

$$\begin{aligned}c_a(t) &= \frac{i\sin(\Omega t/2)}{\Omega} \left[\Omega_{R1} e^{-i\phi_1} \cos(\theta/2) + \Omega_{R2} e^{-i(\phi_2-\psi)} \sin(\theta/2) \right] \\ c_b(t) &= \frac{1}{\Omega^2} \left\{ \left[\Omega_{R2}^2 + \Omega_{R1}^2 \cos(\Omega t/2) \right] \cos(\theta/2) \right. \\ &\quad \left. - 2\Omega_{R1}\Omega_{R2} e^{i(\phi_1-\phi_2-\psi)} \sin^2(\Omega t/4) \sin(\theta/2) \right\} \\ c_c(t) &= \frac{1}{\Omega^2} \left\{ -2\Omega_{R1}\Omega_{R2} e^{-i(\phi_1-\phi_2)} \sin^2(\Omega t/4) \cos(\theta/2) \right. \\ &\quad \left. + \left[\Omega_{R1}^2 + \Omega_{R2}^2 \cos(\Omega t/2) \right] e^{-i\psi} \sin(\theta/2) \right\},\end{aligned}\quad (3.1.7)$$

gdje je $\Omega = \sqrt{\Omega_{R1}^2 + \Omega_{R2}^2}$. Do koherentnog zarobljavanja populacije dolazi kada je amplituda vjerojatnosti za prijelaz u stanje $|a\rangle$ jednaka nuli, to jest kada vrijedi:

$$\begin{aligned}c_a(t) &= 0 \\ c_b(t) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \\ c_c(t) &= \frac{1}{\sqrt{2}} e^{-i\psi}.\end{aligned}\quad (3.1.8)$$

Ovako nastalo stanje atoma koje je sada superpozicija donja dva stanja naziva se još i tamno stanje (*dark state*) jer je ono potpuno odvojeno od polja koja djeluju na sistem. Iako je početna pretpostavka u izvodu amplituda vjerojatnosti nalaženja atoma u pojedinom stanju bila da se atom već nalazi u „tamnom“ stanju, isti rezultat dobiva se i kada sistem u početku nije u „tamnom“ stanju. U tom slučaju atom kontinuiranim djelovanjem elektromagnetskih polja i spontane emisije prelazi u „tamno“ stanje u adijabatskom procesu prebacivanja populacije.

Koherentno zarobljavanje populacije može se tretirati kao specifični slučaj EIT-a, u kojem je tamno stanje stabilno samo za slučaj Λ sheme. CPT obično zahtijeva vezno i probno polje podjednakih jakosti dok je kod EIT-a probno polje puno slabije, obično ispod nivoa saturacije. Kod CPT-a je atom u potpunosti odvojen od polja na frekvenciji dvofotonske Raman rezonancije te ne isčezava samo linearna susceptibilnost, već i susceptibilnosti višeg reda. U slučaju EIT-a atom se „pumpa“ u tamno stanje kombinacijom dvaju polja. To pumpanje može biti obično optičko pumpanje pri čemu je vrijeme koje je potrebno da se EIT uspostavi reda veličine vremena života gornjeg stanja. No ako se preptostavi da se polja uključuju sporo u odnosu na period Rabi titranja vezanog uz Ω_{R2} tada se može pokazati da će sistem ući u režim EIT-a u vremenu manjem od vremena života gornjeg stanja [28]. Dobar uvid u najvažnije rezultate u ovom području može se naći u opširnom radu E. Arimonda [38].

3.1.2. Laserski efekt bez inverzije naseljenosti

Princip laserske akcije može se objasniti na jednostavnom modelu aktivnog medija s dva nivoa [13]. Širi li se monokromatski elektromagnetski val frekvencije ν medijem opisanim dvama nivoima energija E_1 i E_2 u z -smjeru intenzitet će mu se mijenjati prema:

$$I(\nu, z) = I(\nu, 0)e^{-\alpha(\nu)z}, \quad (3.1.9)$$

gdje je $\nu = (E_2 - E_1)/h$ a $\alpha(\nu)$ frekventno ovisan koeficijent apsorpcije:

$$\alpha(\nu) = [N_1 - (g_1/g_2)N_2] \sigma(\nu). \quad (3.1.10)$$

g_1 i g_2 su statističke težine, N_1 i N_2 odgovarajuće naseljenosti, a $\sigma(\nu)$ je apsorpcijski udarni presjek. Ako je $N_2 > (g_2/g_1)N_1$ dobiva se pojačanje jer je $\alpha < 0$. Ukupni faktor pojačanja u jednom ophodu rezonatora, bez gubitaka, u aktivnom mediju duljine L iznosi:

$$G(\nu) = \frac{I(\nu, 2L)}{I(\nu, 0)} = e^{-2\alpha(\nu)L}. \quad (3.1.11)$$

Uključe li se svi mogući gubitci u rezonatoru kroz parametar γ :

$$I = I_0 e^{-\gamma} \quad (3.1.12)$$

intenzitet nakon jednog ophoda rezonatorom duljine $d \geq L$ može se napisati kao:

$$I(\nu, 2d) = I(\nu, 0)e^{-2\alpha(\nu)L - \gamma}. \quad (3.1.13)$$

Do pojačanja će doći ako je zadovoljen uvjet:

$$-2L\alpha(\nu) > \gamma. \quad (3.1.14)$$

Koristeći apsorpcijski udarni presjek $\sigma(\nu)$ uvjet praga razlike naseljenosti za pojačanje je:

$$\Delta N = N_k(g_i/g_k) - N_i > \Delta N_{prag} = \frac{\gamma}{2\sigma(\nu)L}. \quad (3.1.15)$$

Želi li se konstruirati laser koji će raditi u području visokih frekvencija potrebno je uzeti u obzir činjenicu da Einsteinov koeficijent spontane emisije A_{21} koji je povezan s apsorpcijskim udarnim presjekom preko:

$$\int_{\omega_1}^{\omega_2} \sigma(\omega) d\omega = (\lambda/2)^2 A_{21} \quad (3.1.16)$$

raste s porastom frekvencije:

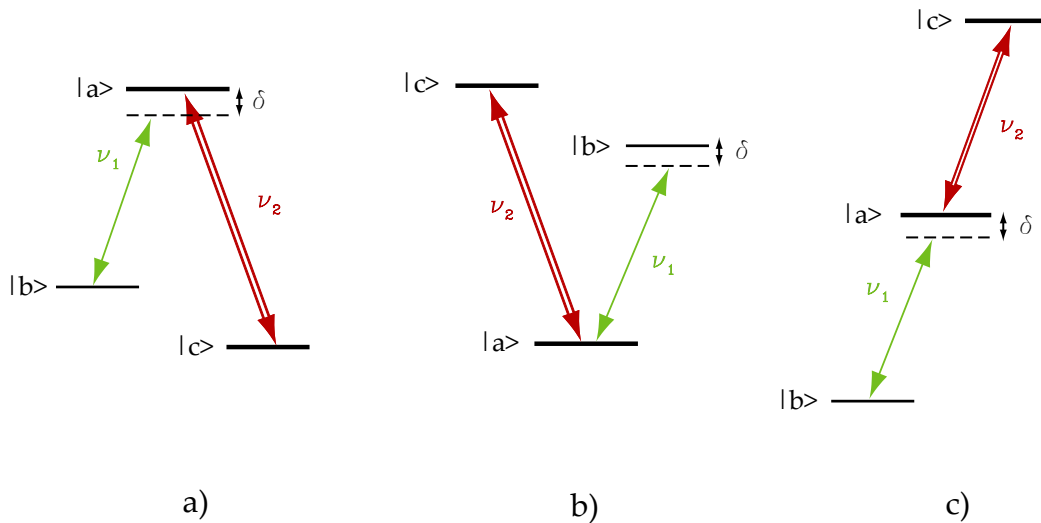
$$A_{21} = B_{21} \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3} \quad (3.1.17)$$

te je na visokim frekvencijama sve teže ostvariti inverziju naseljenosti.

Mogućnost zaobilaženja uvjeta inverzije naseljenosti predmet je zanimanja znanstvenika već nekoliko desetljeća [39]. Pojačanje i laserski efekt bez inverzije naseljenosti pomoću interferencija atomskih koherencija prvi su predložili Kocharovskaya i Khanin [22] te nezavisno od njih Harris [23] i Scully [24]. Jedan od načina da se objasni mogućnost pojačanja laserskog zračenja u mediju bez ostvarivanja inverzije naseljenosti je da se sistem promatra u slici obučenih stanja. U slučaju kada je ostvarena CPT, atomi ne međudjeluju s poljima što znači da nema apsorpcije u Λ shemi niti emisije u V shemi. To također znači da je umjesto razlike populacija pojedinih parova stanja potrebno gledati razliku između nevezanog stanja i tzv. „svijetlog“ koherentnog stanja koje je ortogonalno tamnom stanju [39]. No kako je u trenutku kada je CPT uspostavljena atom u tamnom stanju, populacija svijetlog isčezava te je dovoljno imati bilo kakvu populaciju u trećem, nevezanom stanju, da bi se ostvarilo pojačanje na frekvenciji prijelaza. Slično razmatranje vrijedi i kod V sheme no ovdje nema koherentnog zarobljavanja populacije pa ne dolazi do pojave inverzije naseljenosti u bazi obučenih stanja. Budući da su polja u stanju CPT-a „odvezana“ (*uncoupled*) od atomskog sistema, za dobivanje laserskog efekta potreban je još jedan koherentni izvor. Prvi eksperimentalni dokazi o laserskom efektu bez inverzije naseljenosti pojavljuju se u radovima [40, 41]. S obzirom da se sistem u kojem se proučava pojačanje bez inverzije naseljenosti uglavnom nalazi u koherentnoj superpoziciji stanja bitno je provjeriti postoji li inverzija naseljenosti na promatranom prijelazu u sustavu stanja slobodnog atoma.

3.2. Teorijski opis elektromagnetski inducirane transparentije u reprezentaciji matrice gustoće stanja

Stvarni atomski (i drugi) sistemi u kojima se proučava EIT najčešće su kompliciraniji od jednostavnog modela atoma s tri nivoa u kojem je objašnjeno koherentno zarobljavanje populacije, a koji je pogodan i za objašnjavanje efekta elektromagnetski inducirane transparentije. Stoga će u ovom odjeljku efekt EIT-a biti objašnjen na temelju sistema s tri nivoa, što će omogućiti jasniji uvid u mehanizme koji dovode do pojave transparentije u mediju, dok je stvarno promatrani sistem atoma rubidija mnogo kompliciraniji te bi raspis po svim stanjima tog sistema zahtjevao dosta vremena. Treba napomenuti da su u teorijskim simulacijama koje su predstavljene u slijedećem odjeljku uključeni svi relevantni elementi (hiperfina struktura, sve konstante gušenja) potrebni za korektan opis međudjelovanja atoma rubidija s veznim i probnim elektromagnetskim poljem. Stanja atoma s tri nivoa mogu biti dipolno vezana dvama poljima u Λ , V



Slika 3.3: Λ , V i kaskadna (Ξ) shema sistema s tri nivoa.

te u kaskadnoj (*cascade* ili *ladder* - Ξ) shemi (slika 3.3). Razmatra se sistem prikazan na slici 3.3b, gdje su stanja $|a\rangle$ i $|c\rangle$ vezana poljem kompleksne Rabi frekvencije $\Omega_2 e^{-i\phi_2}$, a amplituda probnog polja označena je s \mathcal{E} . Relaksacije koherencija ρ_{ab} , ρ_{ac} i ρ_{cb} određene su konstantama gušenja γ_1 , γ_2 i γ_3 . Hamiltonijan međudjelovanja odgovara izrazima 3.1.1-3.1.3 uz zamjenu:

$$\Omega_{R1} e^{-i\phi_1} e^{-i\nu_1 t} = \frac{\mu_{ab} \mathcal{E}}{\hbar} e^{-i\nu_1 t}, \quad (3.2.1)$$

gdje je $\mu_{ab} = \mu_{ba}^*$ matrični element dipolnog momenta prijelaza $e\langle a|x|b\rangle$. Liouvilleova jednadžba za koherencije daje:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{ab} &= -(-i\omega_{ab} + \gamma_1) - \frac{i}{2} \frac{\mu_{ab}\mathcal{E}}{\hbar} e^{-i\nu_1 t} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) + \frac{i}{2} \Omega_2 e^{-i\phi_2} e^{-i\nu_2 t} \rho_{cb} \\ \dot{\rho}_{cb} &= -(-i\omega_{cb} + \gamma_2) - \frac{i}{2} \frac{\mu_{ab}\mathcal{E}}{\hbar} e^{-i\nu_1 t} \rho_{ca} + \frac{i}{2} \Omega_2 e^{i\phi_2} e^{i\nu_2 t} \rho_{ab} \\ \dot{\rho}_{ac} &= -(-i\omega_{ac} + \gamma_3) - \frac{i}{2} \Omega_2 e^{-i\phi_2} e^{-i\nu_2 t} (\rho_{aa} - \rho_{cc}) + \frac{i}{2} \frac{\mu_{ab}\mathcal{E}}{\hbar} e^{-i\nu_1 t} \rho_{bc}.\end{aligned}\quad (3.2.2)$$

Za računanje disperzije i apsorpcije dovoljno je znati elemente matrice gustoće (koherencije) u prvom redu računa smetnje. No kako je vezanje stanja $|a\rangle$ i $|c\rangle$ jako, taj dio rješenja potrebno je naći neperturbacijski. Pretpostavi li se da su u početku atomi u osnovnom stanju $|b\rangle$:

$$\rho_{bb}^{(0)} = 1, \rho_{aa}^{(0)} = \rho_{cc}^{(0)} = \rho_{ca}^{(0)} = 0. \quad (3.2.3)$$

Ubacivanjem početnih uvjeta 3.2.3 u 3.2.2, te korištenjem transformacije u rotirajući koordinatni sustav (*rotating frame transformation*) gdje su koherencije dane izrazima:

$$\rho_{ab} = \tilde{\rho}_{ab} e^{-i\nu_1 t}, \quad (3.2.4)$$

$$\rho_{cb} = \tilde{\rho}_{cb} e^{-i(\nu_1 + \omega_{ca})t} \quad (3.2.5)$$

uz aproksimaciju rotirajućeg vala (*rotating wave approximation* - RWA) dobiva se slijedeći sistem vezanih diferencijalnih jednadžbi:

$$\begin{aligned}\dot{\tilde{\rho}}_{ab} &= -(\gamma_1 - i\Delta) \tilde{\rho}_{ab} + \frac{i}{2} \frac{\mu_{ab}\mathcal{E}}{\hbar} + \frac{i}{2} \Omega_2 e^{-i\phi_2} \tilde{\rho}_{cb} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cb} &= -(\gamma_3 - i\Delta) \tilde{\rho}_{cb} + \frac{i}{2} \Omega_2 e^{i\phi_2} \tilde{\rho}_{ab},\end{aligned}\quad (3.2.6)$$

gdje je $\Delta = \nu_1 - \omega_{ab}$ odmak od rezonancije probnog polja. Korištena je pretpostavka da je vezno polje točno na rezonanciji ($\nu_2 = \omega_{ac}$). Jedan od načina rješavanja sistema jednadžbi 3.2.6 je da ih se zapiše u matričnom obliku:

$$\dot{R} = -M R + A \quad (3.2.7)$$

gdje su:

$$R = \begin{bmatrix} \tilde{\rho}_{ab} \\ \tilde{\rho}_{cb} \end{bmatrix}, M = \begin{bmatrix} \gamma_1 - i\Delta & -\frac{i}{2} \Omega_2 e^{-i\phi_2} \\ -\frac{i}{2} \Omega_2 e^{i\phi_2} & \gamma_3 - i\Delta \end{bmatrix}, A = \begin{bmatrix} i\mu_{ab}\mathcal{E}/2\hbar \\ 0 \end{bmatrix}. \quad (3.2.8)$$

Matričnu jednadžbu 3.2.7 u slučaju pobude kontinuiranim laserima može se riješiti integracijom ili inverzijom matrice u stacionarnom stanju:

$$R(t) = \int_{-\infty}^t e^{-M(t-t')} A dt' = M^{-1} A. \quad (3.2.9)$$

Od najvećeg je interesa koherencija između stanja $|a\rangle$ i $|b\rangle$ jer je ona proporcionalna apsorpciji i indeksu loma sredstva na frekvenciji probe. Nalaženjem inverzne matrice M^{-1} može se izraziti koherenciju kao:

$$\rho_{ab}(t) = \frac{i\mu_{ab}\mathcal{E}e^{-i\nu_1 t}(\gamma_3 - i\Delta)}{2\hbar[(\gamma_1 - i\Delta)(\gamma_3 - i\Delta) + \Omega_2^2/4]} . \quad (3.2.10)$$

Korištenjem relacija koje povezuju polarizaciju i električno polje (2.2.1) te izraza za polarizaciju u SVEA aproksimaciji:

$$\mathcal{P}(z, t) = \mu(\rho_{ab}(z, t) + c.c.) \quad (3.2.11)$$

$$P(z, t) = 2\mu\rho_{ab}e^{i[\nu t - kz + \phi(z, t)]} \quad (3.2.12)$$

dobivaju se izrazi za realne (disperzija) i imaginarne (apsorpcija) dijelove linearne susceptibilnosti:

$$\chi' = \frac{N_a |\mu_{ab}|^2 \Delta}{\epsilon_0 \hbar Z} [\gamma_3 (\gamma_1 + \gamma_3) + (\Delta^2 - \gamma_1 \gamma_3 - \Omega_2^2/4)] \quad (3.2.13)$$

$$\chi'' = \frac{N_a |\mu_{ab}|^2}{\epsilon_0 \hbar Z} [\Delta^2 (\gamma_1 + \gamma_3) - \gamma_3 (\Delta^2 - \gamma_1 \gamma_3 - \Omega_2^2/4)] , \quad (3.2.14)$$

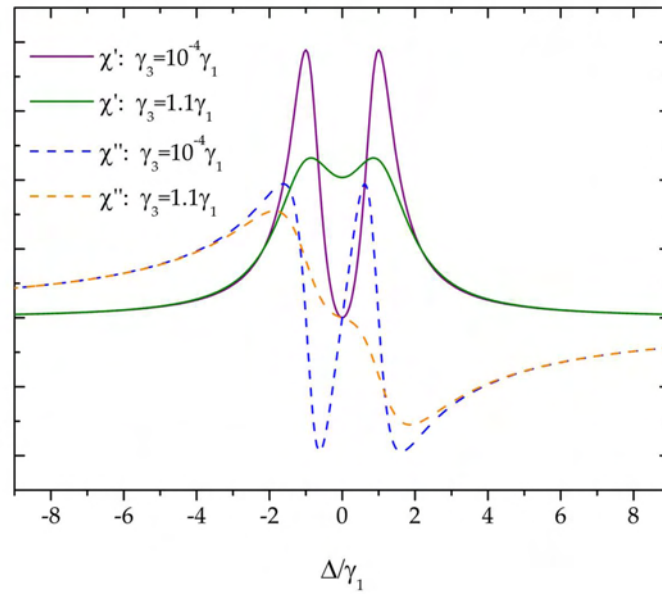
gdje je N_a broj atoma i

$$Z = (\Delta^2 - \gamma_1 \gamma_3 - \Omega_2^2/4)^2 + \Delta^2 (\gamma_1 + \gamma_3)^2 . \quad (3.2.15)$$

Na slici 3.4 prikazana je ovisnost realne i imaginarne susceptibilnosti o odmaku probnog polja za dvije vrijednosti relaksacije koherencije γ_3 . Za $\Delta = 0$ i $\gamma_3 \ll \gamma_1$ realni dio susceptibilnosti isčezava dok je imaginarni dio proporcionalan sa γ_3 . Povećavanjem γ_3 sistem postaje sve više dekoherentan te se brzo smanjuje transparentnost a realni dio susceptibilnosti na rezonanciji prelazi u svoj karakterističan oblik. Kako γ_3 označava relaksaciju dipolno zabranjenog prijelaza, ona je u Λ shemi obično vrlo mala što omogućava efikasno stvaranje transparentnosti. Za $\gamma_3 \ll \gamma_1$ realni dio susceptibilnosti u blizini rezonancije razlikuje se od uobičajenog disperzivnog oblika (anomalna disperzija: $dn/d\omega < 0$). Indeks loma u blizini rezonancije probnog polja u vrlo uskom području raste linearno s povećanjem frekvencije (normalna disperzija: $dn/d\omega > 0$). Ta se činjenica koristi u eksperimentima usporavanja svjetlosti na način da se grupna brzina nekog pulsa definirana sa:

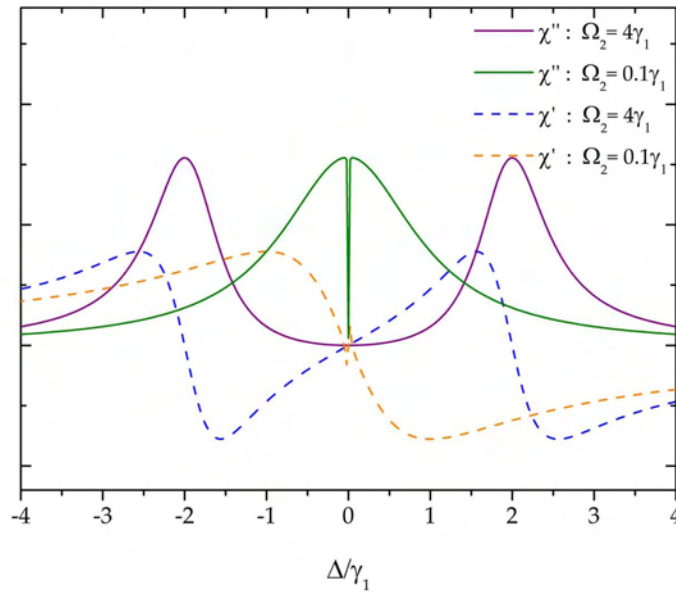
$$v_g = \frac{c}{n_g} = c \left(n + \omega \frac{dn}{d\omega} \right)^{-1} \quad (3.2.16)$$

smanjuje ako se puls širi EIT medijem. Prvo uspješno usporavanje svjetlosti demonstrirano je u Λ shemi natrijevog Bose-Einsteinovog kondenzata (BEC) [25]. Kako je u BEC-u zbog elim-



Slika 3.4: Ovisnost realnog i imaginarnog dijela susceptibilnosti o odmaku probnog polja za dvije vrijednosti relaksacije koherencije nevezanih stanja γ_3 . Jakost vezanja je $\Omega_2 = 2\gamma_1$.

iniranog Dopplerovog širenja linija potrebno vezno polje puno manje snage nego li u eksperimentima s nehomogeno proširenim medijem, transparentija (a time i područje u kojem postoji normalna disperzija) je puno uža od prirodne širine linije što omogućava značajno smanjivanje grupe brzine, čak do 17 m/s. Termin nehomogeno proširene linije ovdje se odnosi na širenje profila linija zbog Dopplerovog efekta. Ako je vjerojatnost emisije ili apsorpcije zračenja na frekvenciji prijelaza između dva stanja atoma jednaka za sve atome uzorka kažemo da je spektralni profil prijelaza homogeno proširen. Ako s druge strane vjerojatnost prijelaza ovisi o npr. prosječnoj brzini atoma tada će različite brzinske grupe uzorka s Maxwellovom raspodjelom brzina imati različitu vjerojatnost apsorpcije ili emisije zračenja [13]. Profil linija tada će biti nehomogeno proširen. Transparentija jako ovisi i o jačini veznog polja što se može vidjeti na slici 3.5. Za slučaj kada je $\Omega_2 \gg \gamma_1$ što znači da je Rabi frekvencija puno veća od širine linije, transparentija je iznimno spektralno široka dok je promjena indeksa loma s frekvencijom puno sporija nego u slučaju slabijeg vezanja. Treba napomenuti da se ovdje ne radi o Autler-Townesovom cijepanju linija jer transmisijski signal nije zbroj dva Lorentzijana, što se najbolje vidi kada je Rabi frekvencija samo malo veća od brzine relaksacije koherencije. Efikasnost inducirana transparentije jako ovisi o tipu atomskog sistema koji se promatra. Uz pretpostavku da su svi parametri sistema jednaki, može se pokazati da je najprikladniji Λ sistem dok je V



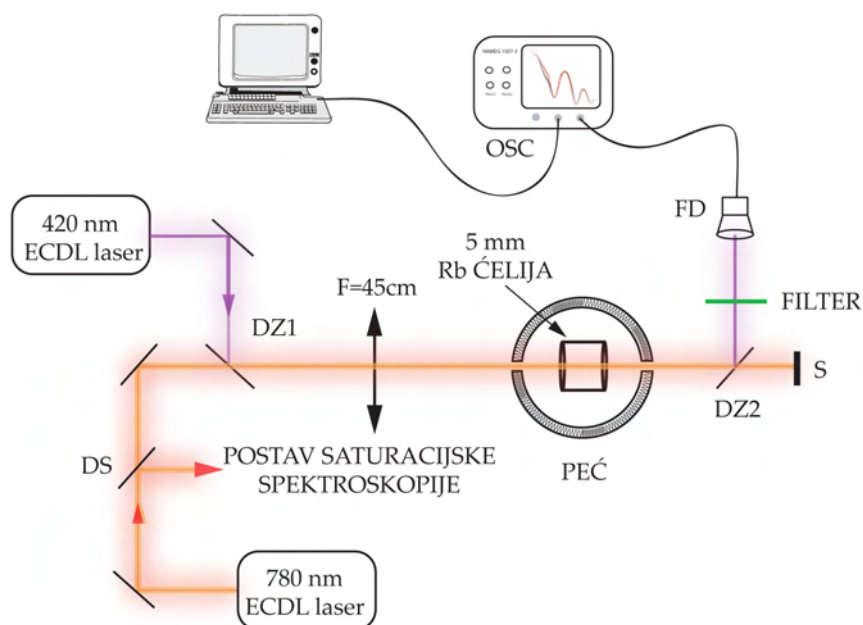
Slika 3.5: Ovisnost realnog i imaginarnog dijela susceptibilnosti o omjeru Rabi frekvencije i širine apsorpcijskog profila probne linije. Jakost vezanja je $\Omega_2 = 2\gamma_1$.

sistem najneprikladniji [42]. U V sistemu EIT nije jedini izvor povećane transparentije jer do smanjenja apsorpcije probe dolazi i zbog efekta saturacije prijelaza koji je vezan jakim veznim poljem.

3.3. EIT u V -shemi para rubidija [17]

Sistemi V tipa s bitno različitim frekvencijama (*mismatched*) probnog i veznog polja idealni su kandidati za lasere bez inverzije naseljenosti na visokim frekvencijama [43]. Razina ostvarene transparentije u V shemi, za razliku od kaskadne sheme, nije osjetljiva na predznak razlike u valnim duljinama probnog i veznog lasera. V shema omogućava optimalnu transparentiju u mediju s nehomogeno proširenim atomskim linijama, naročito ako su frekvencije dvaju lasera bitno različite [42, 44]. Proučavanje elektromagnetski inducirane transparentije u takvim sistemima preduvjet je realizacije ovog novog tipa lasera. U prvom radu [44] koji je pokazao pojavu transparentije u V sistemu s bitno različitim frekvencijama probnog i veznog kontinuiranog lasera korišten je vezni laser relativno velike snage (800 mW) ugođen na prijelaz $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2}$ u rubidiju, što odgovara valnoj duljini od 780 nm. Rabi frekvencija vezanja iznosila je 2.2 GHz, bitno više od širine nehomogeno proširenih linija. Na taj je način ostvarena transparentija na prijelazu $5^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{1/2}$ (422 nm) koja odgovara smanjenju apsorpcije na

rezonanciji za 73%. Teorijska predviđanja pojačanja bez inverzije naseljenosti pokazala su da je u takvom sistemu uz uvođenje nekoherentnog izvora na frekvenciji $5^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{1/2}$ prijelaza moguće očekivati pojačanje probnog polja do 8% [45]. Kako bi se pokazalo da je transparen-



Slika 3.6: Eksperimentalni postav za mjerenje elektromagnetski inducirane transparencije. DZ1 i DZ2 su dikroička zrcala, DS je djelitelj snoga a FD je fotodioda.

ciju moguće ostvariti čak i s diodnim laserima relativno male snage složen je eksperiment čija se shema nalazi na slici 3.6. Izvor atomskih para rubidija je safirna kiveta (*all-sapphire cell*) T oblika duga 5 mm s rezervoarom napunjenim čistim rubidijem. Kiveta je smještena u posebno dizajniranu peć kako bi se zagrijavanjem povećao broj atoma u pari. To je bilo nužno jer je za promatranu apsorpciju probnog lasera na prijelazu $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$ (420 nm) dipolni moment prijelaza relativno mali (oko $3.58/5.3 \times 10^{-29}$ Cm [46]). Maksimalno smanjenje apsorpcije dobiveno je za temperaturu od 110°C , pri kojoj je koncentracija atoma rubidija oko 9×10^{12} cm^{-3} [47]. Na nižim temperaturama dominantni mehanizam smanjenja apsorpcije je optičko pumpanje populacije iz stanja $5^2S_{1/2}(F_g = 2)$ preko $5^2P_{3/2}(F_g = 1, 2, 3)$ stanja u (nevezano) $5^2S_{1/2}(F_g = 3)$ stanje. Na višim temperaturama optička debljina para rubidija postaje glavni faktor smetnje u opažanju EIT signala, dok se optičko pumpanje bitno smanjuje zbog termalizacije populacija hiperfinskih nivoa osnovnog stanja kroz neelastične sudare. Slika 3.7 prikazuje dijagram relevantnih energetske nivoa izotopa ^{85}Rb . Iako je korištena kiveta sa mješavinom

^{85}Rb i ^{87}Rb izotopa u prirodnom omjeru (72% ^{85}Rb i 28% ^{87}Rb) zbog činjenice da su razmaci među hiperfinim nivoima osnovnog stanja dvaju izotopa veći od nehomogenog širenja linija te da je vezni laser postavljen na $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2}$ prijelaz ^{85}Rb izotopa u daljnjim razmatranjima drugi rubidijev izotop biti će ignoriran. U eksperimentu su korištena dva komercijalna sistema kontinuiranih diodnih lasera s vanjskim rezonatorom (*external cavity diode laser* - ECDL), model *Toptica DL100*. Laserske diode su temperaturno stabilizirane, a mijenjanje frekvencije lasera ostvaruje se kombiniranom modulacijom struje i napona na piezo kristalu kojim se zakreće rešetka. Na taj je način moguće prebrisati raspon frekvencija i do 10 GHz bez izlaženja iz određenog laserskog moda. Širina laserske linije iznosi oko 1 MHz.

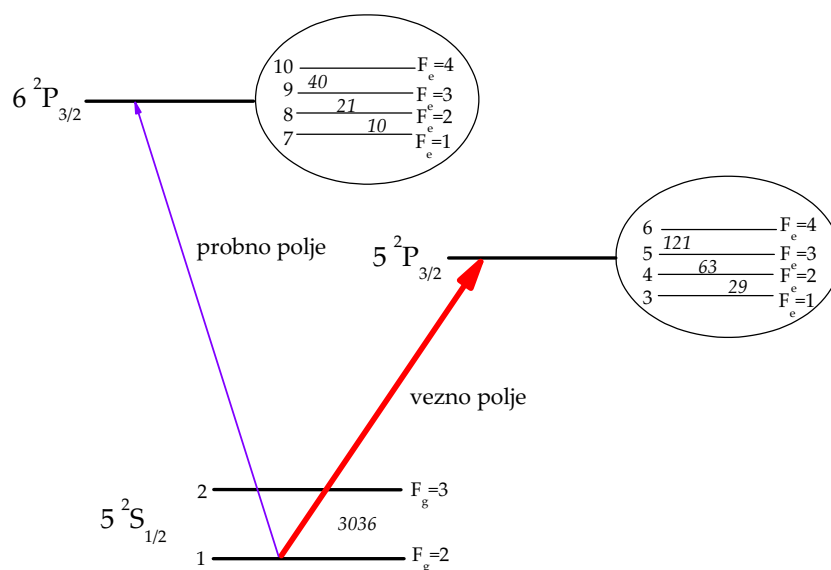
Prvi EIT eksperiment u mediju s nehomogeno proširenim atomskim linijama rubidija pokazao je da se dobra transparentija može postići ako je ukupna Dopplerova širina linija u dvofotonskom procesu kojim se povezuju nevezana stanja manja od Rabi frekvencije veznog polja, odnosno, iznosa Autler-Townesovog cijepanja linija [48]. Rezidualna dvofotonska Dopplerova širina (u Hz) definira se kao:

$$\Delta\nu_D = |(k_1 \pm k_2)| u, \quad (3.3.1)$$

gdje je k_i valni broj polja koji je pozitivan za kaskadne sisteme i negativan za Λ i V sisteme [42], a u je najvjerojatnija Dopplerova brzina:

$$u = \sqrt{\frac{2k_B T}{M}}. \quad (3.3.2)$$

Dakle, u slučaju V i Λ sistema poželjno je da oba polja imaju isti smjer prostiranja jer će tada atomi u svakoj brzinskoj grupi vidjeti frekvencije lasera pomaknute u istom smjeru pa će proces uvijek biti dvofotonski rezonantan, dok je kod kaskadnih sistema obrnuto. Rezidualna dvofotonska Dopplerova širina u ovom slučaju iznosi oko 300 MHz. Preklapanje laserskih zraka optimizirano je pomoću dikroičkog zrcala DZ1, slika 3.6, koje reflektira zračenje na 420 nm a propušta zračenje na 780 nm. Laserski snopovi zatim su fokusirani u rubidijevoj kivetu pomoću leće žarišne duljine od 45 cm čime je promjer zraka u žarištu (*beam waist*) sveden na otprilike 100 μm . Frekvencija veznog lasera, maksimalne izlazne snage od 50 mW stabilizirana je pomoću signala *Doppler-free* saturacijske apsorpcijske spektroskopije [49]. Frekvencija probnog lasera prebrisavala je područje frekvencija oko prijelaza ^{85}Rb $5^2S_{1/2}(F_g = 2, 3) \rightarrow 6^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3, 4)$ brzinom od 230 MHz/s. Snaga probnog lasera smanjena je na 10 μW kako bi se izbjegli saturacijski efekti. Snaga veznog lasera prije ulaska u kivetu iznosila je 35 mW. Za izračun Rabi frekvencije veznog lasera potrebno je znati iznos dipolnog matričnog elementa



Slika 3.7: V shema izotopa ^{85}Rb s hiperfinom strukturom. Razlike u energijama hiperfinih nivoa su dane u MHz. Stanja su označena brojevima od nižih prema višim energijama.

$^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2}$ prijelaza. Prema [46] on iznosi $\langle J = 1/2 || er || J' = 3/2 \rangle = 3.58 \times 10^{-29}$ Cm. Dipolni moment $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 5^2P_{3/2}(F_e = 2)$ hiperfinog prijelaza, na koji je zaključana frekvencija veznog lasera, iznosi $0.648 \cdot 3.58 \times 10^{-29}$ Cm. Poznavajući površinu laserskog snopa u žarištu moguće je pomoću izraza:

$$I = \frac{P}{A} = \frac{cn\epsilon_0}{2} |E|^2 \quad (3.3.3)$$

(gdje je I intenzitet zračenja, c brzina svjetlosti u vakuumu, n indeks loma sredstva i A površina presjeka snopa) izračunati amplitudu električnog polja lasera; $E = 2.9 \times 10^4$ V/m. Rabi frekvencija vezanja

$$\Omega_c = \frac{1}{2\pi} \frac{\mu |E|}{2\hbar} \quad (3.3.4)$$

iznosi oko 500 MHz. Nakon prolaska kroz kivetu laserski snopovi se razdijele pomoću drugog dikroičkog zrcala, DZ2, te se signal probe dodatno pročisti prolaskom kroz Schott BG18 filter koji u potpunosti apsorbira zračenje u području iznad 700 nm. Signal probe detektira se pomoću fotodiode.

Modeliranje sistema izvedeno je u poluklasičnoj aproksimaciji vezanja atoma i elektromagnetskog polja pri čemu se atomski sistem opisuje preko matrice gustoće stanja, a Hamiltonijan međudjelovanja je dan u dipolnoj aproksimaciji. Raspisivanjem jednadžbe gibanja matrice gustoće stanja (Liouvilleova jednadžba), jedn. 2.3.21, dobiva se sistem od 55 vezanih diferencijalnih jednadžbi za sporo promjenjive elemente matrice gustoće stanja. Dijagonalni element ρ_{kk}

određuje naseljenost k-tog stanja dok se nedijagonalni elementi ρ_{kl} mogu razdvojiti na sporo promjenjivu anvelopu i brzo oscilirajući dio $\sigma_{kl} = \rho_{kl}e^{-i\omega_L t}$ što se još naziva i transformacijom u rotirajući sustav. Ideja je da se prijeđe u sustav koji rotira na optičkoj frekvenciji prijelaza, te se primjenom aproksimacije rotirajućeg vala isključe članovi koji titraju s frekvencijama $2\omega_L$.

Nedijagonalni elementi nazivaju se koherencijama. Ako je iznos koherencija različit od nule može se reći da se sistem nalazi u koherentnoj superpoziciji svojstvenih stanja k i l . Koherencije su, pod pretpostavkom da sva stanja sistema imaju definirani paritet zbog čega dijagonalni elementi matrice operatora prijelaznog dipolnog momenta iščezavaju, proporcionalne induciranom prijelaznom dipolnom momentu atoma (izraz 2.3.27).

Fenomenološki su uključeni članovi koji opisuju repopulaciju nivoa osnovnog stanja spontanom emisijom iz viših pobuđenih stanja te termalizaciju stanja osnovnog i pobuđenih nivoa zbog sudarnih procesa. Repopulacijski članovi izračunati su na temelju odgovarajućih vremena života stanja Γ_{ij}^{rad} . Efekti sudarnog miješanja stanja (termalizacija) uključeni su kroz član Π izračunat iz poznatih vrijednosti sudarnog udarnog presjeka za različite sudarne procese [50], srednje brzine atoma i gustoće atoma prema formuli $\Pi = \sigma v N$. Najvjerojatnija brzina atoma dana je izrazom 3.3.2. Mjerenja su rađena u uvjetima u kojima je brzina sudarnog miješanja hiperfinih stanja osnovnog nivoa iznosila $\Pi = 12$ MHz. Ta je brzina veća od vremena života pobuđenih nivoa. Lasersko polje nema dovoljno vremena da u većoj mjeri promijeni ravnotežnu raspodjelu naseljenosti $5^2S_{1/2}(F_g = 2, 3)$ nivoa osnovnog stanja prebacivanjem populacije u gornje $5^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3)$ nivoe iz kojih radijativnom i sudarnom relaksacijom prelaze u $5^2S_{1/2}(F_g = 2)$ nivo. Neelastičnim sudarima atoma prebačena populacija se brzo preraspodjeli između nivoa osnovnog stanja te je efekt optičkog pumpanja zanemariv. Relaksacije koherencija γ_{ij} izračunate su prema relaciji:

$$\gamma_{ij} = \frac{1}{2} \left(\Gamma_i^{\text{ukup}} + \Gamma_j^{\text{ukup}} \right) \quad (3.3.5)$$

gdje Γ_i označava ukupnu relaksaciju atomskog nivoa i ($i=1,2,\dots,10$, prema shemi na slici 3.7). Ukupna relaksacija sastoji se od radijativnih i sudarnih relaksacija. Sudarne relaksacije uključuju elastične i neelastične sudare. Elastični sudari utječu samo na relaksacije koherencija dok neelastični sudari mijenjaju i naseljenosti stanja i relaksacije koherencija. Neelastični sudari uključeni su kroz član Π , a elastični kroz član Γ_i^{sud} u ukupnoj relaksaciji. Slijedi popis svih članova relaksacija hiperfinih nivoa koji su uključeni u teorijsku simulaciju apsorpcijskih

profila:

$$\begin{aligned}
\Gamma_1^{\text{ukup}} &= \Pi \\
\Gamma_2^{\text{ukup}} &= \Pi \\
\Gamma_3^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{31}^{\text{rad}} + \Gamma_1^{\text{sud}} \\
\Gamma_4^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{41}^{\text{rad}} + \Gamma_{42}^{\text{rad}} + \Gamma_1^{\text{sud}} \\
\Gamma_5^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{51}^{\text{rad}} + \Gamma_{52}^{\text{rad}} + \Gamma_1^{\text{sud}} \\
\Gamma_6^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{62}^{\text{rad}} + \Gamma_1^{\text{sud}} \\
\Gamma_7^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{71}^{\text{rad}} + \Gamma_2^{\text{sud}} \\
\Gamma_8^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{81}^{\text{rad}} + \Gamma_{82}^{\text{rad}} + \Gamma_2^{\text{sud}} \\
\Gamma_9^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{91}^{\text{rad}} + \Gamma_{92}^{\text{rad}} + \Gamma_2^{\text{sud}} \\
\Gamma_{10}^{\text{ukup}} &= \Pi + \Gamma_{102}^{\text{rad}} + \Gamma_2^{\text{sud}}
\end{aligned} \tag{3.3.6}$$

Radijativne brzine relaksacije povezane s vremenima života stanja dane su u slučaju $5^2P_{3/2}(F_e) \rightarrow 5^2S_{1/2}(F_g)$ hiperfinih prijelaza sa $\Gamma_{31}^{\text{rad}} = \Gamma_{62}^{\text{rad}} = 6$ MHz, $\Gamma_{41}^{\text{rad}} = \Gamma_{42}^{\text{rad}} = \Gamma_{51}^{\text{rad}} = \Gamma_{52}^{\text{rad}} = 3$ MHz [46]. Za $6^2P_{3/2}(F_e) \rightarrow 5^2S_{1/2}(F_g)$ hiperfine prijelaze brzine radijativne relaksacije iznose $\Gamma_{71}^{\text{rad}} = \Gamma_{102}^{\text{rad}} = 1.3$ MHz, $\Gamma_{81}^{\text{rad}} = \Gamma_{82}^{\text{rad}} = \Gamma_{91}^{\text{rad}} = \Gamma_{92}^{\text{rad}} = 0.65$ MHz [51]. Relaksacije zbog elastičnih sudara atoma uključene su kroz brzine relaksacija Γ_1^{sud} i Γ_2^{sud} koje su određene iz eksperimentalnih vrijednosti širenja linija zbog međusobnih sudara istovrsnih atoma (*self broadening*) odgovarajućih rubidijevih linija [13]. Za prijelaze $5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$ i $6^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$ one iznose $\Gamma_1^{\text{sud}} = 30$ MHz i $\Gamma_2^{\text{sud}} = 24$ MHz.

Sustav vezanih diferencijalnih jednadžbi rješavan je numeričkom integracijom koristeći Runge-Kutta metodu četvrtog reda. Početni uvjeti postavljeni su na način da su svi elementi matrice gustoće stanja u trenutku $t = 0$ identični nuli osim ρ_{11} i ρ_{22} (populacije hiperfinih nivoa osnovnog stanja) čije su vrijednosti jednake $0.5 \cdot f(v)$, gdje je $f(v) = \frac{1}{u\sqrt{\pi}} \cdot e^{-v^2/u^2}$ faktor Maxwellove raspodjele brzina (u je najvjerojatnija brzina definirana sa 3.3.2 [13]). U računanju koeficijenta apsorpcije i indeksa loma korišteno je stanje sustava nakon vremena $t = 10^{-6}$ s, što odgovara uzimanju stacionarnog rješenja sustava jednadžbi. Stacionarno rješenje prikladno je s obzirom da se atomski sistem pobuđuje kontinuiranim laserima. Realni i imaginarni dio koherencije za određeni hiperfinski prijelaz povezani su s indeksom loma i apsorpcijom sredstva. Zbog izbornih pravila $F_e = F_g \pm 1$, ukupni se apsorpcijski profil dobija dodavanjem doprinosa triju hiperfinih prijelaza $5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 6^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3)$ pa je apsorpcijski

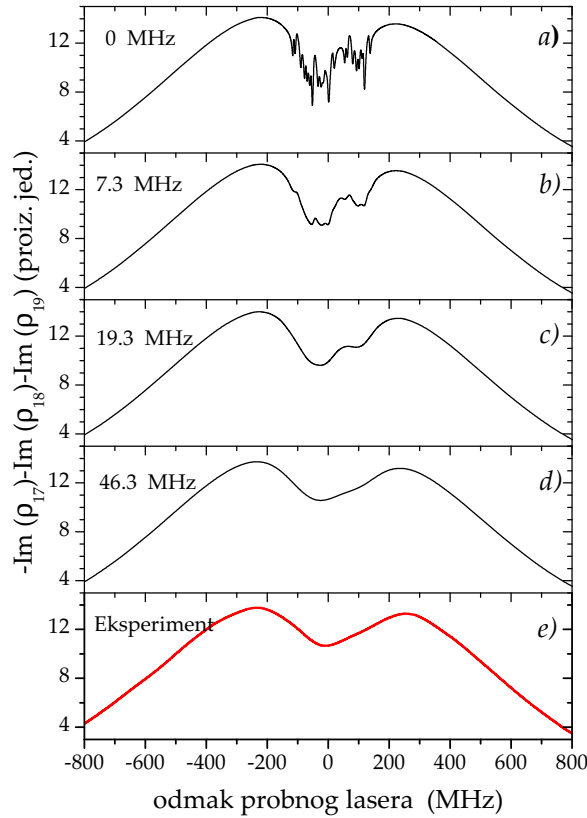
profil na valnoj duljini probnog lasera proporcionalan s $\text{Im}(\rho_{17}) + \text{Im}(\rho_{18}) + \text{Im}(\rho_{19})$. Dopplerovo širenje linija simulirano je numeričkom integracijom preko raspodjele brzina. Raspodjela brzina atoma ulazi u matricu gustoće stanja preko odmaka od rezonancije probnog i veznog lasera definiranih izrazima:

$$\begin{aligned}\Delta_{p1i} &= \omega_p - \omega_{1i} - k_p \cdot v_z & i &= 7, 8, 9 \\ \Delta_{v1j} &= \omega_v - \omega_{1j} - k_v \cdot v_z & j &= 3, 4, 5.\end{aligned}\quad (3.3.7)$$

ω_p i ω_v označavaju frekvencije probnog i veznog lasera, v_z je komponenta brzine atoma paralelna sa smjerom širenja lasera i duljinom kivete, k_p i k_v su valni brojevi laserskih polja, a ω_{1i} i ω_{1j} su frekvencije dipolno dozvoljenih prijelaza. Stupanj inducirane transparentije dominantno ovisi o koherencijama ρ_{kl} nevezanih prijelaza. Mijenjanje iznosa relaksacija tih koherencija značajno mijenja izgled apsorpcijskih profila. Na slici 3.8 prikazani su apsorpcijski profili za nekoliko vrijednosti iznosa relaksacija pojedinih koherencija u rasponu od 0 MHz što odgovara idealnoj koherenciji među $6^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3, 4)$ i $5^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3, 4)$ stanjima do 46.3 MHz što odgovara iznosu koherencije kada su uključeni svi relaksacijski efekti. Kao što se i očekuje, simulirani apsorpcijski profil za stupanj koherencije koji odgovaraju eksperimentalnim uvjetima se dobro slaže sa izmjerenim apsorpcijskim profilom, slika 3.8e. Račun je proveden za Rabi frekvenciju od 500 MHz, $\omega_p = \omega_{17}$ i $\omega_v = \omega_{14}$. Slika 3.9 ilustrira ovisnost ukupne apsorpcije probnog lasera o iznosu relaksacija koherencija ρ_{kl} . Za relaksacije koherencija brže od oko 400 MHz nivo transparentije postaje neovisan o relaksacijama koherencija i u tom slučaju je dobivena transparentija rezultat smanjenja populacije $5^2S_{1/2}(F_g = 2)$ nivoa osnovnog stanja zbog saturacije snažnim veznim poljem. Saturacija nastupa kada polje koje veže određene nivoe bitnije doprinosi ratama naseljavanja tih nivoa. Povećanjem snage polja mijenja se i odnos između naseljenosti donjeg i gornjeg nivoa. Može se pokazati [13] da je zbog brzinski selektivne saturacije nehomogeno proširenog prijelaza razlika naseljenosti dva nivoa dana sa:

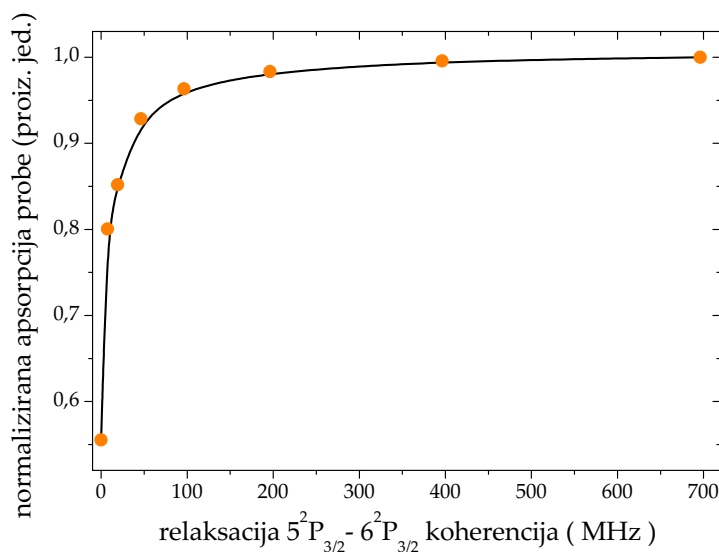
$$\Delta N(\omega, v_z) = \Delta N^0(v_z) \left[1 - \frac{S_0(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0 - kv_z)^2 + (\gamma_s/2)^2} \right], \quad (3.3.8)$$

gdje je N^0 razlika naseljenosti kada nema saturacije, $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$ je prirodna širina linije, S_0 je iznos frekventno ovisnog parametra saturacije na frekvenciji centra linije prijelaza a $\gamma_s = \gamma\sqrt{1 + S_0}$ je širina nastale rupe u brzinskoj raspodjeli naseljenosti pojedinih nivoa sa minimumom na $v_z = (\omega - \omega_0)/k$. Ove rupe u brzinskoj raspodjeli naseljenosti pojedinih nivoa još se nazivaju i Bennetove rupe (*Bennet hole*). Ako pretpostavimo da je prije pobude naseljenost



Slika 3.8: (a)-(d) Simulirani apsorpcijski profili za različite vrijednosti relaksacija koherencija između $^{85}\text{Rb } 6^2P_{3/2}$ i $5^2P_{3/2}$ nivoa. (e) Eksperimentalni apsorpcijski profil za vezno polje na frekvenciji $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 5^2P_{3/2}(F_e = 2)$ prijelaza.

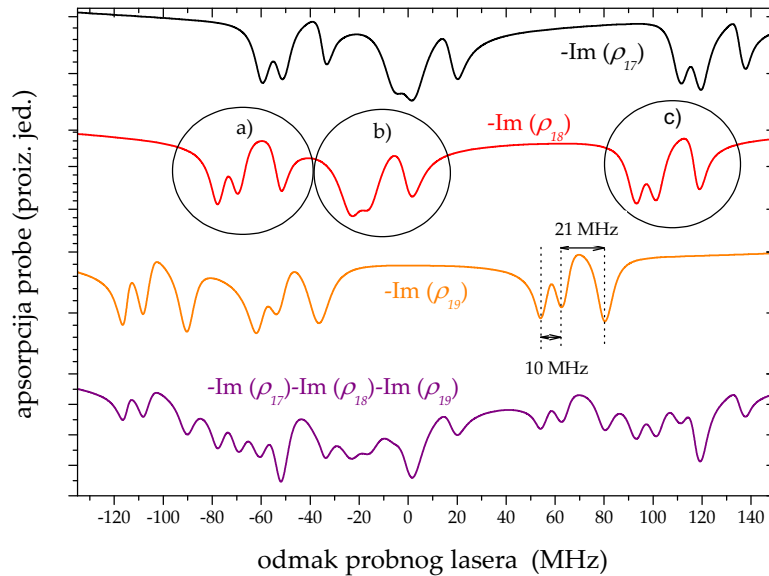
gornjeg nivoa bila zanemariva, saturacijom prijelaza se razlika naseljenosti može smanjiti za maksimalno 50% (za $S_0 = 1$), što zapravo znači smanjenje naseljenosti donjeg nivoa za 50%. Saturacija povećava širinu linije te smanjuje koeficijent apsorpcije za faktor $1/\sqrt{2}$ neovisno o frekvenciji [13]. Apsorpcija probnog lasera prikazana na slici 3.9 normirana je na apsorpciju na velikim brzinama relaksacija koherencija te je time isključen efekt saturacije. Za brzine relaksacija koherencija sporije od oko 100 MHz transparentnost medija naglo raste. U slučaju kada je brzina relaksacija koherencija jednaka nuli, transparentnost medija poraste za 50% u odnosu na vrijednost dobivenu saturacijom. To je rezultat koherentne superpozicije stanja koji je moguć jedino u atomskom sistemu u kojemu su vremena života nevezanih stanja praktički beskonačna (metastabilna stanja) i gdje je vjerojatnost sudara beskonačno mala. Ali sudari su nužni da se izbjegne optičko pumpanje na hiperfinim nivoima osnovnog stanja. Efekt optičkog pumpanja u aktualnom atomskom sistemu mogao bi se izbjeći vezanjem hiperfinih nivoa osnovnog stanja mikrovalnim zračenjem odgovarajuće frekvencije (3036 MHz). Energija sudara bitno bi se smanjila u uvjetima ultrahladnih oblaka atoma (MOT, BEC).



Slika 3.9: Maksimalna transparentnost kao funkcija brzine relaksacija koherencija.

Slika 3.8a pokazuje i da se u realnim sistemima gdje se vezani prijelazi često sastoje od većeg broja hiperfinih prijelaza, u uvjetima nehomogeno proširenog medija i idealne koherencije nevezanih stanja, pojavljuju višestruke EIT rezonancije. Na slici 3.10 prikazano je uvećano područje frekvencija u blizini $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 6^2P_{3/2}(F_e = 1)$ prijelaza (oko $\Delta=0$). Jasno su uočljivi doprinosi svakog pojedinog hiperfinog nivoa u ukupnom apsorpcijskom profilu. Za dani hiperfinski prijelaz, zahvaljujući hiperfinoj strukturi $^{85}\text{Rb } 5^2P_{3/2}$ i $6^2P_{3/2}$ stanja postoji devet EIT rezonancija. Zbog Dopplerovog efekta mijenjaju se rezonantne frekvencije prijelaza. Različite brzinske grupe odgovaraju različitim odmacima frekvencija probnog i veznog lasera te su stoga opazive sve EIT rezonancije. Tri grupe rezonancija na slici 3.10 označene sa (a), (b) i (c) odgovaraju brzinskim grupama za koje je vezni laser u rezonanciji sa $5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 5^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3)$ prijelazima, redom. Hiperfina struktura $6^2P_{3/2}$ stanja reflektira se u tri rezonancije unutar svake od grupa.

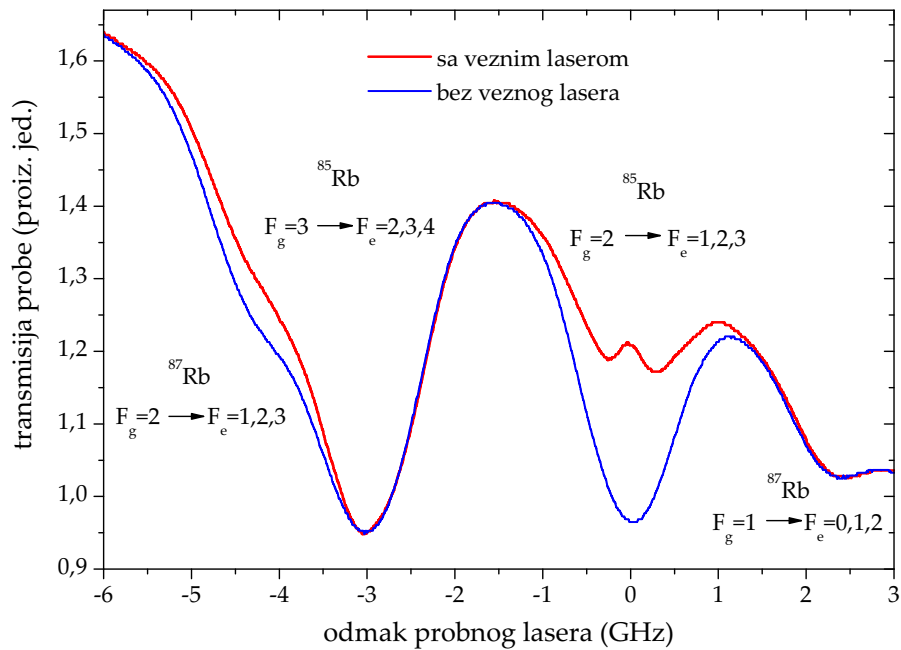
Ukupni izmjereni apsorpcijski profil koji uključuje i odgovarajuće prijelaze ^{87}Rb izotopa prikazan je na slici 3.11. Dva para hiperfinih linija koje odgovaraju pojedinom izotopu rubidija rezultat su hiperfinog cijepanja osnovnog stanja rubidija. U slučaju ^{85}Rb izotopa razmak hiperfinih nivoa iznosi 3036 MHz, dok je kod ^{87}Rb taj razmak puno veći i iznosi 6835 MHz. Pojedini doprinosi apsorpcijskom profilu od hiperfine strukture $6^2P_{3/2}$ stanja nisu razlučeni zbog Dopplerovog širenja linija koje za ukupni profil iznosi 1086 MHz (FWHM) na 110°C. Uključivanjem veznog lasera ugođenog na frekvenciju $5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 5^2P_{3/2}(F_e = 2)$ prijelaza dolazi do smanjenja apsorpcije za 67% u centru linije. Kako nema značajnijeg povećanja



Slika 3.10: Uvećano područje centralnog dijela apsorpcijskog profila u aproksimaciji idealne koherencije nevezanih stanja.

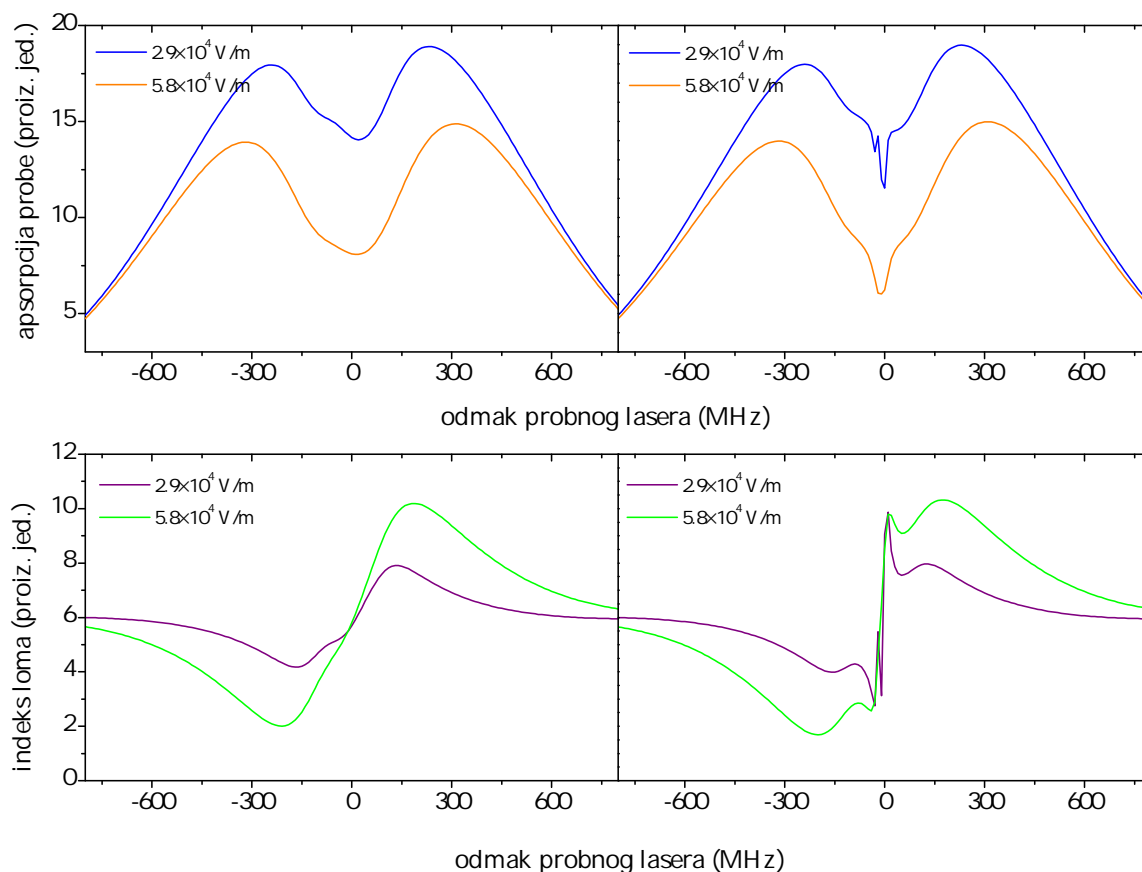
apsorpcije na $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 3) \rightarrow 6^2P_{3/2}(F_e = 2, 3, 4)$ prijelazu može se zaključiti da je optičko pumpanje uspješno izbjegnuto. Usporedba simuliranih i izmjerenih profila vodi na zaključak da je dominantni uzrok smanjenja apsorpcije saturacija jakim veznim poljem. Ipak, oko 8% inducirane transparentije potječe od elektromagnetski inducirane transparentije.

Teorijska simulacija apsorpcijskih profila nehomogenog medija za sve tri moguće sheme vezanja zatvorenog sustava tri nivoa (Λ , Ξ i V) i za sve tri moguće kombinacije odnosa valnih duljina veznog i probnog lasera ($\lambda_v < \lambda_p$, $\lambda_v = \lambda_p$, $\lambda_v > \lambda_p$) pokazala je da se u sve tri sheme vezanja najbolja transparentija može očekivati za slučaj $\lambda_v < \lambda_p$ [43]. Pri tome je najveći nivo transparentije ostvariv u Λ shemi vezanja. Zbog Dopplerovog pomaka Autler-Townesovih komponenti (prisutnih zbog jakog veznog polja) dalje od centra rezonancije s povećanjem relativne brzine atoma te odsutnosti preklapanja komponenti za nultu brzinsku grupu ne dolazi do njihovog preklapanja s transparentijom koja nastaje u centru za nultu brzinsku grupu. Ukoliko se, na primjer, uzme samo mogućnost $\lambda_v > \lambda_p$, što je naročito zanimljivo s aspekta ostvarivanja laserskog efekta bez inverzije naseljenosti (LWI), tada je najbolja transparentija ostvariva u V sistemu. To je stoga što je preklapanje Autler-Townesovih komponenti za nultu brzinsku grupu, koje uvijek postoji kada je $\lambda_v > \lambda_p$, u ovom slučaju najmanje. Stoga su sustavi u kojima vezana stanja odgovaraju V shemi najbolji kandidati za LWI eksperimente.



Slika 3.11: Izmjereni apsorpcijski profili probnog lasera za slučaj kada je vezni laser uključen i kada nije uključen. Snaga veznog lasera iznosi 35 mW, a frekvencija mu je zaključana na frekvenciju $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 5^2P_{3/2}(F_e = 2)$ prijelaza.

Zanimljivo je pogledati kako inducirana transparentnija u promatranom sistemu ovisi o snazi veznog lasera. Teorijska simulacija realnog i imaginarnog dijela sporo promjenjivih koherencija stanja povezanih probnim laserom (apsorpcijski i disperzijski profil) za dvije različite snage veznog lasera u ovisnosti o odmaku frekvencije probnog lasera od rezonancije prikazana je na slici 3.12. Simulacije su rađene uz brzine relaksacije koherencija od 46.3 MHz, što odgovara iznosu koherencije kada su uključeni svi relaksacijski efekti. Iako je očito da povećanjem snage veznog lasera dolazi do smanjenja apsorpcije dvojbena je radi li se o efektu povezanom sa povećanjem saturacije prijelaza zbog veće snage pumpnog lasera ili se transparentnija povećava zbog EIT efekta. Na istoj su slici i rezultati simulacija dobiveni za slučaj idealnih koherencija dvaju nevezanih nivoa. Pri idealnoj koherenciji EIT prozor transparentnije postaje jasno uočljiv. I disperzijski profil oko frekvencije rezonancije ima nagib koji odgovara normalnoj disperziji (kao npr. na slici 3.4), a koji je povezan sa EIT efektom. Dubina prozora transparentnije ne mijenja se bitno s povećanjem snage veznog lasera, no dolazi do određenog povećanja širine prozora. Povećanje EIT efekta može se provjeriti pogleda li se, na primjer, iznos sporo promjenjive koherencije σ_{47} između stanja koja su povezana sa osnovnim stanjem



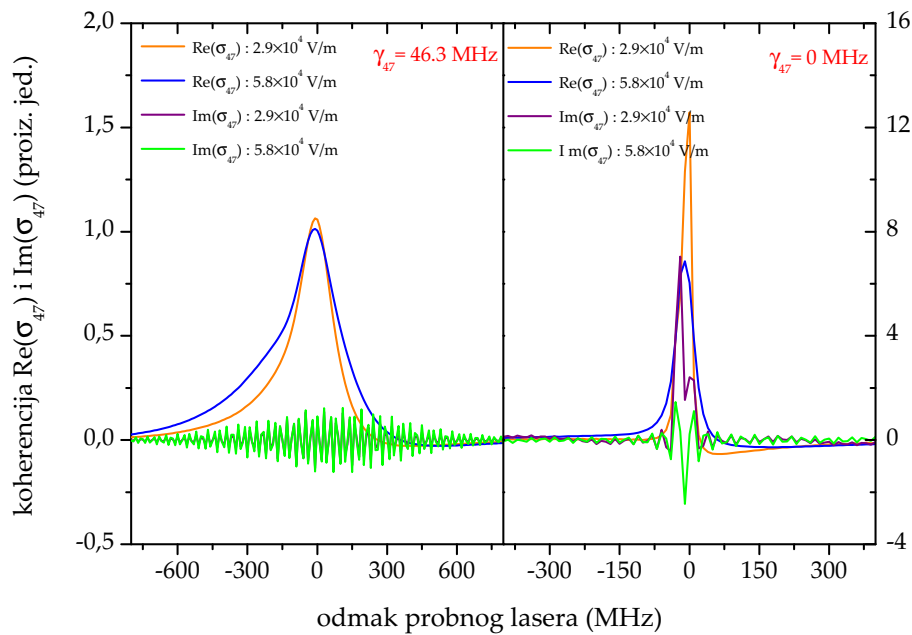
Slika 3.12: Imaginarni i realni dijelovi koherencija između osnovnog $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 2)$ i pobuđenog $^{85}\text{Rb } 6^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3)$ stanja (apsorpcija i indeks loma na valnoj duljini probnog lasera) za jakosti veznog polja od $2.9 \times 10^4 \text{ V/m}$ koja odgovara eksperimentalnim uvjetima i dvostruko većoj jakosti polja iznosa $5.8 \times 10^4 \text{ V/m}$. Vezni laser postavljeni je na $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 2) \rightarrow 5^2P_{3/2}(F_e = 2)$ prijelaz. Lijevi dio slike prikazuje rezultate simulacija za brzinu relaksacije koherencija nevezanih nivoa od 46.3 MHz, dok su simulacije na desnom dijelu slike rađene za slučaj idealne koherencije dvaju nevezanih nivoa.

dvama laserima kada je odmak $\Delta = 0$. Realni i imaginarni dijelovi σ_{47} koherencije u ovisnosti o odmaku probnog lasera od rezonancije prikazani su na slici 3.13 za brzinu relaksacije σ_{47} koherencije ostvarene u eksperimentu te za slučaj idealne koherencije. U realnim uvjetima očito nema bitnog povećanja koherencije (na rezonanciji je čak i smanjena) te se može zaključiti da je povećanje transparentije dominantno određeno saturacijom prijelaza snažnim veznim poljem. Zbog Dopplerovog efekta trebalo bi uzeti u obzir i iznose koherencija između ostalih nevezanih prijelaza u sistemu. Ipak, čini se razumnim pretpostaviti da niti kod ostalih nevezanih parova nivoa ne dolazi do povećanja koherencija sa povećanjem snage veznog lasera. Kada je vrijeme relaksacije koherencije beskonačno, koherencija na rezonanciji se bitno smanjuje povećanjem snage veznog lasera, dok je nešto veća u području izvan rezonancije.

Analitičkim rješavanjem pojednostavljenog sistema bez hiperfine strukture pobuđenih stanja u uvjetima slabe probe za koherencije nevezanih stanja može se pokazati da su u V sistemu ovog tipa koherencije na rezonanciji proporcionalne sa:

$$\rho_{11} \frac{\Omega_c}{\Omega_p}, \quad (3.3.9)$$

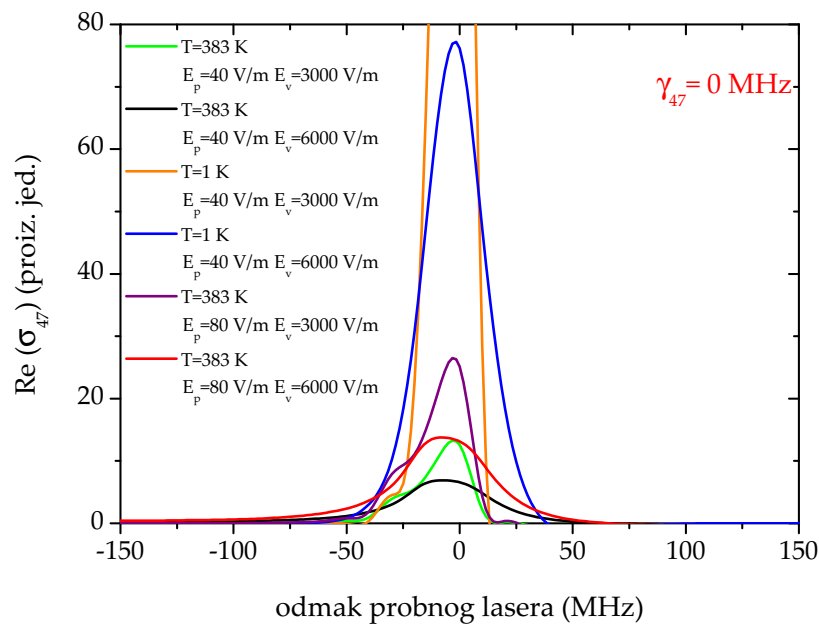
gdje je ρ_{11} populacija osnovnog nivoa, Ω_c Rabi frekvencija veznog lasera a Ω_p Rabi frekvencija probnog lasera [44]. U promatranom sistemu, zbog preklopljenih nivoa hiperfine strukture pobuđenih stanja, istovremeno se pobuđuje veći broj koherencija između parova hiperfinskih nivoa nevezanih stanja te je uspoređivanje s analitičkim rezultatima za sistem bez uključene hiperfine strukture nemoguće. Također treba uzeti u obzir da se povećanjem snage lasera mijenja i naseljenost osnovnog nivoa, tj. parametri koji određuju iznos koherencije nevezanih stanja nisu nezavisni. Preostalo je još jedino provjeriti ponašanje koherencije dvaju nevezanih



Slika 3.13: Realni i imaginarni dio koherencije σ_{47} nevezanih stanja za dvije snage veznog lasera. Frekvencija veznog lasera odgovara frekvenciji korištenoj u prethodnim simulacijama.

stanja pri promjeni omjera snaga veznog i probnog lasera te provjeriti kako koherencije ovise o snazi veznog lasera u mediju u kojem se hiperfinski prijelazi ne preklapaju u potpunosti. Utjecaj promjene omjera snaga veznog i probnog lasera u uvjetima idealne σ_{47} koherencije prikazan je na slici 3.14. Prikazan je i model medija u kojem je nehomogeno širenje linija znatno smanjeno zbog postavljanja temperature para rubidija na 1 K (nehomogena širina linija tada iznosi

$\delta\nu_D = 30$ MHz). Najveći utjecaj na promjenu iznosa koherencije na rezonanciji daje smanjenje Dopplerovog širenja linija dok se mijenjanjem omjera snaga probnog i veznog lasera pri konstantnoj snazi probnog lasera mijenja iznos koherencija, ali je i dalje koherencija pri manjoj snazi veznog lasera veća u blizini rezonancije od one pri većoj snazi veznog lasera. Povećanje koherencije smanjenjem Dopplerovog širenja linije logično je, jer se smanjenjem temperature smanjuje i širina Maxwellove raspodjele brzina te najvjerojatnija brzina atoma, čime se direktno povećava broj atoma u nultoj brzinskoj grupi koji je proporcionalan naseljenostima hiperfinskih nivoa osnovnog stanja. S druge strane, povećanje koherencije sa povećanjem snage probnog lasera u odnosu na pumpni laser nije baš očekivano. Eksperimentalno istraživanje ovisnosti transparentije o pojedinim parametrima moglo bi doprinijeti boljem razumijevanju fizikalnih procesa odgovornih za pojavu elektromagnetski inducirane transparentije u nehomogeno proširenim rubidijevim parama.

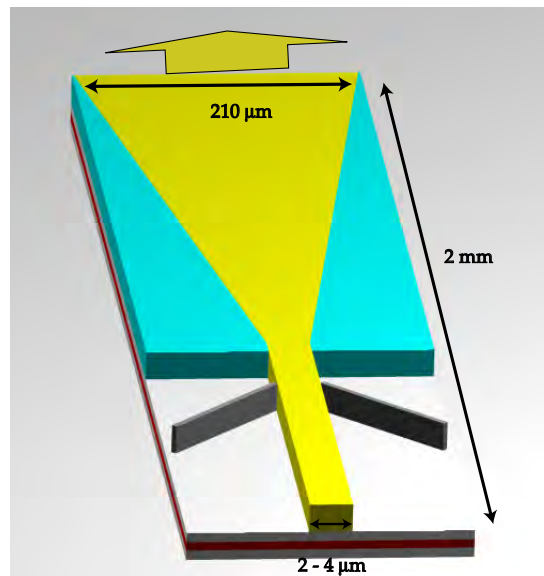


Slika 3.14: Realni dio koherencije σ_{47} nevezanih stanja za različite snage probe te u slučaju kada je nehomogeno širenje linija bitno smanjeno.

3.4. Optičko poluvodičko pojačalo

Istraživanja elektromagnetski inducirane transparentije u sistemu rubidijevih atoma s valnom duljinom probe puno kraćom od valne duljine veznog lasera [44] pokazala su da se korištenjem snažnog veznog lasera može postići transparentija koja uklanja i do 73% apsorpcije u rezo-

nanciji. Kako su opravo opisana istraživanja bila ograničena korištenjem bitno slabijeg poluvodičkog lasera razmišljalo se o mogućnostima dobivanja jačeg veznog laserskog polja. Najpraktičnije rješenje bilo je konstruiranje optičkog poluvodičkog pojačala postojećeg sistema s vanjskim rezonatorom. Takav sistem ima mnogo mogućih primjena, naročito u području femtosekundne laserske spektroskopije i kod laserskog hlađenja atoma i molekula. Iako je teorijska analiza pokazala da povećanjem snage veznog polja ne dolazi do povećanja koherencije nevezanih nivoa bilo bi zanimljivo eksperimentalno provjeriti utjecaj snage veznog polja na induciranu transparentiju, naročito na sistemu hladnih atoma gdje više nema preklapanja između pojedinih hiperfinskih prijelaza. Takav smjer istraživanja omogućen je upravo dovršenom magneto-optičkom stupicom rubidijevih atoma.



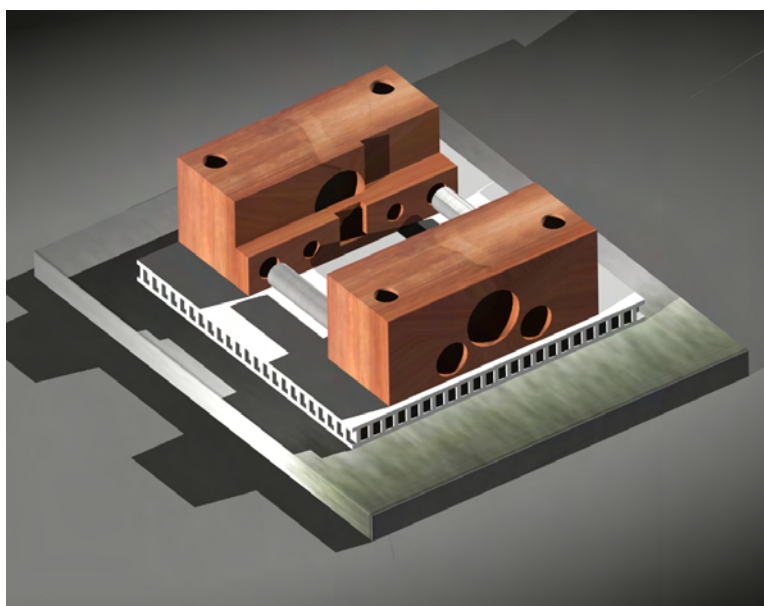
Slika 3.15: Struktura čipa optičkog poluvodičkog pojačala.

Optičko poluvodičko pojačalo (*tapered amplifier*) zapravo je pojačalo putujućeg vala (*travelling wave amplifier*) s trapezoidnom (*tapered*) strukturom. Ulazna i izlazna stijenka čipa prekrivene su antirefleksivnim slojem kako bi se izbjegao laserski efekt unutar aktivnog područja čipa (otud i naziv pojačalo putujućeg vala). Svaka refleksija stvara povratnu vezu pojačalu. Iz općenite formule za pojačanje pojačala:

$$G = \frac{G_s}{1 + F_B G_s} \quad (3.4.1)$$

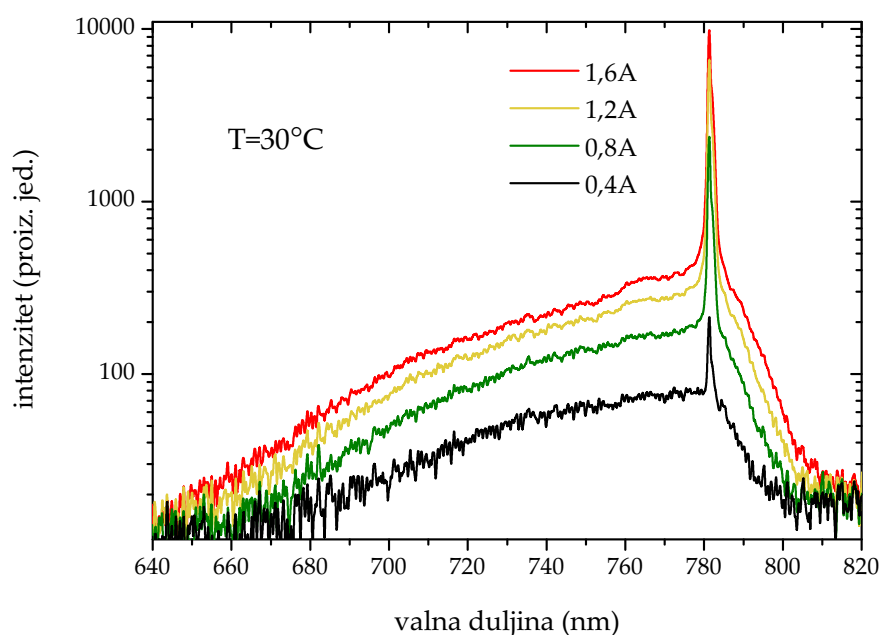
vidi se da se povećanjem povratne veze F smanjuje pojačanje G pojačala. G_s predstavlja pojačanje signala jednim prolaskom [52]. Struktura čipa prikazana je na slici 3.15 i sastoji se od

dva glavna dijela. Lateralno vođenje upadne laserske svjetlosti u prvom dijelu čipa ostvaruje se vođenjem po brazdi indeksa loma bitno različitog od okoline (*ridge-waveguide section*) što daje relativno kvalitetan izlazni snop. U drugom dijelu trapezoidnog oblika vođenje svjetlosti ostvaruje se vođenjem pojačanjem (*gain-guided*) tako da se dobro definira dio aktivnog područje kojim struja prolazi. Trapezoidni oblik bitan je zbog smanjenja efekta saturacije pojačanja jer se njime smanjuje intenzitet zračenja za danu optičku snagu i istovremeno se povećava broj nosioca naboja. Zbog upravo opisane strukture čipa izlazno pojačano lasersko zračenje ima snažan astigmatizam te ga je potrebno zasebno horizontalno i vertikalno kolimirati. Obično se vertikalna kolimacija postiže pomoću asferične leće identične onoj na ulaznoj strani pojačala (koja pak fokusira upadno zračenje na usku ulaznu pukotinu) dok se kolimacija u smjeru širenja trapeza (horizontalna) postiže postavljanjem odgovarajuće plano-konveksne leće. U procesu pojačanja dolazi i do jedne neželjene pojave, stvaranja pojačane spontane emisije (*amplified spontaneous emission - ASE*) koja predstavlja šum pojačanom ulaznom signalu. ASE se može relativno dobro odvojiti od pojačanog signala prostornim filtriranjem. S druge strane, ASE je korisna u procesu usklađivanja optičkih komponenti pojačala jer se dio ASE zračenja koji prolazi kroz ulaznu pukotinu kolimira ulaznom asferičnom lećom te se taj snop mora dobro preklopiti sa snopom koji se želi pojačati (time je osigurano dobro fokusiranje na ulaznu pukotinu).



Slika 3.16: Kućište optičkog poluvodičkog pojačala.

Korišteno je pojačalo tvrtke *m2k-laser* model *TA.780_1000* koji na izlazu daje maksimalnih 1 W snage pojačavajući lasersko zračenje snage 20-50 mW na 780 nm na sobnoj temperaturi. Dizajn kućišta optičkog poluvodičkog pojačala preuzet je iz [53] uz manje izmjene i ilustriran je na slici 3.16. Sastoji se od dva povezana bakrena bloka koji služe kao nosači asferičnih leća ($f=8$ mm, $NA=0.5$) te za temperaturnu stabilizaciju poluvodiča pričvršćenog na jedan od blokova. Nosač poluvodiča ujedno je i kontakt za katodu te je zbog toga i cijeli blok postao kontaktom katode poluvodičkog pojačala. Temperatura kućišta regulira se pomoću Peltier elementa snage 13W koji omogućava efikasno stvaranje razlike temperature od 80°C pri maksimalnoj struji do 5 A. Temperaturna i strujna regulacija poluvodiča realizirana je korištenjem *Wavelength Electronics LDTC2/2* modula koji u sebi objedinjuje obje funkcije i omogućava maksimalnu struju kroz diodu i Peltier element do 2 A. Povratna veza temperaturne regulacije ostvaruje se korištenjem *LM335* temperaturnog senzora, spojenog na bakreno kućište. Spektar



Slika 3.17: Spektar optičkog poluvodičkog pojačala za različite jakosti struja kroz poluvodič. Ulazni signal u pojačalo dolazi iz diodnog lasera valne duljine 780 nm i spektralne širine < 1 MHz. Snaga lasera je oko 4.4 mW.

pojačanog ECDL lasera na 780 nm snimljen za više struja prikazan je na slici 3.17 u logaritamskoj intenzitetskoj skali. Prostorno je signal filtriran korištenjem spektrometra sa optičkim vlaknom. Stoga je pojačani signal puno izraženiji od ASE emisije. Širina pojačanog signala

na valnoj duljini ulaznog laserskog snopa određena je instrumentalnim profilom spektrometra (rezolucije oko 0.6 nm), dok je stvarna širina podjednaka ulaznoj spektralnoj širini.

Nedavna istraživanja pokazala su da je moguće iskoristiti optičko poluvodičko pojačalo za pojačanje femtosekundnog frekventnog češlja čime se ostvaruje veći signal u f -u- $2f$ interferometrima koji se pak koriste za određivanje i stabilizaciju relativne faze između anvelope i najbliže amplitude vala-nosioca [54]. Druga područja primjene uključuju lasersko zarobljavanje i hlađenje [55] te povećavanje efikasnosti nelinearne konverzije frekvencije kontinuiranih lasera u UV području [55, 56]. Kod pojačavanja femtosekundnog frekventnog češlja potrebno je voditi računa o saturaciji pojačanja i konačnom vremenu potrebnom za rekombinaciju nosioca naboja u poluvodičima (reda veličine nekoliko stotina pikosekundi [57]). Stoga se najprije pulsevima koji čine frekventni češalj uvodi linearni cvrkut propuštanjem kroz dovoljno duga optička vlakna. Na taj se način femtosekundni puls može produljiti u vremenu za par redova veličine. Osim konačnog vremena rekombinacije nosioca naboja, pojačanje ultrakratkih pulseva limitirano je i neravnotežnom ultrabrzom (fs) dinamikom zagrijavanja nosioca naboja [58]. Taj efekt raste s povećanjem ulazne snage pulsa te se za veće ulazne snage dobiva puno manje pojačanje no za niže snage.

3.5. Zaključak

Rezultati proučavanja EIT efekta u realnom atomskom sistemu, atomima rubidija koherentno pobuđenima u V shemi vezanja probnog i veznog lasera, pokazala su da je naročito važno uzeti u obzir sve efekte kako bi se moglo ispravno zaključiti o prirodi opaženih pojava. EIT je koherentni efekt, no u V shemi vezanja zajednički nivo je osnovno stanje atoma što neizbježno uključuje efekte saturacije jačim veznim laserskim poljem. Upravo zbog toga pojedini autori smatraju da je EIT u V shemi neizvediv [21]. Zbog svega navedenog nužno je napraviti teorijski model promatranog sistema s uključenim međudjelovanjem atoma i laserskih polja te svim značajnijim relaksacijama koherencija i populacija. Iz modela je tada moguće zaključiti uzrokuju li smanjenje apsorpcije koherentni ili nekoherentni (i nelinearni) efekti i koji su optimalni parametri sistema za maksimiziranje koherencija. S druge strane, glavna pokretačka ideja istraživanja induciranja transparentije u mediju u V shemi vezanja je vezana uz demonstraciju laserskog efekta bez potrebe za inverzijom naseljenosti što bi omogućilo izradu lasera, koji bi radili na valnim duljinama na kojima je otežano ostvarivanje inverzije naseljenosti (vi-

sokofrekventno područje elektromagnetskog spektra). Buduća istraživanja ovog fenomena mogla bi biti ostvarena na uzorku ultrahladnih rubidijevih atoma, gdje je vrijeme života koherencija puno duže i gdje bi se mogla detaljnije provjeriti ovisnost induciranih koherencija o snagama probnog i veznog lasera.

4 Međudjelovanje femtosekundnih pulseva i rezonantnog medija mjereno FROG tehnikom

Opis međudjelovanja femtosekundnih pulseva s rezonantnim medijem još uvijek nije teorijski riješen na općenit i konzistentan način. Razlog tome leži u činjenici da u blizini rezonancije dolazi do značajnog međudjelovanja lasera i medija. Laserski puls bitno utječe na svojstva medija, a izmjenjeni medij također utječe na prostiranje pulsa medijem. Ova situacija podsjeća na opis fenomena elektromagnetski inducirane transparencije pa ne iznenađuje činjenica da se pomoću EIT-a može regulirati međudjelovanje ultrakratkih pulseva s rezonantnim medijem. Osim toga, zbog velike energije ultrakratkih pulseva mogućnost induciranja višefotonskih prijelaza u mediju je bitno povećana, što može, između ostalog, rezultirati značajnom ionizacijom medija. Stoga je bitno sakupiti što je moguće više informacija o samom pulsu nakon što je prošao rezonantnim medijem. Za karakterizaciju električnog polja pulsa nakon prostiranja kroz rezonantne pare rubidija primjenjena je metoda frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja (*frequency resolved optical gating* - FROG). Zato ću najprije opisati osnove te metode, a zatim je primjeniti na analizu međudjelovanja femtosekundnih pulseva s rezonantnim medijem - parama rubidija.

4.1. Metoda frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja

Ubrzani razvoj laserskih izvora ultrakratkih pulseva te njihova sve veća primjena u raznim područjima znanosti, medicine i industrije praćen je potrebom za njihovim preciznim mjerenjem metodama koje su pouzdane, robusne i praktične. Jedna od takvih metoda je i frekventno razlučivo optičko uzorkovanje (FROG). Sama metoda razvijena je početkom 1990-tih [59], u

vrijeme kada su se laserski oscilatori temeljeni na pumpanju Ti-safir kristala snažnim zelenim laserskim pumpama počeli naglo širiti znanstvenom zajednicom zbog svoje široke primjenjivosti i mogućnosti generiranja do tada najkraćih laserskih pulseva, kratkih i do nekoliko femtosekundi (fs). Važnost točnog poznavanja svojstava pulseva nužna je zbog potvrde teorijskih modela njihova nastanka [60]. Osim toga, bitno je razumijeti koji su ograničavajući faktori u stvaranju još kraćih pulseva. U velikom broju eksperimenata važno je znati strukturu pulsa, naročito promjenu frekvencije unutar trajanja pulsa (cvrkut). Istraživanja stvaranja viših harmonika pokazala su da pulsevi identičnih spektara, ali sa različitim spektralnim fazama imaju bitno različitu efikasnost stvaranja viših harmonika [61]. U zadnje su vrijeme razvijene brojne metode za oblikovanje femtosekundnih pulseva po volji: mijenjanjem oblika anvelope električnog polja pulsa i/ili mijenjanjem linearnog cvrkuta pulsa. Na taj se način može pomoću samoukih algoritama na principu povratne veze manipulirati ishodom određene kemijske reakcije [62]. U takvim situacijama bitno je imati što više informacija o promjenama izazvanim u strukturi pulsa, po mogućnosti u realnom vremenu. FROG omogućava dobivanje kompletne informacije o obliku električnog polja pulsa, čak i za najkompleksnije i najkraće pulseve, u različitim područjima valnih duljina. Metoda također omogućava provjeru konzistentnosti procesa mjerenja i pronalaženja uzroka pogrešaka u mjerenjima. Sama primjena metode ne zahtjeva puno sredstava niti veliko predznanje.

Metode karakterizacije laserskih pulseva u prošlosti su se uglavnom bazirale na korištenju autokorelatora za mjerenja u vremenskoj domeni i spektrometra za mjerenja u frekventnoj domeni. Iz tih mjerenja nije moguće dobiti podatke o intenzitetu $I(t)$ ili vremenskoj fazi pulsa $\phi(t)$, dok mjerenja spektra ne mogu dati informaciju o spektralnoj fazi $\varphi(\omega)$. Kao što je već rečeno u odlomku 2.1.4, autokorelacijska karakterizacija pulsa temelji se na pogađanju oblika anvelope pulsa o čemu onda ovisi i rezultat autokorelacijskih mjerenja. Također, autokorelacijsko mjerenje nema ugrađene mehanizme interne provjere konzistentnosti dobivenih rezultata pomoću kojih bi se mogle otkriti sistematske pogreške u mjerenjima. Novorazvijene tehnike za potpunu rekonstrukciju električnog polja pulsa, među kojima je i FROG, funkcioniraju u kombiniranoj vremensko-frekventnoj domeni, a bazirane su na simultanim mjerenjima u obje domene. Tako nastaju tzv. spektrogrami koji se slikovito mogu poistovjetiti s notnim zapisom u muzici gdje oblik note označava njeno vremensko trajanje dok joj položaj na ljestvici određuje

visinu tona (frekvenciju). Spektrogram ima matematički zapis oblika:

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)g(t - \tau)e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (4.1.1)$$

gdje je $g(t - \tau)$ funkcija vremenskog prozora (*gate*) centrirana u trenutku $t = \tau$ čiji se položaj mijenja. Poznavanje spektrograma funkcije $E(t)$ dovoljno je za njezino potpuno određivanje do na apsolutnu fazu (koja u klasičnoj optici ne igra bitnu ulogu). Funkcija vremenskog prozora ne smije biti šira od funkcije koju uzorkuje te je stoga jedina praktična mogućnost korištenje samog pulsa, tj. spektralno razlučivo autokorelacijsko mjerenje. Ako se za nelinearnost u autokorelacijskom mjerenju koristi stvaranje drugog harmonika, FROG signal je oblika:

$$I_{\text{FROG}}^{\text{SHG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)E(t - \tau)e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (4.1.2)$$

Činjenica da se za funkciju vremenskog prozora koristi sam puls komplicira određivanje $E(t)$ jer spektrogramski inverzijski algoritmi zahtijevaju poznavanje funkcije vremenskog prozora, što kod autokorelacije nije zadovoljeno. Stoga se problem mora rješavati po uzoru na probleme dobivanja faze iz dvodimenzionalnih podataka. Najprije se autokorelacijski signal $E(t)E(t - \tau)$ označi sa $E_{\text{sig}}(t, \tau)$. Sada se pretpostavi da je $E_{\text{sig}}(t, \tau)$ Fourier transformat u odnosu na τ od $E_{\text{sig}}(t, \Omega)$. Nađe li se $E_{\text{sig}}(t, \Omega)$ lako će se odrediti $E(t)$ do na multiplikativnu konstantu:

$$\begin{aligned} E_{\text{sig}}(t, 0) &= \int_{-\infty}^{\infty} E(t)E(t - \tau)e^{-i0\tau} d\tau \\ &= E(t) \int_{-\infty}^{\infty} E(t - \tau) d\tau \\ &= E(t) \int_{-\infty}^{\infty} E(\tau') d\tau' \\ &\propto E(t). \end{aligned} \quad (4.1.3)$$

Izraz za FROG signal može se zapisati koristeći $E_{\text{sig}}(t, \Omega)$:

$$I_{\text{FROG}}^{\text{SHG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{sig}}(t, \Omega)e^{-i\omega t - i\Omega\tau} dt d\Omega \right|^2. \quad (4.1.4)$$

Integracijom gornjeg izraza po frekvencijama dobiva se izraz 4.1.2, odnosno, spektrogram pulsa. Izraz 4.1.4 predstavlja kvadrat apsolutne vrijednosti dvodimenzionalnog Fourier transformata od $E_{\text{sig}}(t, \Omega)$ i iz njega nije moguće izvrijediti fazu polja signala bez poznavanja

matematičkog oblika $E_{\text{sig}}(t, \Omega)$, što nije problem ukoliko se zna pomoću koje nelinearnosti je spektrogram izmjeren.

Za razliku od drugih tehnika karakterizacije ultrakratkih pulseva, FROG omogućava neovisnu provjeru dobivenih rezultata pomoću tzv. marginala. To su zapravo integrali snimljenih spektrograma po vremenu ili po frekvencijama koji odgovaraju spektru, odnosno, autokorelaciji pulsa. Spektar i autokorelacija pulsa mogu se lako nezavisno izmjeriti te se usporedbom može zaključiti da li je iterativni FROG algoritam dobro konvergirao. Osim marginala, najbolja mjera uspješnosti FROG algoritma u rekonstrukciji originalnog spektrograma jest pogreška, koja se definira kao korijen iz kvadrata razlike izmjerenog i izračunatog FROG signala:

$$G = \sqrt{\frac{1}{N^2} \sum_{i,j=1}^N \left| I_{\text{FROG}}(\omega_i, \tau_j) - \alpha I_{\text{FROG}}^{(k)}(\omega_i, \tau_j) \right|^2}, \quad (4.1.5)$$

gdje indeks k označava posljednju iteraciju algoritma a α je faktor koji minimizira grešku i potreban je zbog renormalizacije. Tipične vrijednosti pogreške su $< 0,5\%$ na 128×128 matrici za SHG FROG (FROG algoritam je zasnovan na brzom Fourier transformaciji, FFT). Iznos pogreške se skalira s veličinom matrice prema općenitom izrazu $G \propto (\text{TBP}/N)^{1/2}\epsilon$, gdje je TBP umnožak duljine pulsa u vremenskoj domeni i njegove spektralne širine, a ϵ je pogreška u točkama gdje je intenzitet različit od nule. Brza konvergencija iterativnog algoritma sama po sebi je pokazatelj da FROG spektrogram ne sadrži bitnije sistematske pogreške. To je stoga što spektrogram sadrži N^2 točaka koje u sebi sadrže informaciju o $2N$ intenzitetskih i faznih točaka. To znači da je FROG mjerenje predeterminirano: postoji puno više stupnjeva slobode u FROG mjerenju nego li u pulsu koji se mjeri. Samim time je vjerojatnost da dva različita pulsa imaju isti FROG signal jako mala. Jednako je mala i vjerojatnost da će loše FROG mjerenje s velikom sistematskom pogreškom odgovarati stvarnom pulsu. Kod postupka FROG mjerenja najbitnije je zadovoljiti tzv. FSR (*FROG sampling rate*) uvjet, što znači da spektrogram mora sadržavati sve točke koje sadrže informaciju o pulsu a to su u principu sve točke čiji je intenzitet iznad intenziteta šuma. U praksi je taj uvjet zadovoljen ako je intenzitet signala na rubovima spektrograma reda veličine 10^{-4} maksimalnog signala. Taj kriterij stroži je od Nyquistovog kriterija [63] koji se često koristi u obradi signala. Nyquistov kriterij kaže da će funkcija konačnog trajanja u vremenu (ili konačnog spektra) biti propisno uzorkovana ako je najviša frekvencija koja se pojavljuje uzorkovana barem dva puta u jednom periodu. Tada će diskretni uzorci signala sadržavati svu informaciju o signalu bez obzira na činjenicu da će npr. Gaussijan uzorkovan Nyquistovom ratom imati samo jednu točku iznad polovice maksimuma i svega 5

točaka iznad razine od 1% signala. Dakle, spektrogram koji zadovoljava FSR sigurno sadrži sve potrebne informacije za rekonstrukciju originalnog električnog polja pulsa. Već je spomenuto da je FROG algoritam zasnovan na brzom Fourier transformaciji. Kako bi transformacija bila brza potrebno je da broj točaka bude 2^n , gdje je n cijeli broj. To ne znači da izmjereni FROG signal mora imati takav korak u vremenskoj i frekventnoj domeni, već sam program interpolira mjerenje na matricu unaprijed zadane 2^n dimenzije. Unatoč tome, poželjno je da uzorkovanje bude podjednako u obje domene. Izborom veličine matrice određuje se i odnos između koraka u frekventnoj domeni i onoga u vremenskoj domeni. Oni su povezani izrazom:

$$\Delta\nu = \frac{1}{N\Delta t}. \quad (4.1.6)$$

Prilikom manipuliranja sa veličinom FFT matrice korištene za rekonstrukciju pulsa treba imati na umu da FSR uvjet mora uvijek biti zadovoljen. N mora biti takav da za dani Δt sadržava cijeli vremenski razvoj pulsa i da istovremeno za odgovarajući $\Delta\nu$ spektrogram sadrži cijeli spektar pulsa. Ukoliko izmjereni FROG signal ima u jednoj dimenziji manje točaka od N , prazne točke popuniti će se nulama. Ako se, nakon što je algoritam konvergirao, želi povećati rezolucija dobivenog oblika pulsa u bilo kojoj domeni, dovoljno je u drugoj domeni signal nadopuniti nulama do željene preciznosti i zatim izvršiti Fourier transformaciju.

Postoji nekoliko algoritama za rekonstrukciju oblika pulsa te je stoga najbolje koristiti više njih istovremeno. Ipak, jedna je algoritamska tehnika superiorna nad ostalima i najčešće je dovoljna za rekonstrukciju većine pulseva. Radi se o metodi generaliziranih projekcija. Puls $E(t)$ ili $E_{\text{sig}}(t, \tau)$ koji se pokušava rekonstruirati mora zadovoljavati dva fizikalna uvjeta. Prvi je da FROG signal predstavlja jednodimenzionalnu Fourier transformaciju:

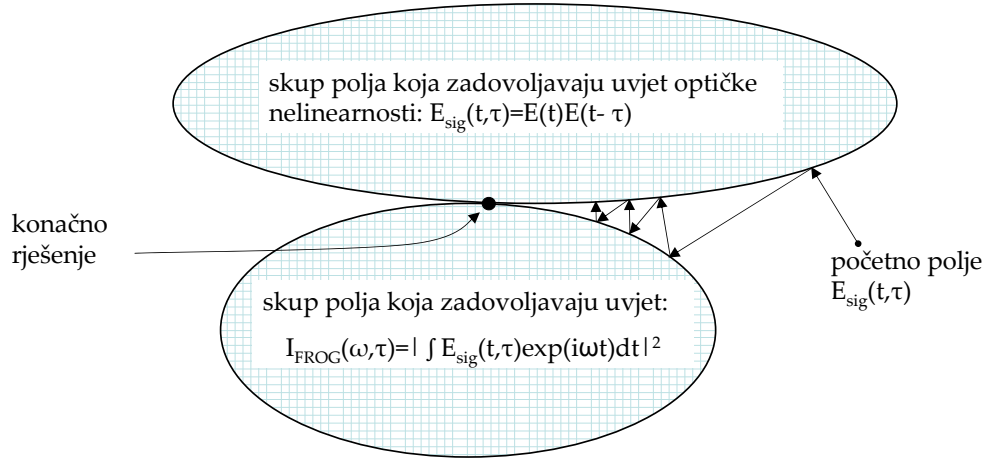
$$I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{sig}}(t, \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (4.1.7)$$

Drugi uvjet slijedi iz tipa korištene nelinearnosti u FROG mjerenju i za SHG slučaj glasi:

$$E_{\text{sig}}(t, \tau) \propto E(t)E(t - \tau). \quad (4.1.8)$$

Cilj je naći polje $E_{\text{sig}}(t, \tau)$ koje će istovremeno zadovoljiti oba uvjeta. Bit tehnike generaliziranih projekcija prikazana je na slici 4.1. Neka cijela slika predstavlja sva moguća polja $E_{\text{sig}}(t, \tau)$. Ona polja koja zadovoljavaju prvi uvjet označena su gornjim eliptičnim područjem, dok su ona polja koja zadovoljavaju drugi uvjet predstavljena donjim eliptičkim područjem. Električno polje pulsa - signala koje zadovoljava oba uvjeta jedinstveno je i određeno je točkom dodira dvaju

područja rješenja. Do rješenja se dolazi radeći „projekcije“. Početno pretpostavljeno rješenje obično ne zadovoljava nijedan uvjet. U prvoj iteraciji radi se projekcija na područje koje zadovoljava jedan od uvjeta i to tako da je udaljenost do njega od početnog rješenja minimalna. Zatim se, u slijedećoj iteraciji, radi projekcija na najbližu točku u drugom području rješenja, i tako dalje dok se ne dođe do konačnog rješenja. Ako su dva skupa uvjeta konveksna (sve linije koje povezuju neke dvije točke u jednom od područja nigdje ne izlaze iz tog područja) konvergencija postupka je osigurana. Nažalost, područja koja zadovoljavaju FROG uvjete nisu konveksna. Stoga moraju definirati „generalizirane projekcije“ pri čemu se konvergencija postupka ne može garantirati. Generalizirana projekcija na skup rješenja koji zadovoljava jednadžbu 4.1.7 zahtijeva da se iznos $E_{sig}^{(k)}(\omega_i, t_i)$ zamijeni s korijenom od $I_{FROG}(\omega_i, t_i)$. Na taj se



Slika 4.1: Geometrijska interpretacija iterativnog algoritma generaliziranih projekcija koja pokazuje da je u slučaju konveksnih skupova uvjeta konvergencija prema ispravnom rješenju osigurana.

način dobiva najmanja promjena signalnog polja koja je u skladu sa mjerenjem. Za projekciju na drugo područje rješenja potrebno je naći novo polje $E_{sig}^{(k+1)}(t_i, \tau_j)$ u $k + 1$ iteraciji koje minimalizira funkcional pomaka:

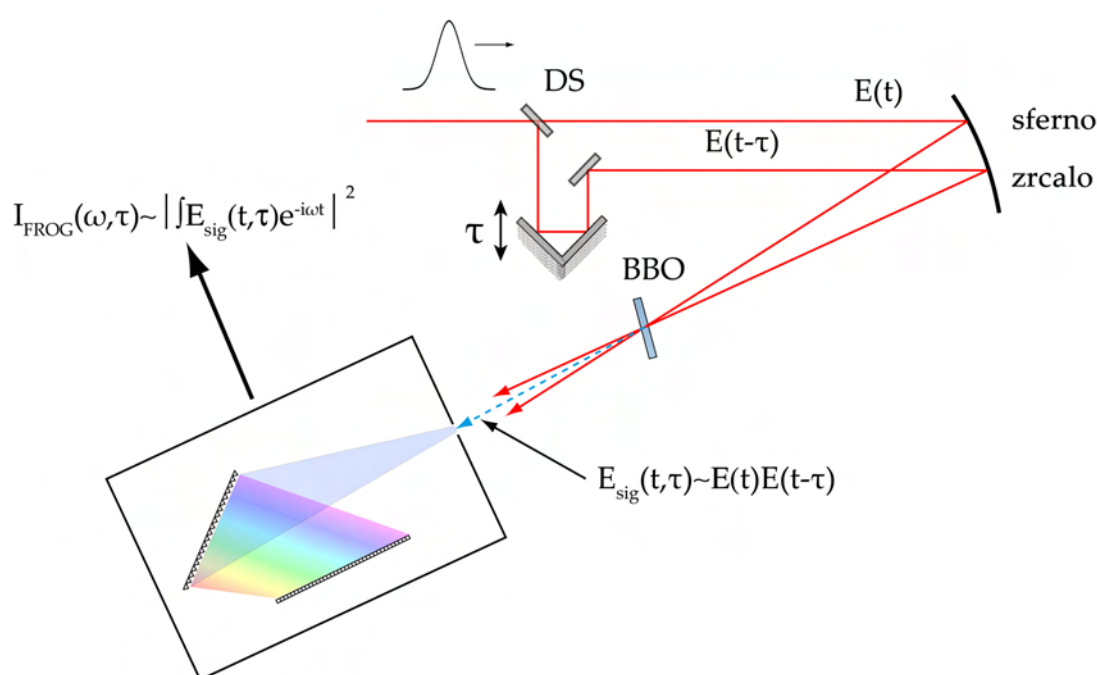
$$Z = \sum_{i,j=1}^N \left| E_{sig}^{(k)}(t_i, \tau_j) - E_{sig}^{(k+1)}(t_i, \tau_j) \right|^2 \quad (4.1.9)$$

i koje zadovoljava izraz 4.1.8. Oba uvjeta ispunjena su istovremeno ako u gornji izraz uvrstimo polje $E_{sig}^{(k+1)}(t_i, \tau_j)$ oblika istovjetnog izrazu 4.1.8, odnosno:

$$Z = \sum_{i,j=1}^N \left| E_{sig}^{(k)}(t_i, \tau_j) - E^{(k+1)}(t_i)E^{(k+1)}(t_i - \tau_j) \right|^2. \quad (4.1.10)$$

Jednom kada se izračuna $E^{(k+1)}(t_i)$, odgovarajuće polje signala može se izračunati iz izraza 4.1.8. Tako dobivamo polje signala u idućoj iteraciji, $E_{\text{sig}}^{(k+1)}(t_i, \tau_j)$. Očito $E_{\text{sig}}^{(k+1)}(t_i, \tau_j)$ zadovoljava uvjet 4.1.8 te istovremeno minimizira Z . Proces zamjene $E_{\text{sig}}^{(k)}(t_i, \tau_j)$ s $E_{\text{sig}}^{(k+1)}(t_i, \tau_j)$ predstavlja generaliziranu projekciju.

Eksperimentalni postav za FROG mjerenje pomoću stvaranja drugog harmonika u nelinearnom mediju prikazan je na slici 4.2. Stvaranje drugog harmonika ima prednost pred drugim nelinearnostima zbog činjenice da se radi o nelinearnom efektu drugoga reda te je time i osjetljivost FROG tehnike u ovoj varijanti najveća, tj. mogu se mjeriti pulsevi najmanje snage.



Slika 4.2: Shema mjerenja FROG tehnikom sa frekventnim udvostručavanjem. *DS* je djeljitelj snopa, pomične linearne sanjke služe za vremensko razdvajanje pulseva (τ) a *BBO* je nelinearni kristal za frekventno udvostručavanje.

Najveća mana ove FROG varijante je dvoznačnost smjera vremena. FROG signal uvijek je simetričan s obzirom na ishodište vremenske osi te puls i njegov vremenski invertiran oblik imaju isti spektrogram. Dvoznačnost se može eliminirati na više načina, no najelegantnije rješenje je da se na put pulsa prije FROG postava stavi tanko staklo koje zbog površinskih refleksija stvara slabi satelitski puls iza glavnog pulsa. Mjerenje FROG signala vrši se na slijedeći način: puls koji se mjeri najprije se razdvoji u dva identična pulsa. Jedan od pulseva prolazi promjenjivi optički put dok je drugome optički put konstantan. Na taj se način stvara ra-

zlika u vremenu dolaska pulseva u nelinearni kristal za frekventno udvostručavanje, npr. KDP (KH_2PO_4 ili KD_2PO_4) ili BBO (*beta* – BaB_2O_4) kristal. Bitno je da je kristal dovoljno tanak da omogućava frekventno udvostručavanje svih frekvencija u spektru pulseva (to naročito vrijedi za najkraće femtosekundne pulseve). Pulsevi se fokusiraju na kristal pomoću leća ili sfernog zrcala. Kako se radi o nekolinearnom stvaranju drugog harmonika fundamentalni pulsevi i drugi harmonici nastali u smjeru njihova prostiranja se lako prostorno i spektralno profiliraju te samo mjerenje nema nikakav pozadinski signal osim signal zbog tamne struje CCD spektrometra. Spektralna rezolucija mjerenja određena je rezolucijom korištenog spektrometra, a vremensku rezoluciju određuje minimalni korak „sanjki“ kojima se ostvaruje promena duljine optičkog puta. Tipične minimalne vrijednosti su $\Delta t = 2$ fs i $\Delta \lambda = 0.1$ nm.

Za analizu spektrograma u ovom radu korišten je komercijalni program Frog3 [64] koji primjenjuje nekoliko različitih algoritama pri analizi spektrograma te omogućava izračunavanje i teorijskih spektrograma na temelju zadanog električnog polja pulsa. Program također rekonstruira FROG spektrogram iz izračunatog polja koji može poslužiti za vizualnu provjeru uspješnosti izvrednjavanja parametara pulsa iz FROG spektrograma. Za provjeru mogu poslužiti i marginali koji su sastavni dio izlaznih rezultata programa.

4.2. Međudjelovanje rubidijevih atoma i femtosekundnih pulseva u optički tankom mediju

Pulsevi površine nula ($0-\pi$ pulsevi) nastaju kao rezultat rezonantnog međudjelovanja između pulsa i medija. $0-\pi$ pulsevi nakon prostiranja medijem, iako rezonantni, ostavljaju naseljenosti atomskih nivoa gotovo nepromijenjenima. Početak pulsa pobuđuje atom u pobuđeno stanje dok ga ostatak pulsa, zbog nagle promjene faze električnog polja pulsa za π , vraća nazad u početno stanje. Opis prostiranja pulseva kroz rezonantni medij najčešće se započinje teoremom o površini pulsa (*pulse-area theorem*), koji se u slučaju slabih polja reducira na McCall-Hahnov teorem [65]. Teorem tvrdi da se površina pulsa A eksponencijalno smanjuje s putem koji puls prolazi u mediju. Površina pulsa se definira preko vremenskog integrala anvelope električnog polja pulsa $E(t, z)$:

$$A \propto \int_{-\infty}^{\infty} E(t, z) dt. \quad (4.2.1)$$

Teorem o površini pulsa može se shvatiti kao generalizacija Beerovog zakona apsorpcije. Površina pulsa ide u nulu nakon duljine propagacije koja je reda veličine inverznog koefici-

jenta apsorpcije α_0 na vrhu rezonancije. U slučaju optički debelog sredstva, $\alpha_0 L \gg 1$ te se površina pulsa naglo smanjuje ka nuli. No to nužno ne znači i apsorpciju energije pulsa jer je energija pulsa definirana integralom kvadrata anvelope polja:

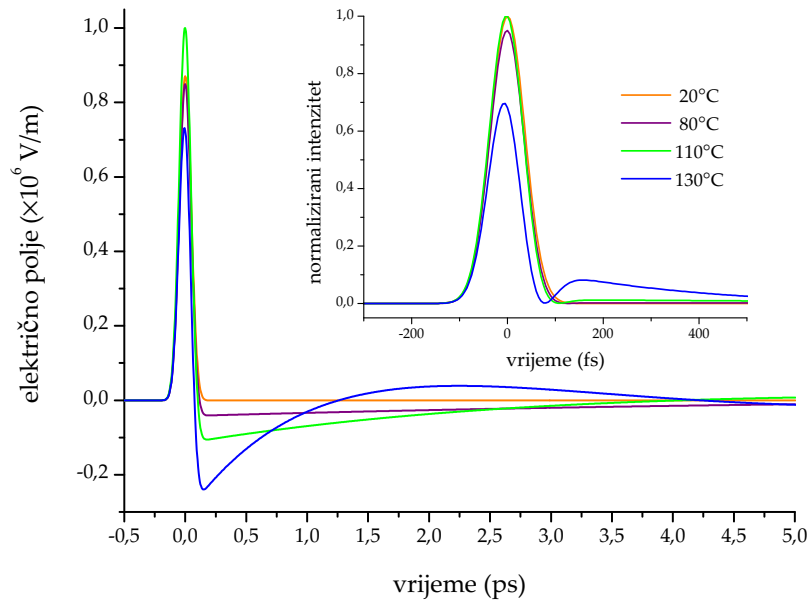
$$\int_{-\infty}^{\infty} E^2(t, z) dt.$$

Beerov zakon vrijediti će samo u aproksimaciji gotovo monokromatskog laserskog polja čiji je spektar uži od Dopplerove širine rezonancije, dakle kada dolazi do apsorpcije većeg dijela spektra pulsa. Ultrakratki pulsevi, zbog svoje velike spektralne širine, prostiranjem kroz rezonantni medij zanemarivo će se apsorbirati te im je energija sačuvana, iako površina pulsa isčezava. Kako bi istovremeno zadovoljio oba uvjeta, puls razvija snažne titraje kompleksne anvelope polja. Ti titraji predviđeni su teorijski [66] i potvrđeni eksperimentalno [67] u slučaju relativno slabih pulseva (perturbativni režim). U slučaju snažnih pulseva, opaženi su neki zanimljivi efekti: raspadanje pulseva [68], kompresija pulseva zbog koherentne apsorpcije [69] te samoinducirana transparentija (SIT) [68].

Većina istraživanja vezanih uz nastajanje i prostiranje $0-\pi$ pulseva, teorijskih [66, 70] i eksperimentalnih [71, 72], rađena je 1970-tih i 1980-tih godina, nakon razvoja snažnih laserskih pulsnih izvora u nanosekundnom i pikosekundnom području. Prostiranje subpikosekundnih rezonantnih laserskih pulseva kroz pare natrija prvi je proučavao Grischkowsky [73]. Razvojem femtosekundnih lasera još veće spektralne širine, dodatno je naglašena razlika između spektra pulsa i širine rezonancije te se govori o prostiranju pulsa medijem u uvjetima oštre linije (*sharp line limit* - SLL) gdje je apsorpcija energije pulsa uistinu zanemariva.

Efekti akumulacije naseljenosti i koherencija, kao posljedica činjenice da su atomska relaksacijska vremena puno dulja od perioda femtosekundnih pulseva, prvi su puta teorijski analizirane u sistemu atoma rubidija s dva nivoa [74]. Kasnije su razmatranja proširena na model atoma s tri nivoa pod utjecajem dvofotonskog pobuđenja [75], gdje su proučavani utjecaji oblika i parametara pulsa na akumulacijske efekte, uključujući i slučaj $0-\pi$ pulseva. Slijedeći ideju predstavljenu u tim radovima, razvijena je metoda modificirane direktne spektroskopije frekventnim češljem (MDFCS), u kojoj se slabim probnim kontinuiranim laserom mjere promjene u rezonantnoj apsorpciji zbog efekta brzinski selektivnog optičkog pumpanja (*velocity selective optical pumping* - VSOP) femtosekundnim nizom (vlakom - *train*) pulseva [76].

Korištenjem već razvijene (teorijski i eksperimentalno) MDFCS metode željelo se proučiti efekt rezonantno oblikovanog $0-\pi$ femtosekundnog pulsa u optički tankim parama rubidija



Slika 4.3: Teorijske simulacije stvaranja $0-\pi$ pulseva u mediju u okviru linearne disperzijske teorije. Prikazan je realni dio anvelope električnog polja pulsa. Usporedno je za iste uvjete prikazan i intenzitet polja.

na akumulacijske efekte na istom atomskom sistemu. $0-\pi$ puls nastaje prostiranjem rezonantnog femtosekundnog pulsa male energije kroz disperzivni medij. Oblikovani puls zatim međudjeluje s atomima para rubidija u drugoj ćeliji te se pomoću MDFCS metode, uz korištenje fazno-osjetljivog pojačala, promatraju akumulacijski efekti. Upravo korištenje fazno-osjetljivog pojačala omogućava veliku osjetljivost metode te se mogu uočiti promjene apsorpcijskog profila s rezolucijom od nekoliko MHz [77]. Mijenjanjem koncentracije atoma rubidija u postupku stvaranja $0-\pi$ pulseva naglo se mijenja i oblik anvelope pulsa. Promjena oblika se zatim odražava i na promjenu akumulacijskih efekata. Eksperimentalni rezultati se mogu dobro usporediti s već razvijenom teorijom baziranoj na poluklasičnom opisu međudjelovanja atoma s 4 nivoa i električnog polja pulsa u formalizmu matrice gustoće stanja [78]. Anvelopa električnog polja modificiranog pulsa dobiva se prostiranjem pulsa kroz nehomogeno proširen linearni disperzivni medij. Rezultat prostiranja prikazan je na slici 4.3 za nekoliko različitih koncentracija atoma rubidija i duljinu ćelije od 5 cm. Početni oblik pulsa dan je Gausovim oblikom amplitude 1×10^6 V/m. Pulsu je dodan i linearni cvrkut od $-3 \times 10^{-5} \text{ rad fs}^{-2}$ kako bi njegova spektralna širina odgovarala mjerenim vrijednostima ($\Delta\nu = (5.4 - 5.8) \times 10^{12} \text{ Hz}$, $\Delta\lambda \approx 10 - 12 \text{ nm}$ (FWHM)). To je opravdano stoga što puls iz oscilatora najčešće nije najkraći mogući, što znači da posjeduje linearni cvrkut. Vremenski integral realnog dijela anvelope elek-

tričnog polja za svaku koncentraciju rezonantnih para rubidija približno je jednak nuli. Točnije, uzimajući da je vrijednost dipolnog momenta $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{1/2}$ prijelaza $2.537 \times 10^{-29} \text{Cm}$ [46] površina pulsa iznosi 0.014π .

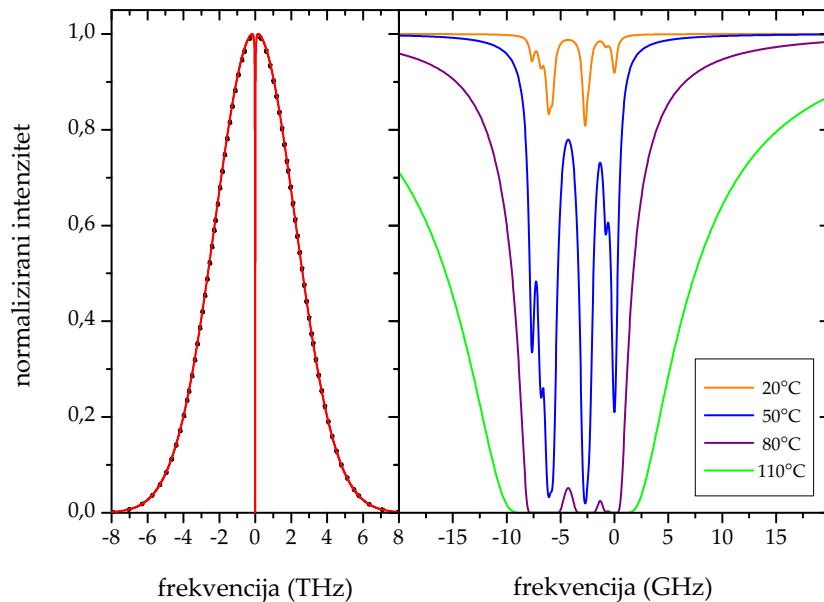
Prostiranje ultrakratkog pulsa male energije kroz rezonantni medij u $+z$ smjeru može se opisati u okviru klasične linearne disperzijske teorije s:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, 0)e^{-ik(\omega)z}, \quad (4.2.2)$$

gdje je $\tilde{E}(\omega, z)$ kompleksni spektar pulsa, a $\tilde{E}(\omega, 0)$ Fourierov transformat početnog vremenskog oblika polja. $k(\omega)$ je valni vektor opisan relacijom 2.1.30. Indeks loma sredstva $n(\omega)$ dan je klasičnom disperzijskom formulom [79]:

$$n(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{2\epsilon_0 m_e} \sum_{j=1}^4 f_j \frac{1}{\omega_j^2 - \omega^2 + i\gamma_j \omega}, \quad (4.2.3)$$

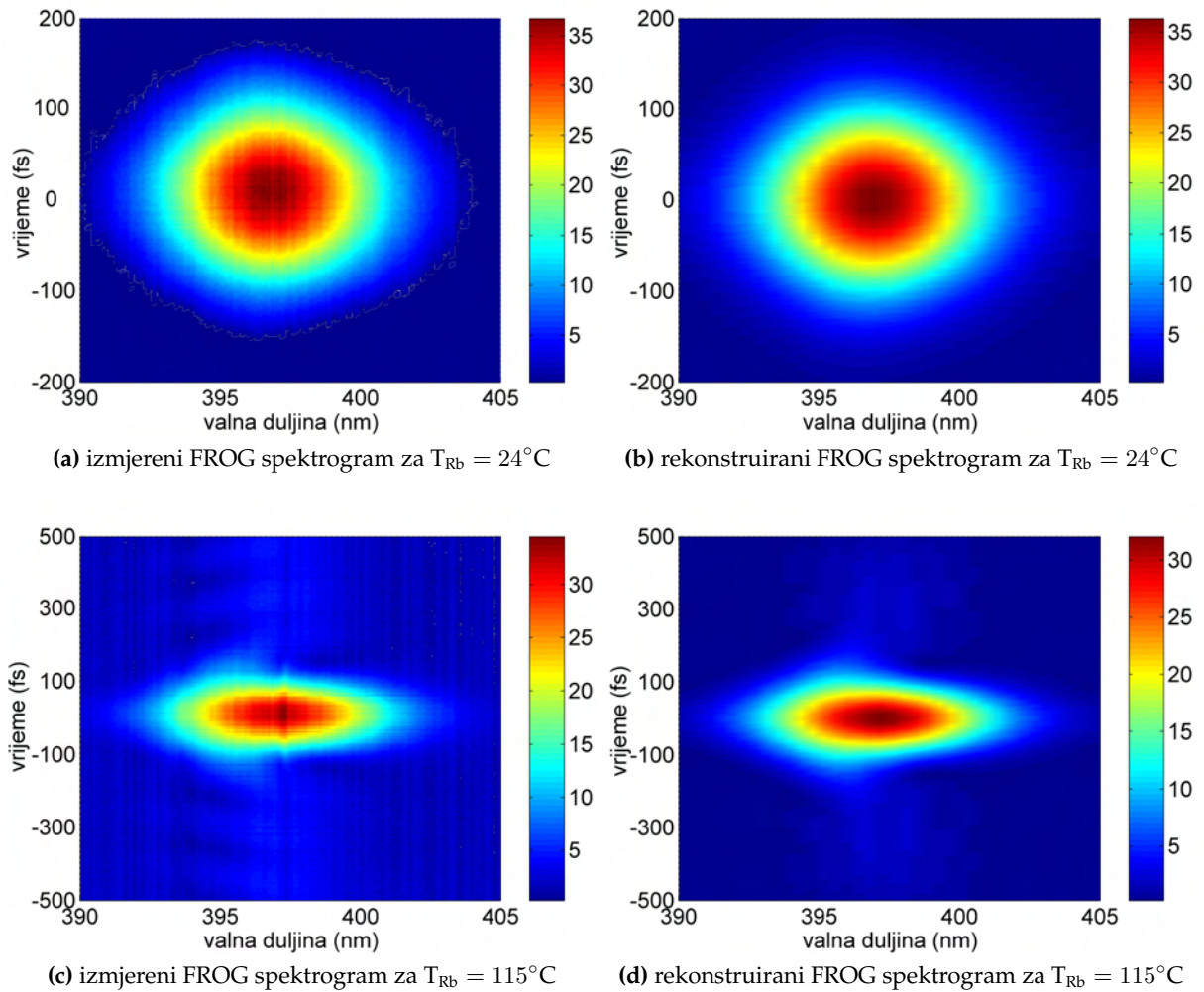
gdje su ω_j frekvencije $5^2S_{1/2}(F_g = 1, 2) \rightarrow 5^2P_{1/2}(F_e = 1, 2)$ prijelaza odgovarajućih širina γ_j i oscilatornih jakosti prijelaza f_j . Zbog činjenice da je rezonantni medij relativno rijedak



Slika 4.4: Teorijski spektri pulsa prije i nakon prolaska kroz rezonantne pare rubidija. Desno je prikazan uvećani centralni dio spektra za nekoliko različitih temperatura rubidijeve ćelije.

($N_{\text{Rb}} < 10^{12} \text{cm}^{-3}$), širina linija se može, u gruboj aproksimaciji, opisati homogenim širenjem, dok se širina apsorpcijske linije može napisati kao suma $\gamma = \gamma_n + \gamma_{\text{sudar}} + \gamma_{\text{Doppler}}$ [80]. Kako je

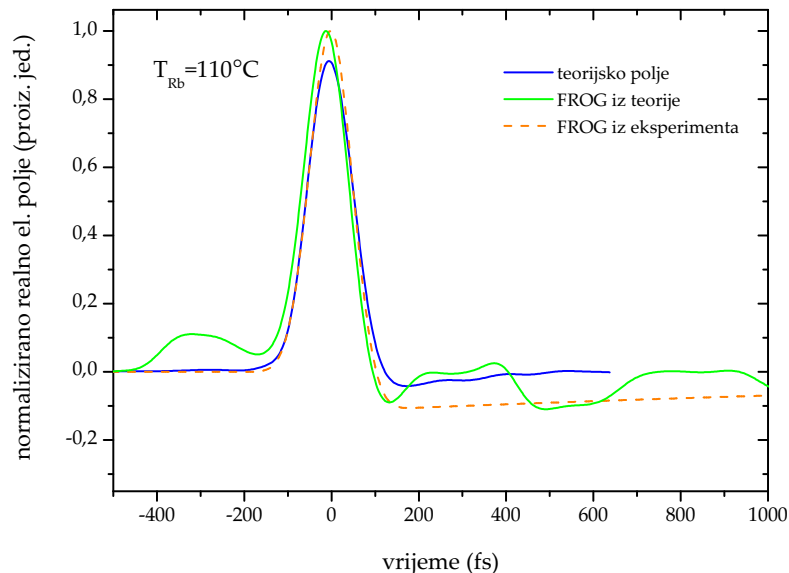
Dopplerova širina na temperaturama do 100°C puno veća od prirodne širine u prvoj aproksimaciji je $\gamma = \gamma_{\text{Doppler}} + \gamma_{\text{sudar}}$. Eksperimentalno je utvrđeno da doprinos širini atomskih linija zbog sudarnog širenja iznosi $1 \times 10^{-7} \text{ Hz cm}^3$ [81]. U računu je korišten velik broj točaka (4×10^6) kako bi za određeni, ne prevelik, korak u vremenskoj skali (5 fs) puls bio definiran na dovoljno širokom vremenskom prozoru. Širina prozora ujedno definira i korak u frekventnoj domeni, za koji je bitno da bude mali u odnosu na širinu apsorpcijskih linija. Konkretno, vremenski prozor od $2 \times 10^{-8} \text{ s}$ daje korak u frekventnoj domeni od 50 MHz. Na slici 4.4 prikazan je spektar pulsa Gaussovog vremenskog oblika, trajanja 85 fs prije i nakon prolaska kroz rezonantne pare rubidija. Pri temperaturi od 80°C dolazi do stapanja pojedinih hiperfinskih apsorpcijskih linija u jednu liniju, dok se na sobnoj temperaturi vide doprinosi gotovo svih od 8 hiperfinskih prijelaza



Slika 4.5: Usporedba izmjerenih spektrograma sa spektrogramima rekonstruiranim pomoću FROG algoritma. Na nižoj temperaturi utjecaj rezonantnog medija na puls je zanemariv i ne dolazi do stvaranja $0-\pi$ pulseva. Na višoj temperaturi dolazi do izraženog međudjelovanja između medija i pulseva.

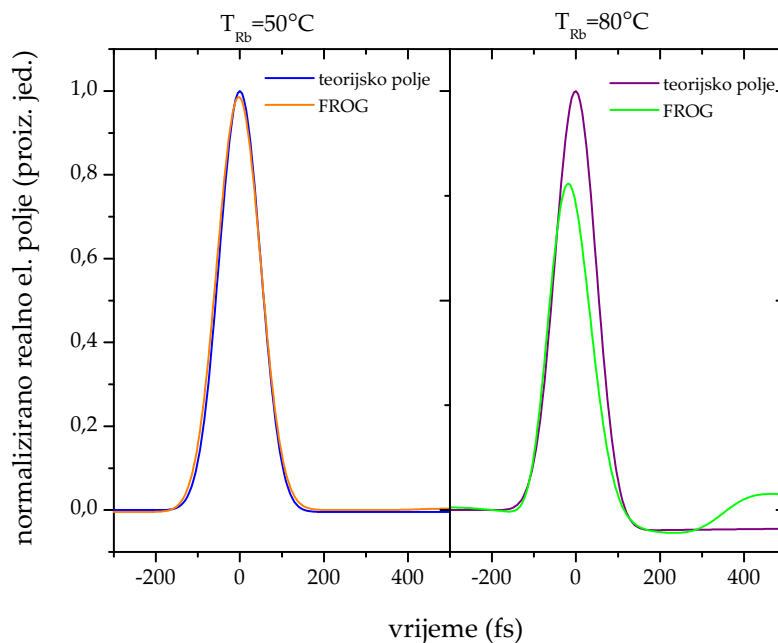
D1 linije za oba rubidijeva izotopa. I dok je MDFCS teorija osjetljiva na promjene u obliku pulsa za koncentracije rubidija koje odgovaraju temperaturama malo većima od sobne ($40 - 50^\circ\text{C}$), FROG mjerenja, prikazana na slici 4.5 zajedno sa spektrogramima rekonstruiranim pomoću FROG algoritma, ne pokazuju bitnije promjene električnog polja pulsa sve do temperatura od oko 80°C . Čak i tada, FROG mjerenje nije u mogućnosti u potpunosti kvantitativno opisati titraje anvelope električnog polja pulsa. Kako bi se bolje istaknula područja slabijeg intenziteta, ovdje se, kao i na svim ostalim prikazanim FROG spektrogramima, prikazuje korijen iz intenziteta spektrograma.

Postoje barem dva izvora pogreški na koje je FROG mjerenje osjetljivo. Prvo, $0-\pi$ puls nije više dobro definiran samo u uskom vremenskom prozoru širine nekoliko stotina fs već se titraji, doduše slaboga intenziteta, protežu u vremenu na nekoliko desetaka, pa i stotina ps, ovisno o koncentraciji rubidijevih atoma. Stoga bi korektno mjerenje FROG tehnikom trebao obuhvatiti barem veći dio tog vremenskog prozora i to s rezolucijom koja će ipak dobro opisati ponašanje pulsa oko vremena $\tau = 0$ gdje je pohranjena većina energije pulsa i gdje su vremenske promjene anvelope pulsa najbrže. Veličina vremenskog prozora određuje i spektralni korak. Kako je apsorpcijska linija puno uža od spektra laserskog pulsa, ponovno je potrebno imati dovoljno



Slika 4.6: Usporedba realnog dijela anvelope električnog polja pulsa izračunatog pomoću linearne propagacijske teorije s rezultatima FROG algoritma za teorijski izračunat i eksperimentalno mjereni spektrogram. Za uvrštavanje u FROG algoritam korišteno je 1024 točaka iz teorijskog polja pulsa dok je eksperimentalno određivanje polja pulsa rađeno na matrici dimenzije 512×512 .

širok vremenski prozor. Da bi se u praksi provjerio utjecaj uzorkovanja u FROG mjerenju na izračunati oblik polja pulsa, simulirano električno polje dobiveno korištenjem linearne propagacijske teorije uvršteno je u FROG algoritam kako bi se izračunao spektrogram i iz njega dobila informacija o električnom polju pulsa. Izračunati spektrogram se zatim može vizualno usporediti s odgovarajućim eksperimentalnim FROG spektrogramom. Razlika između teorijskog realnog dijela kompleksne anvelope električnog polja pulsa i odgovarajućeg električnog polja dobivenog iz FROG mjerenja prikazana je na slici 4.6, zajedno s električnim poljem koje nam daje FROG algoritam kada uvrstimo teorijsko električno polje pulsa. Kako FROG algoritam raspoređuje ulazne podatke na matricu dimenzije do 2048×2048 točaka teorijsko polje nije moguće u cijelosti uvrstiti u algoritam već se izreže odgovarajući dio simetrično oko ishodišta vremenske skale. To je i razlog neslaganja polja dobivenog primjenom FROG tehnike na teorijsko polje pulsa s tim istim poljem, jasno uočljivo na slici 4.6. U principu je moguće ulazne podatke i interpolirati čime bi se zahvatio cijeli izračunati vremenski prozor, ali se time drastično povećava vremenski korak što daje potpuno beskorisne rezultate. Na nižim koncentracijama atoma rubidija titraji električnog polja pulsa su sve manje izraženi te je realno očekivati da će se i efekt izrezivanja određenog vremenskog prozora konstantne dimenzije smanjivati tj. da će

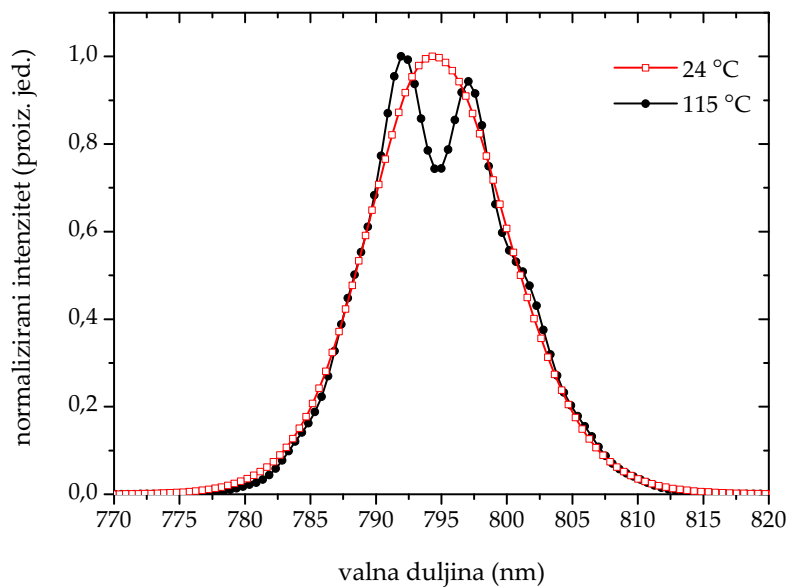


Slika 4.7: Razlike u realnom dijelu anvelope električnog polja pulsa dobivene iz FROG mjerenja i pomoću linearne disperzijske teorije za dvije temperature para rubidija.

se dva polja sve bolje slagati. Slika 4.7 to i potvrđuje. Na temperaturi od 50°C razlike postaju

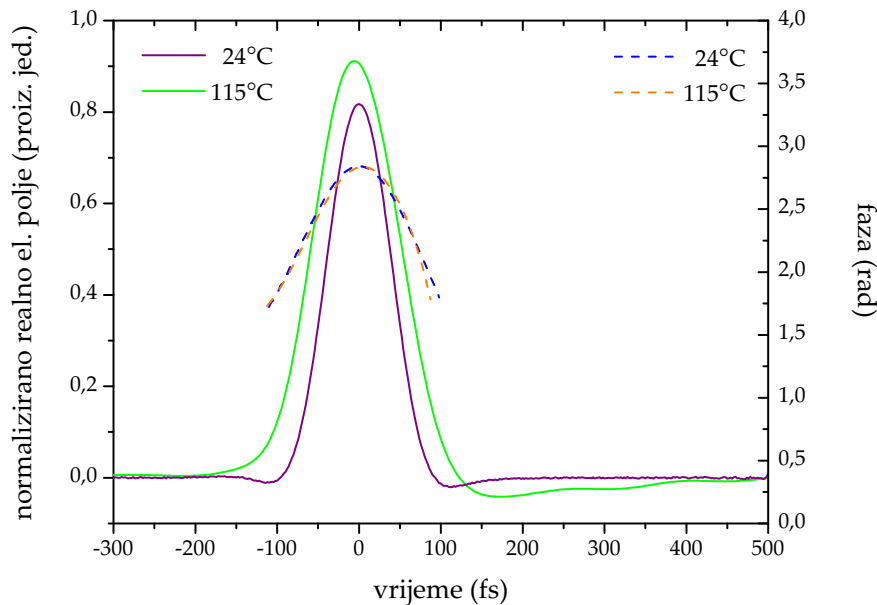
zanemarive zbog činjenice da i medij sve manje utječe na puls.

Usporedba izmjerenih i rekonstruiranih FROG spektrograma za sobnu temperaturu i najvišu postignutu temperaturu para rubidija od 115°C prikazane je na slici 4.5. Vizualnom usporedbom spektrograma nije teško doći do zaključka da su sličnosti spektrograma puno veće na nižoj temperaturi, u uvjetima u kojima su efekti prostiranja pulsa rezonantnim medijem zanemarivi. Na višoj temperaturi para rubidija intenzitet pulsa na rubovima promatranog vremenskog prozora više nije zanemariv i zbog toga je slaganje izmjerenog i rekonstruiranog spektrograma lošije (pogreška FROG algoritma je veća). Na slici 4.8 prikazan je spektar pulsa dobiven iz obrade FROG mjerenja. Iako spektar kvalitativno ne odgovara onome prikazanom na slici 4.4 razlog tome nije premali broj točaka već preuzak vremenski prozor u kojem su mjerenja izvršena. Spektrogram pri višoj temperaturi para rubidija uglavnom zadovoljava FSR uvjet, no očito bi za bolje rezultate bilo nužno povećati vremenski prozor, uz zadržavanje koraka u vremenskoj domeni unutar granica $\Delta t = 5 - 30$ fs. FROG algoritam postaje računski iznimno zahtjevan na matricama dimenzija većih od 2048×2048 koje bi, čini se, bile nužne za korektno izvrednjavanje parametara $0-\pi$ pulseva pomoću FROG tehnike. Promjena dimenzije N matrice sa 2^n na 2^{n+1} , gdje je n cijeli broj, usporava FROG algoritam za faktor $4(1 + n^{-1})$. Na primjer, promjenom dimenzije matrice sa 512×512 na 2048×2048 vrijeme računanja se poveća



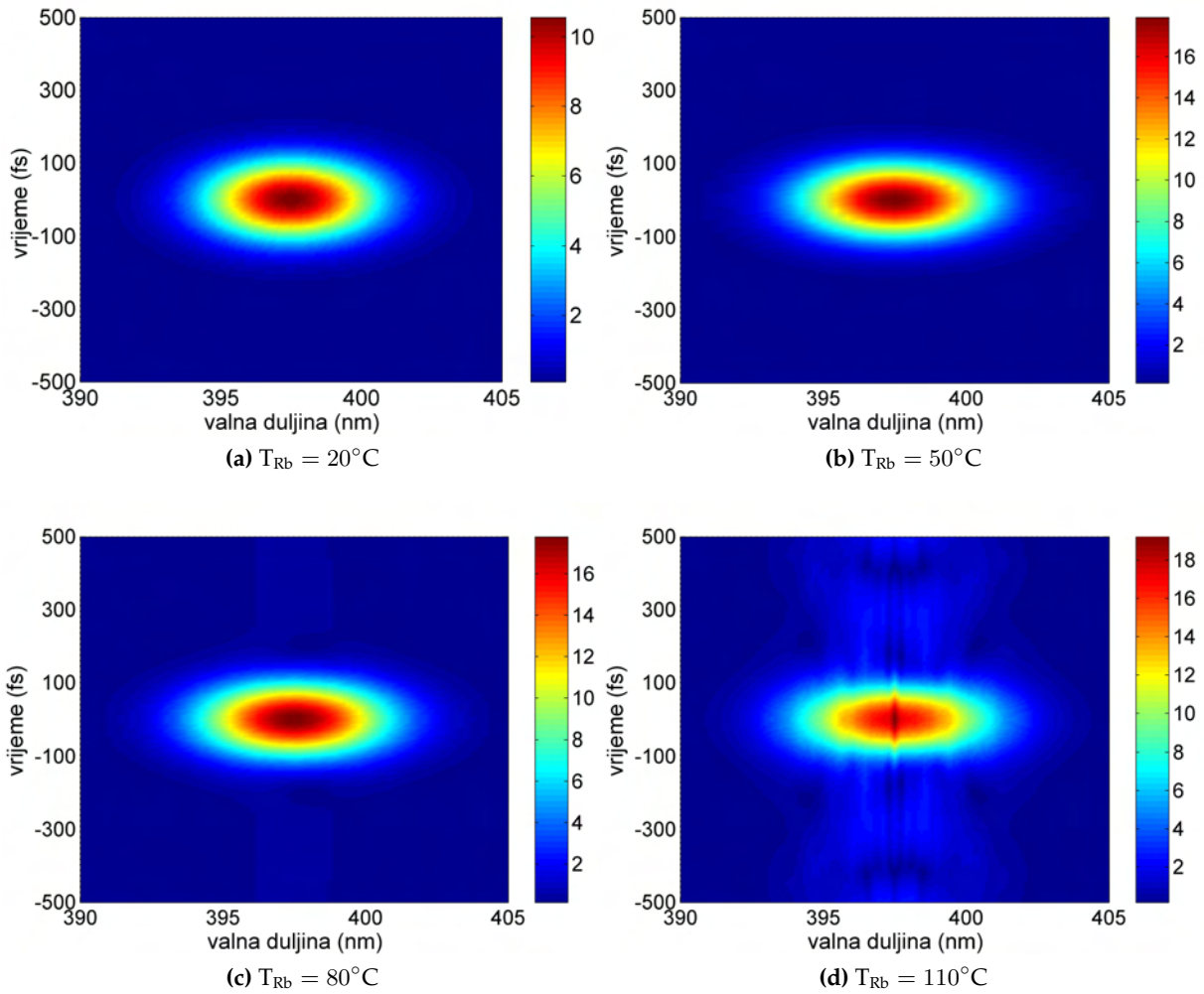
Slika 4.8: Rekonstruirani spektri pulsa iz eksperimentalnih FROG spektrograma za dvije temperature para rubidija. Apsorpcija spektra pulsa je puno veća (šira) od stvarne i nije ograničena rezolucijom FROG algoritma.

za oko 20 puta. Može se, dakle, zaključiti da u ovom primjeru prednost u karakterizaciji pulseva ide na stranu MDFCS tehnike koja puno točnije opisuje male promjene pulseva nakon međudjelovanja s rezonantnim medijem niske koncentracije. Razlika između realnog dijela anvelope električnog polja dobivenog rekonstrukcijom iz FROG spektrograma prikazana na slici 4.9 jasno upućuje na pojavu titraja na većim koncentracijama para rubidija, kojih na sobnoj temperaturi nema. Ti titraji eksperimentalna su potvrda stvaranja $0-\pi$ pulseva prolaskom kroz rezonantni medij, iako je oblik polja prilično drugačiji od očekivanog. Iz izmjerene faze pulsa može se zaključiti da puls koji izlazi iz laserskog oscilatora ima određeni linearni cvrkut. U protivnom bi vremenska ovisnost faze pulsa bila opisana pravcem (pogledati sliku 2.2).



Slika 4.9: Rekonstruirana anvelope električnog polja pulsa iz eksperimentalnih FROG spektrograma za dvije temperature para rubidija. Crkane linije odnose se na fazu pulsa u području gdje je puls dobro definiran. Oblik faze pulsa upućuje na postojanje linearnog cvrkuta.

Zanimljivo je, za kraj, još usporediti izgled izmjerenih i rekonstruiranih FROG spektrograma sa spektrogramima rekonstruiranim pomoću teorijskih polja izračunatih primjenom linearne propagacijske teorije. Na slici 4.5 prikazani su izmjereni spektrogrami zajedno s njihovim rekonstrukcijama pomoću FROG algoritma, dok se na slici 4.10 nalaze spektrogrami dobiveni iz teorijskih simulacija. I ovdje je slaganje spektrograma znatno moduliranih pulseva loše zbog nedovoljne širine promatranog vremenskog prozora. Dakle, neslaganje eksperimentalnih rezultata sa teorijskim predviđanjima nije uzrokovano malom spektralnom rezolucijom



Slika 4.10: Izgled FROG spektrograma rekonstruiranih korištenjem teorijskog $0-\pi$ pulsa u okviru linearne propagacijske teorije. Iako je vremenska ovisnost teorijskog električnog polja pulsa izračunata u vremenskom prozoru od 20 ns, za rekonstrukciju su korištene samo vrijednosti polja u vremenskom prozoru koji odgovara eksperimentalnim rezultatima (1 ps).

FROG mjerenja. Ograničavajući faktor FROG mjerenja kompleksnih pulseva (u koje spadaju i $0-\pi$ pulsevi) je korištenje FFT metode zbog koje rezolucija u frekventnoj domeni i širina vremenskog prozora u vremenskoj domeni nisu nezavisne veličine. Na višim temperaturama para rubidija vremenski prozor postaje toliko širok, da bi održavanje konstantne spektralne rezolucije zahtijevalo uzorkovanje na vrlo velikom broju točaka. U tom slučaju FROG algoritam postaje računski prezahtjevan te je primjena metode za karakterizaciju kompleksnih pulseva ovog tipa nepraktična.

Ukratko, tehnika frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja (FROG) primjenjena je u karakterizaciji $0-\pi$ pulseva stvorenih prolaskom femtosekundnog pulsa kroz rezonantne pare rubidija. U frekventnoj domeni se puls, zbog apsorpcije, mijenja u području puno užem od

širine spektra pulsa dok je vremensko trajanje pulsa, zbog titraja koji se protežu na vremenskim skalama puno većima od trajanja ulaznog pulsa teško definirati. Usporedbom s teorijskim rezultatima u aproksimaciji linearne propagacijske teorije definirana su ograničenja FROG tehnike za karakterizaciju ultrakratkih pulseva. Ipak, ova relativno jednostavna tehnika može biti korisna za kvalitativnu i preliminarnu analizu modulacije femtosekundnih pulseva prolaskom kroz rezonantne optički tanke atomske pare.

4.3. Konusna emisija u optički debelim parama rubidija

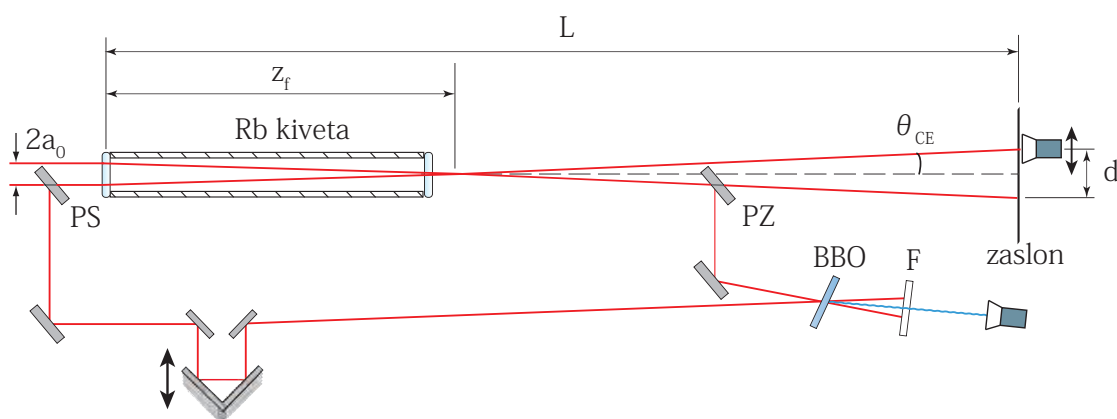
Konusna emisija nelinearni je optički efekt koji se u gustim parama metala proučava već nekoliko desetljeća. Do konusne emisije najčešće dolazi kada je spektar lasera ugođen u plavo krilo (manje relativne valne duljine) rezonantnog prijelaza. Manifestira se kao jedan ili više difuznih svjetlosnih prstenova koji okružuju centralni laserski snop. Spektar konusne emisije je najčešće pomaknut u crveno u odnosu na rezonantnu valnu duljinu. Iako su uglavnom za opažanja korišteni pulsni laserski izvori [67, 82, 83, 84, 85, 86] čiji je intenzitet obično veći od intenziteta kontinuiranih laserskih izvora, konusna emisija je opažena i s kontinuiranim laserima [87]. Ponuđeno je nekoliko modela kojima se pokušava objasniti efekt konusne emisije. Jedan od modela opisuje stvaranje konusne emisije kroz četverovalno miješanje (*four-wave mixing*) u mediju. Taj model dobro opisuje konusnu emisiju u tekućinama ili staklima, tj. u onim medijima gdje je spektar lasera daleko od rezonancija [88]. Spektralne komponente pomaknute u plavo i u crveno pojavljuju se na kutevima konusne emisije koji su u skladu s uvjetima faznog usklađivanja četverovalnog miješanja. No, kada se puls nađe u blizini neke rezonancije u mediju situacija postaje puno kompliciranija. Eksperiment Hartera i Boyda [82, 83] pokazao je da u takvoj situaciji u konusnoj emisiji nedostaje plavo pomaknuta spektralna komponenta. Autori su ustvrdili da, istovremeno četverovalnim miješanjem, dolazi do efekta samofokusiranja i stvaranja stabilnih filamenata pri čemu plavo pomaknuta spektralna komponenta ostaje zarobljena unutar filamena zbog totalne unutarnje refleksije. No, pokazalo se da ovaj opis nije dostatan da pokrije sve opažene efekte konusne emisije te su predloženi brojni drugi modeli.

Prva mjerenja konusne emisije na Institutu za fiziku rađena su u gustim cezijevim parama [89]. Pokazano je da konusna emisija prolaskom nerezonantnog femtosekundnog pulsa nastaje zbog prostorne samomodulacije faze zbog induciranog nelinearnog indeksa loma u području izražene molekularne apsorpcije. Teza je dodatno potkrijepljena direktnom korelacijom ovis-

nosti kuta konusne emisije o koncentraciji dimera.

U opisu konusne emisije na upadnoj valnoj duljini koristi se efekt samofokusiranja i samodefokusiranja [67, 90] temeljen na optičkom Kerrovom efektu (vidjeti 2.2.8). Indeks loma drugoga reda, n_2 , proporcionalan je s nelinearnom susceptibilnosti $\chi^{(3)}$. U granici adijabatske slijednosti (*adiabatic following limit*) [14, 67] nelinearna susceptibilnost $\chi^{(3)}$ obrnuto je proporcionalna s Δ^3 , gdje je Δ odmak frekvencije lasera od rezonantne frekvencije. Zbog ovakve ovisnosti susceptibilnosti o odmaku lasera, medij će na prostiranje pulsa drugačije utjecati kada je centralna valna duljina pulsa veća, odnosno, manja od rezonantne valne duljine. Granica adijabatske slijednosti vrijedi ako je trajanje pulsa puno kraće od vremena relaksacija populacija i koherencija te ako je laser dovoljno daleko od rezonancije [14, 67].

Istraživanja konusne emisije nastavljena su u režimu prostiranja pulsa ugođenog u blizinu rezonantnih linija $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2,3/2}$ prijelaza u gustim parama rubidija [91]. Za stvaranje gustih rubidijevih para korištena je safirna kiveta duljine 12 cm, promjera 12 mm. Pomoću specijalno

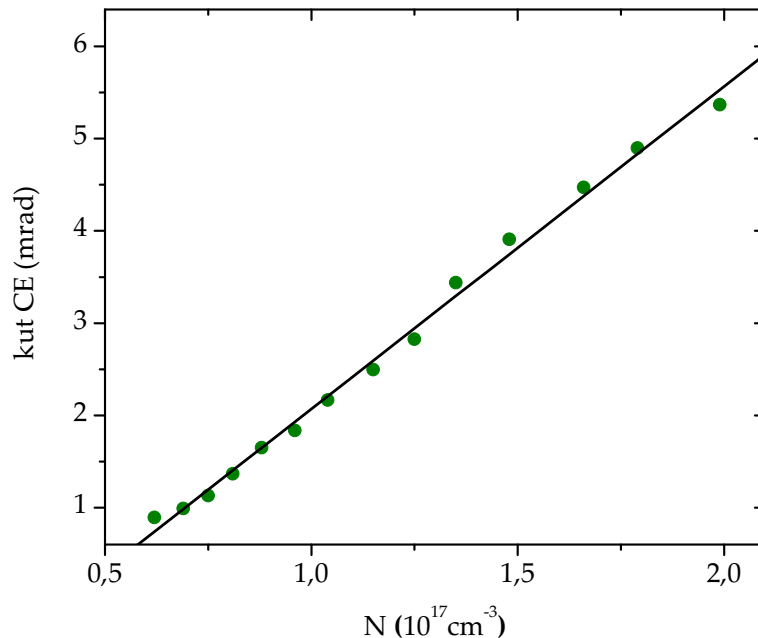


Slika 4.11: Eksperimentalni postav za mjerenje konusne emisije u gustim parama rubidija.

dizajnirane peći kiveta se zagrijavala do maksimalno 420°C što odgovara koncentraciji atoma rubidija od oko $2.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ [47]. Femtosekundni laserski puls generiran je u komercijalnom Ti-safir oscilatoru (*Spectra Physics Tsunami*). Trajanje pulsa je oko 80 fs, repeticija iznosi 80 MHz, a valna duljina lasera je podesiva u području oko 730-880 nm. U eksperimentu je izlazna snaga iznosila tipično 700 mW. Poprečni presjek pulsa ima Gaussov oblik promjera ≈ 2 mm mjereno na $1/e^2$ intenziteta na maksimumu i divergencije snopa manje od 0.5 mrad. Konusna emisija mjerena je na zastoru postavljenom na udaljenosti od 5 m od kivete. Kut konusne emisije mjereno je iz promjera konusne emisije na zastoru pomoću geometrijskih odnosa koji

su prikazani na slici 4.11 koja prikazuje najbitnije elemente mjernog postava. Provjera prostorne raspodjele spektra konusne emisije učinjena je pomoću kompaktnog spektrometra sa svjetlovodnim kablom (*Ocean Optics S2000*). Kabel je postavljen na, kompjuterski upravljani, motorizirani translator, čime je omogućeno pomicanje spektrometra u ravnini poprečnog presjeka laserskog snopa. Vremenski oblik pulsa dobiven je metodom međukorelacije, definirane izrazom 2.1.41, uz korištenje kristala za frekventno udvostručavanje (BBO, debljine $100 \mu\text{m}$). Pomoću pokrovnog stakalca (PS) dio laserskog snopa je skrenut prije ulaska u kivetu te je kasnije preklopljen u BBO kristalu s dijelom snopa koji je prošao kroz kivetu pomoću preklopnog zrcala (PZ), slika 4.11. Optički put kojim prolazi izvorni puls mijenja se pomoću translatora visoke preciznosti.

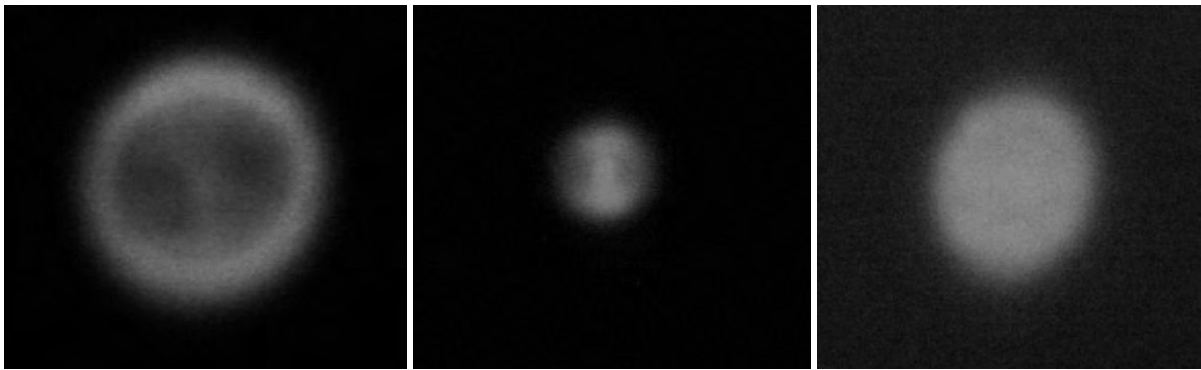
Najniža temperatura para rubidija pri kojoj je uočeno pojavljivanje konusne emisije iznosi 340°C , što odgovara koncentraciji od $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ [47]. Na slici 4.12 prikazana je linearna ovisnost kuta konusne emisije o koncentraciji atoma rubidija pri centralnoj valnoj duljini od 755 nm i snazi od 650 mW . Fotografске snimke konusne emisije za različite centralne valne duljine



Slika 4.12: Linearna ovisnost kuta konusne emisije o koncentraciji atoma rubidija. Centralna valna duljina pulsa iznosi $\lambda_c = 755 \text{ nm}$.

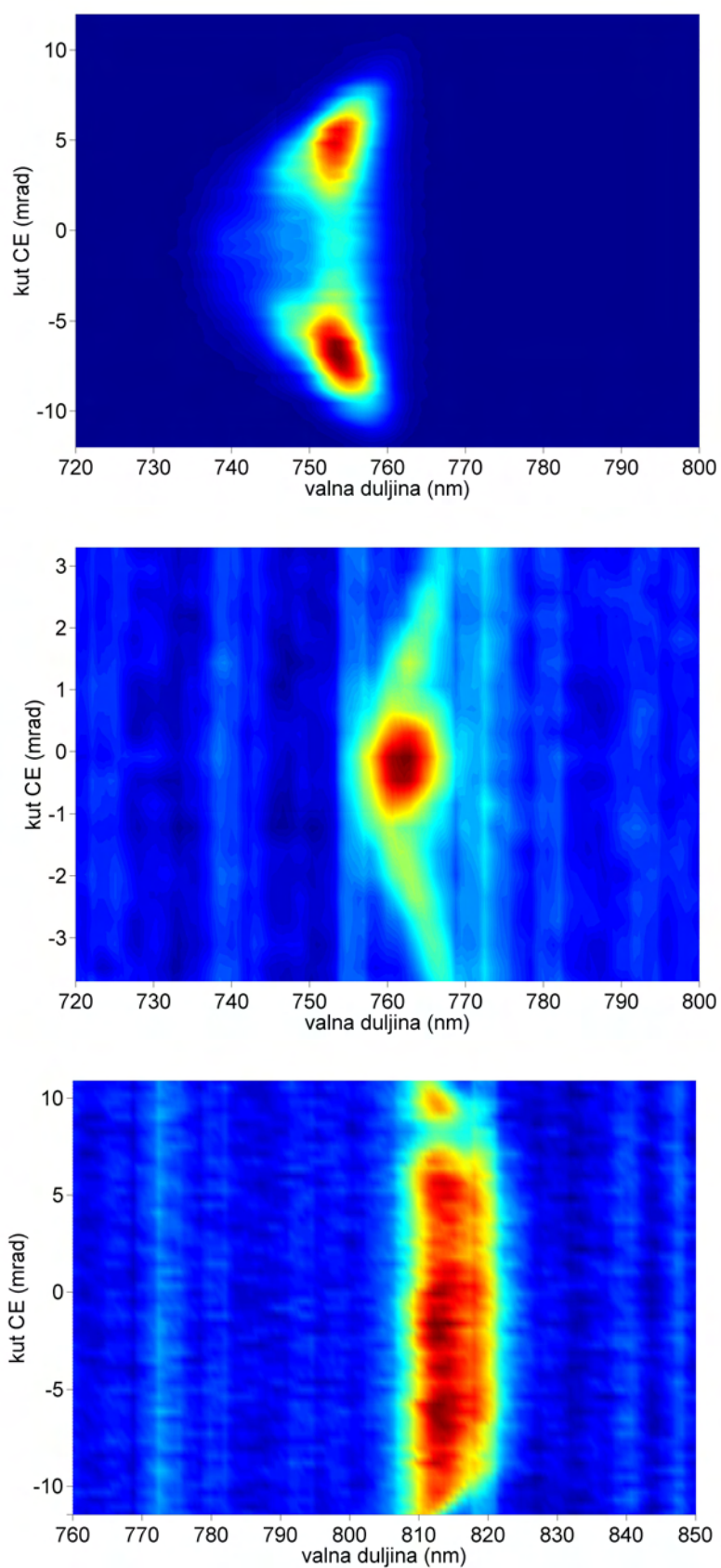
pulsa prikazane su na slici 4.13. Kada je centralna valna duljina lasera postavljena na 760 nm , u plavo krilo rezonantnih linija rubidija (780 i 795 nm), jasno se vidi prsten konusne emisije,

te malo slabije i centralna točka. Za centralnu valnu duljinu od 780nm imamo samo centralnu točku, ne dolazi do samofokusiranja ili samodefokusiranja. U ovom slučaju dolazi i do snažne apsorpcije pulsa u kivetu. U slučaju kada je centralna valna duljina u crvenom krilu rezonantnih linija rubidija puls je defokusiran, ali nema karakterističnog prstena već je disk uniformnog intenziteta. Bitno je napomenuti da su fotografije snimane s različitim ekspozicijama.



Slika 4.13: Fotografije konusne emisije u gustim parama rubidija. Centralne valne duljine ulaznog laserskog pulsa su redom slijeva na desno: 760, 780 i 820 nm.

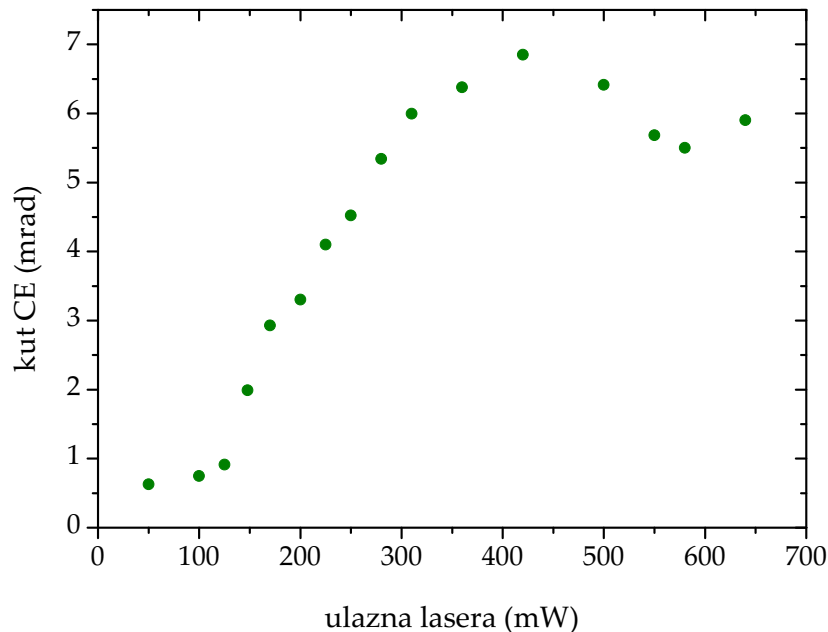
Dodatna informacija može se dobiti iz mjerenja ovisnosti spektra konusne emisije o kutu emisije. Spektri, prikazani na slici 4.14, snimani su na temperaturi para rubidija od 420°C i pri snazi lasera od 650 mW. Maksimalni izmjereni otklon iznosio je 10 mrad za $\lambda_c = 815$ nm i 6 mrad za $\lambda_c = 755$ nm. U slučaju kada je laser postavljen u plavo krilo rezonantnih linija jasno je vidljivo fokusiranje pulsa nakon prolaska kivetom, dok kod mjerenja u crvenom krilu rezonantnih linija fokusiranje nije primjećeno. To je u skladu s prijašnjim rezultatima prostiranja 10 ns pulseva kroz rubidijeve pare [67, 90]. Kut konusne emisije određen je iz maksimuma spektralnog intenziteta. S obzirom na snimljene spektre, može se pretpostaviti da emisija odgovara ulaznom spektru lasera, tj. da se ne stvaraju nove frekvencije u pulsu. U većini prijašnjih eksperimenata konusna emisija je redovito popraćena i pojavom centralne točke značajnog intenziteta. Na $\lambda_c = 755$ nm centralne točke zapravo nema. Ona se pojavljuje tek kada se centralna valna duljina lasera više približi rezonantnim linijama, za $\lambda_c \geq 760$ nm. Pri $\lambda_c \geq 778$ nm najveći intenzitet emitiranog zračenja u centralnoj točki nalazi se na 762 nm, što odgovara valnoj duljini $5D_{3/2} \rightarrow 5P_{1/2}$ prijelaza u rubidiju. U tim uvjetima nema konusne emisije. Ovakvo ponašanje se može objasniti dvofotonski rezonantno pojačanim četverovalnim miješanjem (*two-photon resonantly enhanced four-wave mixing*), slično kao u eksperimentu sa četverovalnim miješanjem u parama natrija [92]. Zbog dvofotonski dozvoljenog prijelaza $5S_{1/2} \rightarrow 5D_{3/2}$ na



Slika 4.14: Spektralna i kutna raspodjela konusne emisije za slučaj kada je centralna valna duljina pulsa redom: 755, 778 i 815 nm.

778 nm dva upadna fotona frekvencija ω_1 i ω_2 mogu generirati dva izlazna fotona uz uvjet $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4$. Ovaj proces rezonantno je pojačan zbog realnih međustanja $5P_{1/2}$ i $5P_{3/2}$. Izlazni fotoni mogu se grupirati oko prijelaza $5D_{3/2,5/2} \rightarrow 5P_{3/2}$ (776 nm), $5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}$ (780 nm), $5D_{3/2} \rightarrow 5P_{1/2}$ (762 nm) i $5P_{1/2} \rightarrow 5S_{1/2}$ (795 nm). Jedino se grupa na 762 nm nalazi izvan apsorpcijskog profila na temperaturi na kojoj nastaje konusna emisija. Stoga jedino fotoni na toj valnoj duljini izlaze iz medija, dok su ostali, iako doprinose četverovalnom miješanju, apsorbirani u gustim parama rubidija.

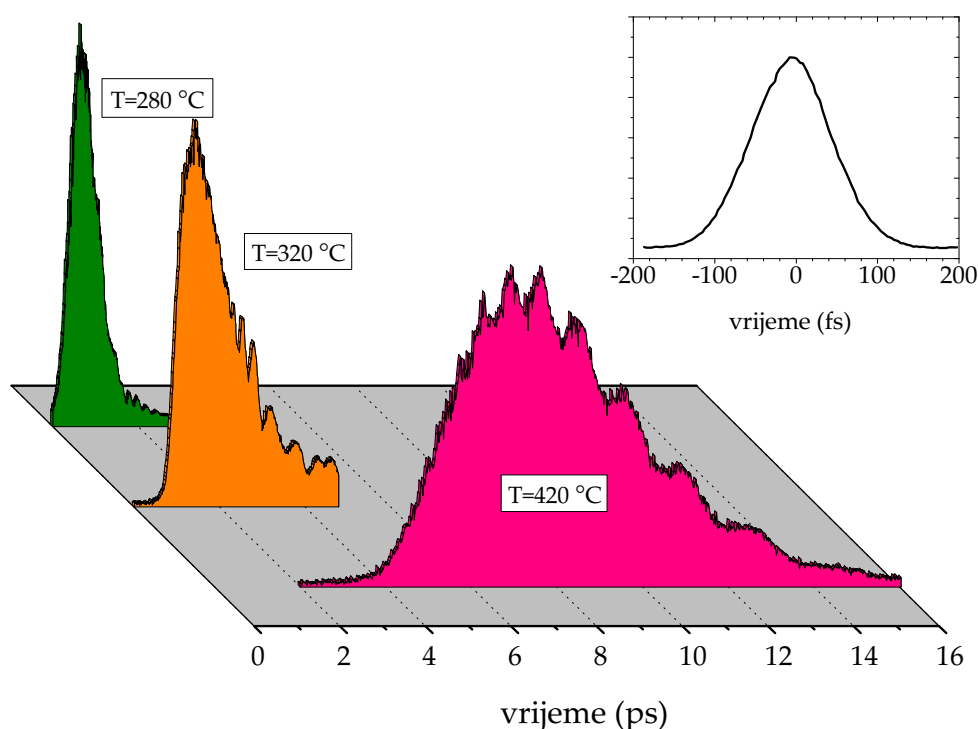
Na slici 4.15 prikazana je ovisnost kuta konusne emisije o ulaznoj snazi lasera, mjerena pri 420°C i $\lambda_c = 755$ nm. Prag za pojavu konusne emisije je na oko 120 mW, te kut konusne emisije dalje linearno raste do oko 350 mW i doseže maksimum na 400 mW. Daljnjim povećanjem snage kut konusne emisije počinje se smanjivati, čemu može doprinijeti povećana ionizacija atoma pri većim snagama lasera.



Slika 4.15: Ovisnost kuta konusne emisije o snazi laserskog pulsa. Donja granica snage lasera za izazivanje konusne emisije je oko 120 mW.

Međukorelacijska mjerenja rađena su kako bi se provjerio vremenski oblik pulsa nakon prostiranja rezonantnim medijem. Povećanjem temperature rubidija u međukorelacijskom signalu pojavljuju se podpulsevi na većim udaljenostima od vremenskog ishodišta (mjestu gdje imamo maksimalno preklapanje pulseva pri sobnoj temperaturi para rubidija). S porastom tempera-

ture ti se podpulsevi šire i međusobno se preklapaju. U uvjetima stvaranja konusne emisije puls ima nazubljenu stukturu. Na slici 4.16 prikazani su rezultati međukorelacijskih mjerenja pri temperaturama para rubidija od 280, 330 i 420°C (koncentracije atoma rubidija od $1.1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ do $2.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ [47]) za puls postavljen u plavo krilo rezonantnih linija ($\lambda_c = 755 \text{ nm}$) i pri snazi lasera od 650 mW. Na najvišoj koncentraciji međukorelacijska mjerenja ne ovise bitno o valnoj duljini pulsa. Kao u slučaju kada je $\lambda_c = 755 \text{ nm}$, i za $\lambda_c = 815 \text{ nm}$ maksimum intenziteta pulsa kasni u odnosu na puls koji nije prošao kivetom za oko 7 ps, a širina deformiranog pulsa iznosi nekoliko ps. Može se zaključiti da je vremenski oblik pulsa, zbog prostiranja kroz rezonantne pare rubidija u uvjetima u kojima nastaje konusna emisija, bitno promijenjen te je trajanje pulsa produljeno za nekoliko desetaka puta. Kao što pokazuju slike



Slika 4.16: Međukorelacijska mjerenja konusne emisije u parama rubidija. Umetak prikazuje međukorelacijsko mjerenje pri niskoj koncentraciji para rubidija (sobna temperatura).

4.14 i 4.13, u slučaju kada je spektar femtosekundnog pulsa postavljen u daleko plavo krilo rezonantnih linija rubidija, $\lambda_c \leq 755 \text{ nm}$, konusna emisija u dalekom polju (*far-field*) ima oblik prstena bez izražene centralne točke. Istovremeno, neposredno iza kivete dolazi do samofokuseranja pulsa. Mjerenja apsorpcije bijele svjetlosti pokazala su da u tom spektralnom području nema značajnije apsorpcije. Također, trajanje pulseva je puno kraće od vremena života popu-

lacija i koherencija te se problem može promatrati u granici adijabatske slijednosti [14]. Rješenje jednadžbi gibanja matrice gustoće stanja u aproksimaciji sistema s dva nivoa daje nelinearnu susceptibilnost trećeg reda oblika:

$$\chi^{(3)} = \frac{2N|\mu|^4}{3\hbar^3\Delta^3}, \quad (4.3.1)$$

gdje je N koncentracija atoma, μ je dipolni moment prijelaza, a $\Delta = \omega - \omega_0$ je odmak od rezonantne frekvencije ω_0 . Zbog inducirane nelinearne polarizacije indeks loma sredstva postaje intenzitetski ovisan; $n = n_0 + n_2I$, gdje je nelinearni indeks loma n_2 povezan s nelinearnom susceptibilnosti trećega reda preko:

$$n_2 = \frac{3\pi\chi^{(3)}}{n_0}. \quad (4.3.2)$$

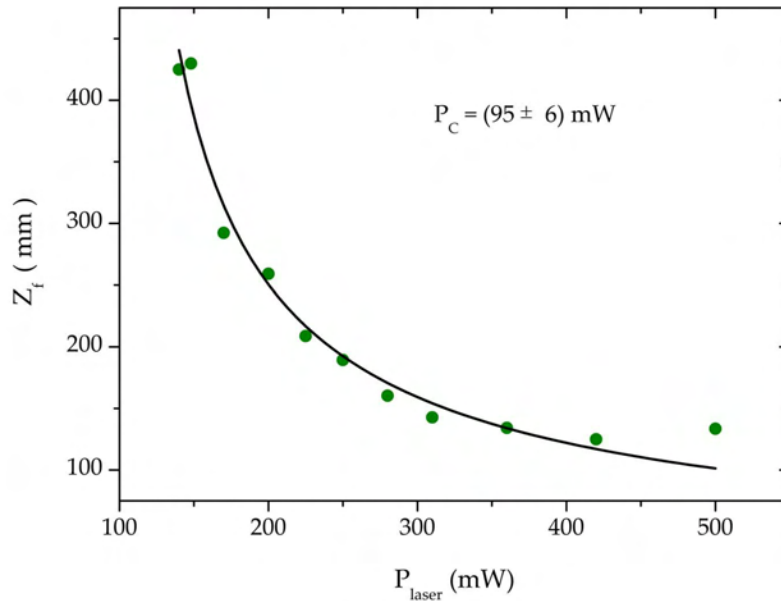
Povezivanjem relacija 4.3.1 i 4.3.2 postaje jasno da će n_2 biti pozitivan za laserski puls pomaknut u plavo krilo rezonancije, a negativan za pomak u crveno krilo rezonancije. Intenzitetski ovisan indeks loma varira i u vremenu i u prostoru. Prostorne varijacije vode na efekt samofokusiranja za pozitivan n_2 i samodefokusiranja za negativan n_2 . Kako su obje pojave eksperimentalno potvrđene, jasno je da je konusna emisija u gustim parama rubidija povezana s optičkim Kerrovim efektom. Žarišna duljina samofokusiranja z_f , definirana na slici 4.11, izračunata je poznavanjem promjera ulaznog laserskog snopa i izmjerenog kuta konusne emisije. Na slici 4.17 prikazane su izmjerene žarišne duljine z_f te prilagodba formule [93]:

$$z_f = \frac{0.367k a_0^2}{\sqrt{\left(\sqrt{\frac{P}{P_C}} - 0.852\right)^2 - 0.0219}} \quad (4.3.3)$$

za žarišnu duljinu samofokusiranja pulsa Gaussovog prostornog profila na izmjerene vrijednosti. Slobodni parametar prilagodbe bila je vrijednost P_C kritične snage samofokusiranja (donji prag snage lasera potrebne za samofokusiranje na zadanim uvjetima). U formuli 4.3.3 k je iznos valnog vektora pulsa, P snaga lasera a a_0 je radijus ulaznog laserskog snopa. Iz prilagodbe izlazi da je kritična snaga za samofokusiranje u danim uvjetima $P_C = (95 \pm 12)$ mW što je dosta blizu izmjerene vrijednosti od 120 mW. Prema jednostavnom modelu samofokusiranja [14], kut zakretanja snopa može se izraziti kao:

$$\Theta_{sf} = \sqrt{\frac{2n_2I}{n_0}} \quad (4.3.4)$$

što korištenjem 4.3.1 i 4.3.2 vodi na ovisnost $\Theta_{CE} \propto \Delta^{-1.5}$. Slika 4.18 prikazuje izmjerenu ovisnost kuta konusne emisije o odmaku λ_c lasera od D2 rezonantne linije rubidija. Centralna valna duljina lasera mijenjana je u području 730-755 nm, pri temperaturi para rubidija od 420°C.



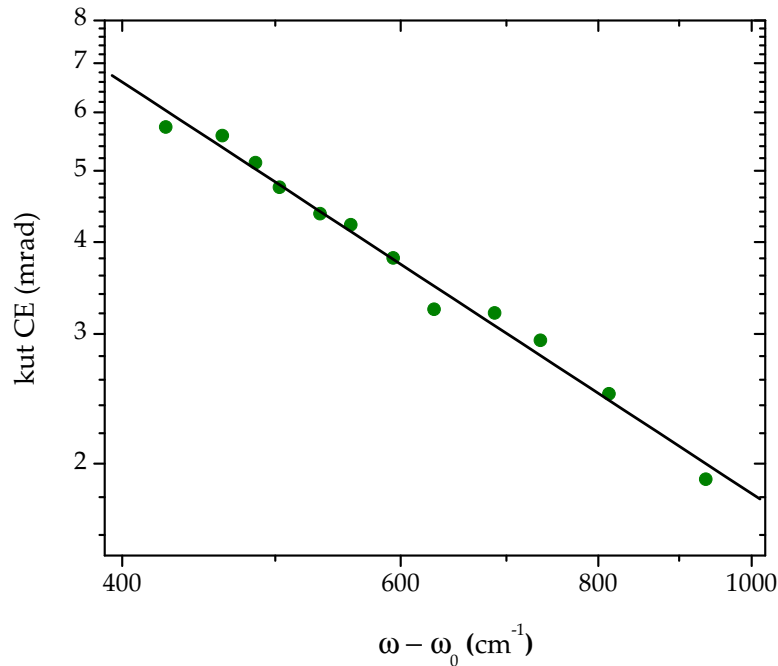
Slika 4.17: Žarišna duljina z_f samofokusirajućeg pulsa kao funkcija snage lasera pri temperaturi para rubidija od 420°C i $\lambda_c = 755\text{ nm}$. Točke predstavljaju eksperimentalne vrijednosti, a krivulja je prilagodba na jednadžbu 4.3.3.

Snaga lasera iznosila je 650 mW . Linearna regresija podataka u dvostrukoj logaritamskoj skali daje nagib pravca od -1.4 ± 0.1 , što se dobro slaže s teorijskim predviđanjem.

Istovremeno sa samofokusiranjem pulsa u prostornoj domeni dolazi do samomodulacije faze (SPM) u vremenskoj domeni [12]. Stoga se može zaključiti da je SPM dominantni mehanizam stvaranja konusne emisije za laserski puls postavljen u daleko plavo krilo rezonancija sredstva. Samomodulaciju faze pulsa u frekventnoj domeni karakterizira stvaranje novih komponenti u spektru pulsa tj. njegovo spektralno širenje. Naznake spektralnog širenja pulsa u našim mjerenjima mogu se uočiti na slici 4.14 za puls postavljen u plavo krilo rezonantnih linija.

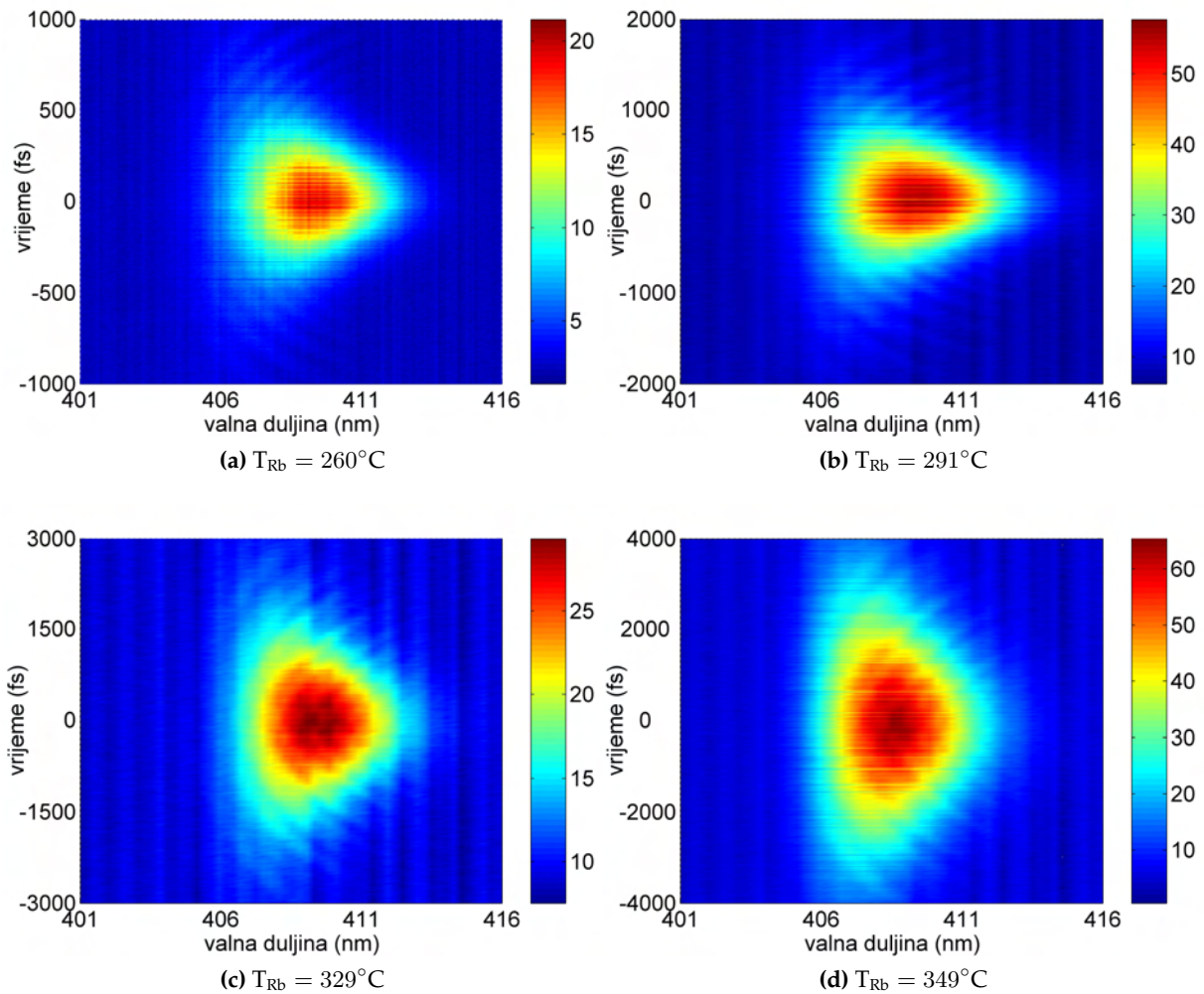
4.3.1. FROG autokorelacijska mjerenja konusne emisije

Međukorelacijska mjerenja, prikazana na slici 4.16, daju samo djelomično informaciju o promjenama koje doživljava femtosekundni puls prostiranjem kroz rezonantni medij pri visokim koncentracijama. Kako bi se pokušalo doći do potpunijih informacija primjenjena je FROG metoda. Postupak kod FROG mjerenja konusne emisije ne razlikuje se bitno od mjerenja obavljenih za karakterizaciju $0-\pi$ pulseva, opisanih u prethodnom odlomku. Najbitnija razlika određena je



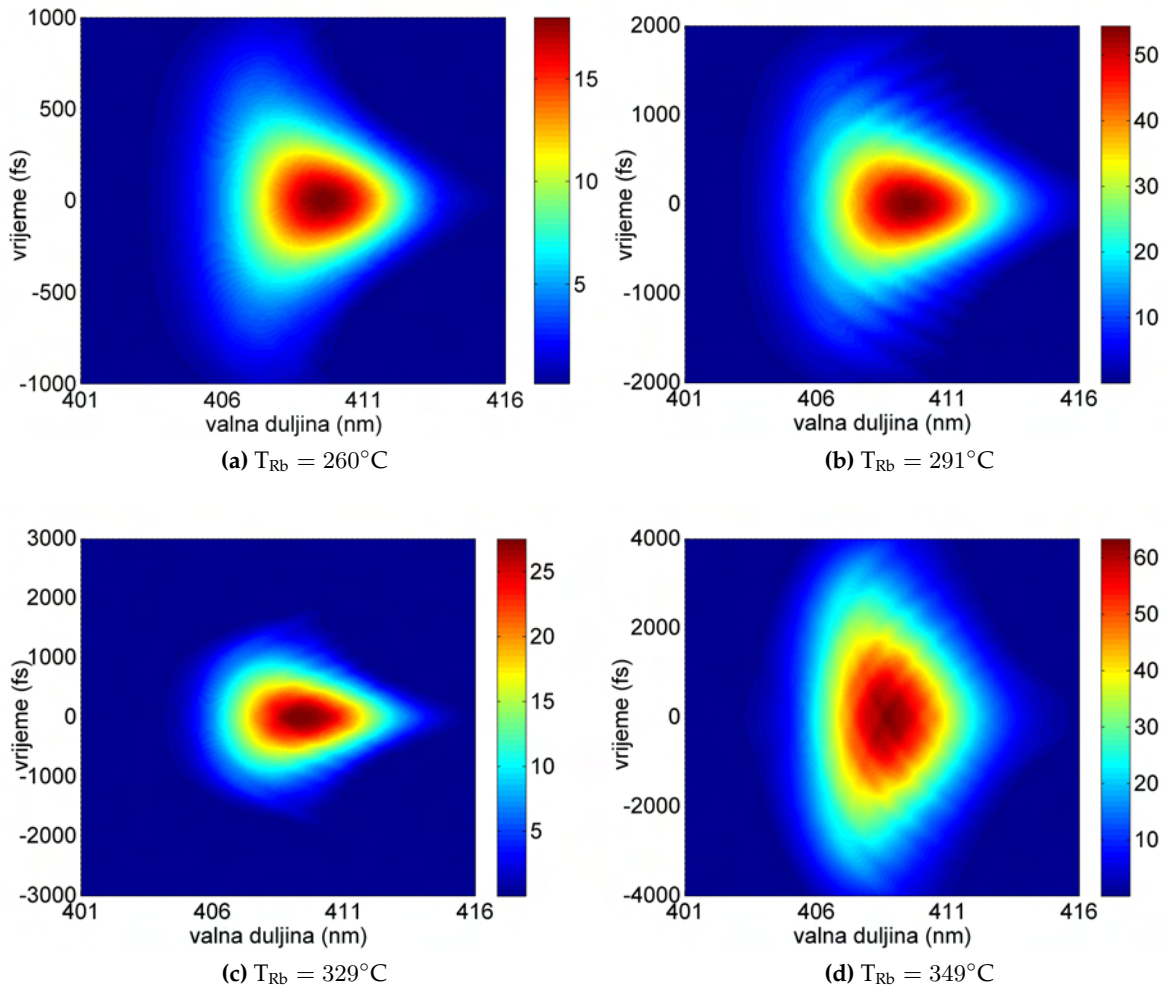
Slika 4.18: Kut konusne emisije kao funkcija pomaka centralne frekvencije lasera od frekvencije D2 rezonantnog prijelaza.

efektom samofokusiranja, odnosno, samodefokusiranja pulsa zbog kojeg je bilo nužno uvesti kolimacijsku konvergentnu leću nakon žarišta kako bi se zadržalo preklapanje i fokusiranje laserskih snopova u nelinearnom kristalu. Naravno, položaj leće morao se mijenjati s povećanjem temperature para rubidija zbog pomicanja žarišta zrake. Nažalost, na temperaturama iznad 350°C snimljeni spektrogrami pokazuju nesimetričnost s obzirom na ishodište vremenske osi zbog sistematske pogreške u mjerenjima povezane s problemima pri kolimaciji divergentnog snopa konusne emisije. Zbog relativno tankog nelinearnog BBO kristala korištenog u mjerenjima, debljine $100 \mu\text{m}$, bilo je moguće izmjeriti FROG spektrograme u uvjetima kada je centralna valna duljina femtosekundnog pulsa postavljena u crveno ($\lambda_c = 820 \text{ nm}$), odnosno plavo krilo rezonantnih linija ($\lambda_c = 760 \text{ nm}$), te za slučaj kada centralna valna duljina pulsa praktički preklapljen s D2 rezonantnom linijom rubidija ($\lambda_c = 778 \text{ nm}$). Slike 4.19 i 4.20 prikazuju snimljene i rekonstruirane spektrograme laserskog pulsa postavljenog u crveno krilo rezonantnih linija rubidija za nekoliko temperatura para rubidija. Bitno je napomenuti da se konusna emisija te samofokusiranje ili samodefokusiranje uočavaju tek kod temperatura viših od oko 330°C . Rekonstruirani spektrogrami pokazuju dosta dobru podudarnost sa snimljenima, što potvrđuje i podatak da je FROG pogreška u svim rekonstrukcijama bila ispod 1%. U rekon-



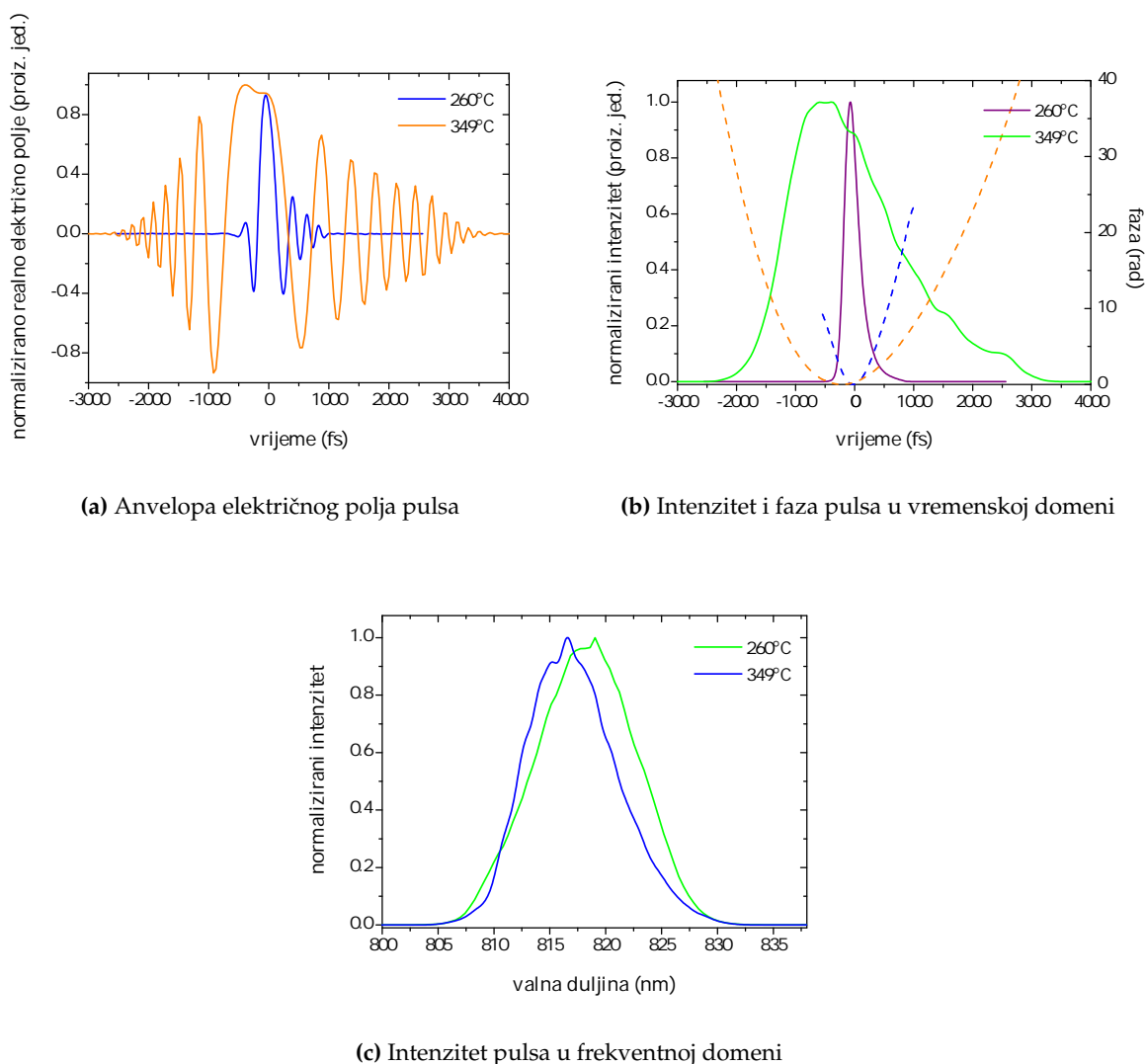
Slika 4.19: FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u crveno krilo rezonantnih linija rubidija ($\lambda_c = 820$ nm). Valja obratiti pažnju na povećanje vremenske skale spektrograma s porastom koncentracije para rubidija. Koncentracija atoma rubidija raste od $6 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$ do $6.3 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ [47].

strukciji spektrograma pomoću FROG algoritma korištene su matrice dimenzija 512×512 , osim za najvišu temperaturu, gdje je korištena matrica dimenzije 1024×1024 . Najvjerojatniji izvor pogreške eventualno je nezadovoljavanje FSR uvjeta, tj. zanemarivanje FROG signala na velikim vremenskim pomacima zbog kojega FROG algoritam ne može u potpunosti konvergirati prema točnom rješenju. Ipak, može se zaključiti da su rezultati dobiveni rekonstrukcijom električnog polja pulsa koji stvara konusnu emisiju, prikazani na slici 4.21 vjerodostojni. Rezultati govore o drastičnom širenju pulsa u vremenskoj domeni ($\Delta\tau = 280$ fs na 260°C , dok je na 349°C $\Delta\tau = 2080$ fs) uz zanemarive promjene spektra pulsa. Kompleksnost pulsa, mjerena umnoškom širine intenziteta električnog polja pulsa u vremenskoj i spektralnoj domeni (TBP), raste s povećanjem temperature para rubidija od 1.3 do 7.9 (FWHM).



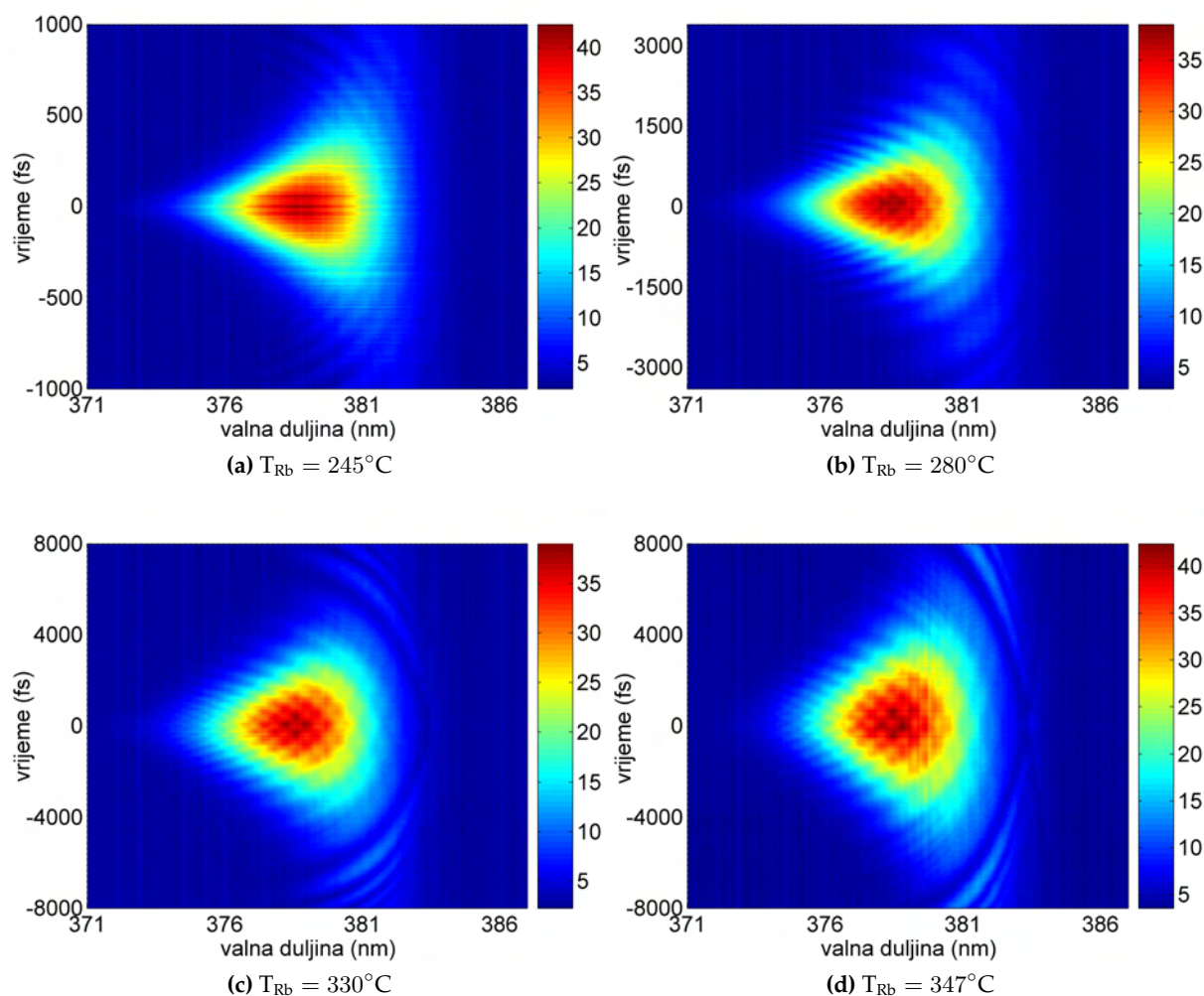
Slika 4.20: Rekonstruirani FROG spektrogrami konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u crveno krilo rezonantnih linija rubidija.

Izmjereni i rekonstruirani FROG spektrogrami laserskog pulsa postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija prikazani su na slikama 4.22 i 4.23. Za temperature para rubidija približno jednake onima kod mjerenja s laserom postavljenim u crveno krilo rezonantnih rubidijevih linija sada imamo puno veće širenje pulsa u vremenskoj domeni, dok je spektar pulsa i ovdje slabo izmijenjen. TBP umnožak mijenja se u prikazanom rasponu temperatura od 1.2 do 12 (FWHM), u skladu s promjenom trajanja pulsa od $\Delta\tau = 217$ fs do $\Delta\tau = 2160$ fs. Iz rekonstruiranih spektrograma dobiveni su podaci o električnom polju pulsa. Intenzitet i faza pulsa u vremenskoj domeni, realni dio anvelope električnog polja, te spektar prikazani su na slici 4.25. Dobiveni intenzitet kvalitativno se slaže s prethodnim međukorelacijskim mjerenjima iako su FROG mjerenja rađena na nešto nižim koncentracijama. Za razliku od međukorelacijskih mjerenja FROG mjerenja nam daju i fazu pulsa bez koje nije moguće potpuno opisati puls. U ovom slučaju oblik faze pulsa je naročito bitan jer se iz promjene oblika faze pulsa može saz-



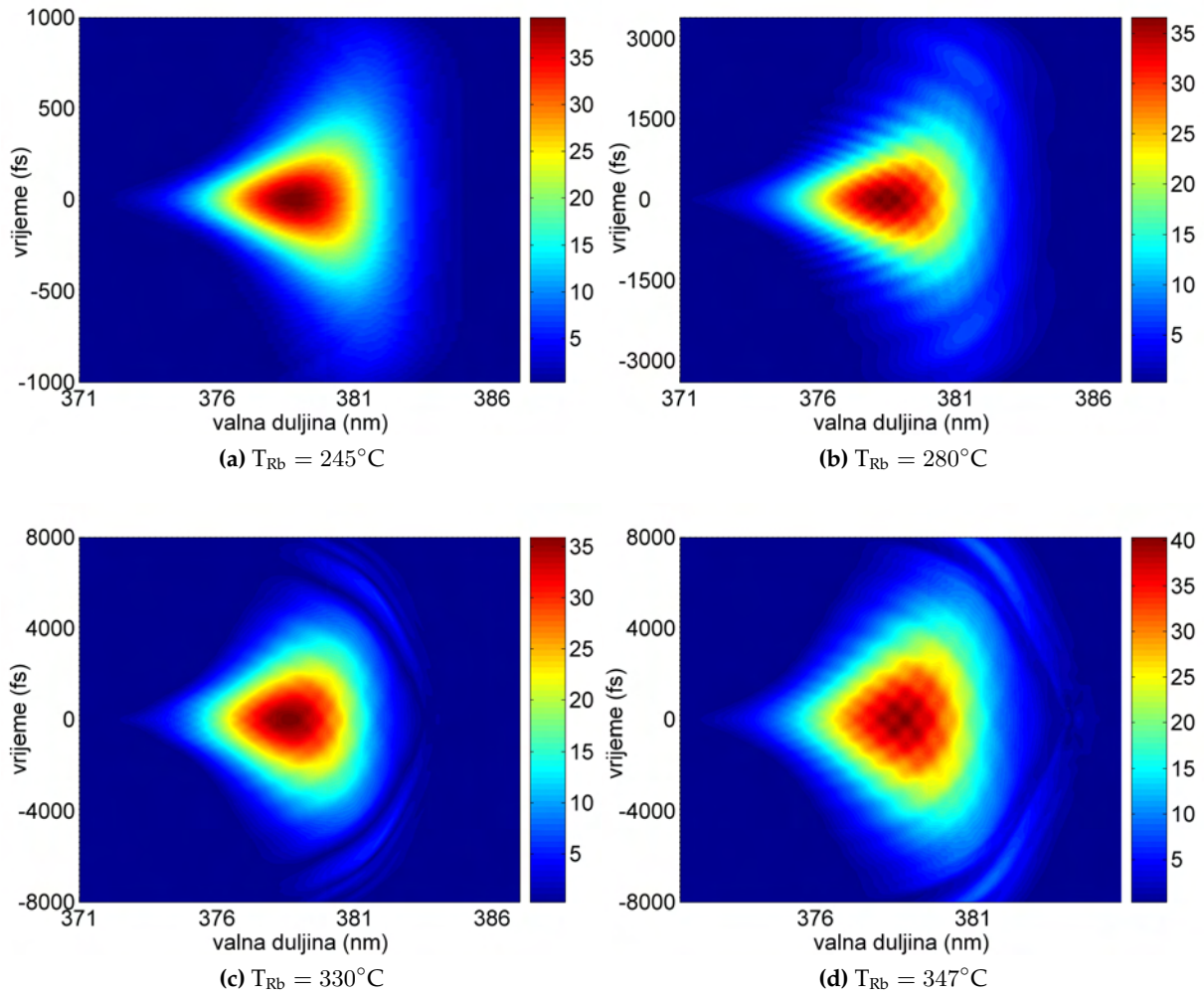
Slika 4.21: Rekonstrukcija pulsa iz FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u crveno krilo rezonantnih linija rubidija.

nati priroda međudjelovanja pulsa s medijem. Za pulseve koji su doživjeli samomodulaciju faze karakteristično je da im je vremenska faza proporcionalna intenzitetu pulsa [14]. Rekonstruirana faza to i potvrđuje te je to još jedan čvrsti dokaz da je konusna emisija u slučaju kada je laserski puls podešen u plavo krilo atomske rezonancije medija posljedica samomodulacije faze pulsa. S druge strane, rekonstruirana faza pulsa podešenog u crveno krilo rezonantnih linija ima oblik koji, kada se usporedi sa slikom 2.2, nam govori da ovaj puls najvjerojatnije ima negativan linearni cvrkut. Osim samomodulacije faze, na puls utječe i disperzija medija a na višim koncentracijama značajna je i apsorpcija. Zbog prolaska disperzivnim medijem dolazi do disperzije grupne brzine pulsa (*group velocity dispersion* - GVD) koja je jače izražena u dijelu spektra pulsa bližem rezonanciji. Na slici 4.24 prikazane su vrijednosti promjene



Slika 4.22: FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija ($\lambda_c = 760$ nm). Koncentracija atoma rubidija raste od $4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ do $6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ [47].

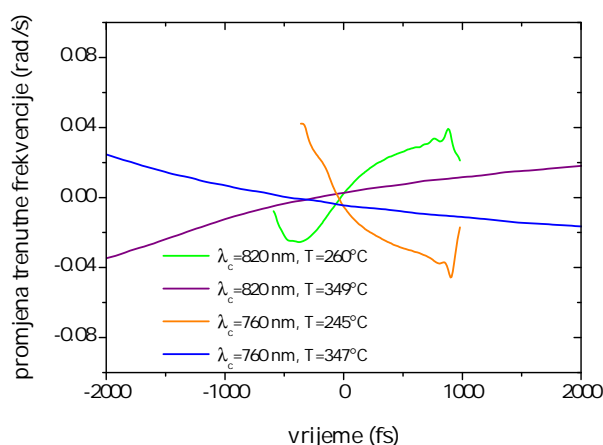
trenutne frekvencije pulseva (izraz 2.1.12) čija je centralna valna duljina postavljena u crveno ili plavo krilo rezonantnih linija rubidija, kako bi se provjerio vremenski redoslijed dolaska pojedinih spektralnih komponenti pulseva. Pozitivne vrijednosti na vremenskoj osi povezane su s prednjim dijelom pulsa, a negativne sa stražnjim dijelom pulsa. Smjer vremena određen je pomoću međukorelacijskih XFROG mjerenja koja su opisana u posljednjem odlomku ovog poglavlja. Usredotočimo li se samo na mjerenja na većim temperaturama, pokazuje se da kod pulseva postavljenih u plavo krilo rezonantnih linija promjena trenutne frekvencija negativna u prednjem dijelu pulsa, a pozitivna u stražnjem dijelu pulsa. Dobivena promjena trenutne frekvencije u skladu je s promjenom frekvencije pulsa zbog samomodulacije faze, izraz 2.2.16, uz pretpostavljanje pozitivnog nelinearnog indeksa loma n_2 . No upravo iz teorije adijabatske slijednosti izlazi da će u plavom krilu rezonancije n_2 biti pozitivan. Pulsevi postavljeni u cr-



Slika 4.23: Rekonstruirani FROG spektrogrami konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija.

veno krilo rezonantnih linija imaju upravo suprotnu promjenu trenutne frekvencije što se može povezati sa negativnim nelinearnim indeksom loma u crvenom krilu rezonantnih linija. Promjena trenutne frekvencije nije simetrična oko nule zbog disperzije medija koja više utječe na spektralne komponente pulseva bliže rezonanciji. Drugi uzrok nesimetričnosti povezan je s intenzitetskom ovisnosti nelinearnog indeksa loma.

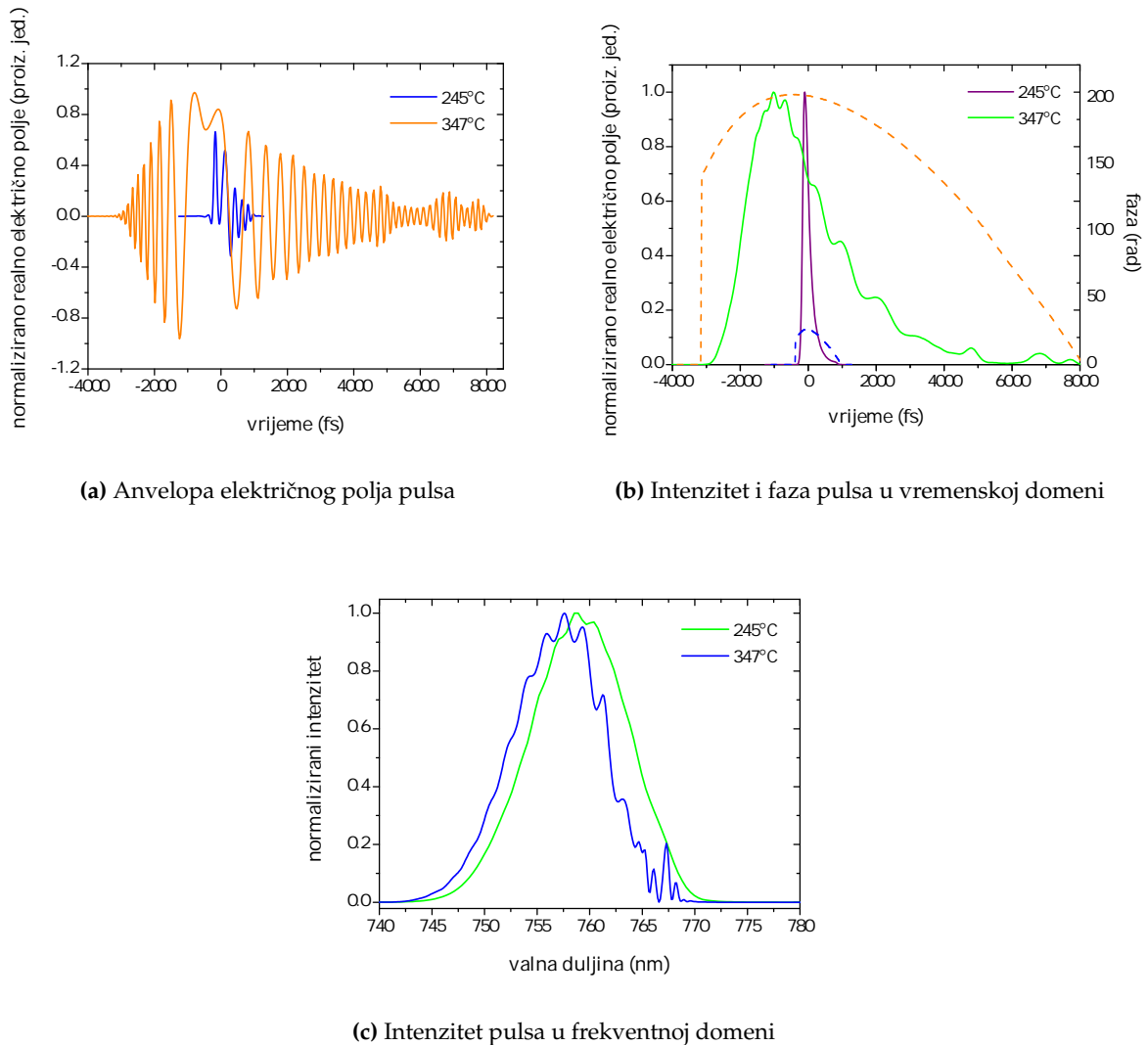
Zbog potpunosti rezultata na slikama 4.26 i 4.27 prikazani su rezultati FROG mjerenja na nekoliko nižih temperatura para rubidija u slučaju kada je centralna valna duljina pulsa praktički preklapljena s D2 rezonantnom linijom rubidija ($\lambda_c = 778 \text{ nm}$). Zbog snažne apsorpcije pulsa pri većim temperaturama para rubidija, nije bilo moguće postići razinu SHG signala koju bi spektrometar mogao izmjeriti. Ti rezultati očekivano pokazuju znatnije promjene oblika pulseva pri nižim temperaturama (koncentracijama) para rubidija od pulseva



Slika 4.24: Vremenska promjena trenutne frekvencije pulseva čija je centralna valna duljina postavljena u crveno ili plavo krilo rezonantnih linija rubidija.

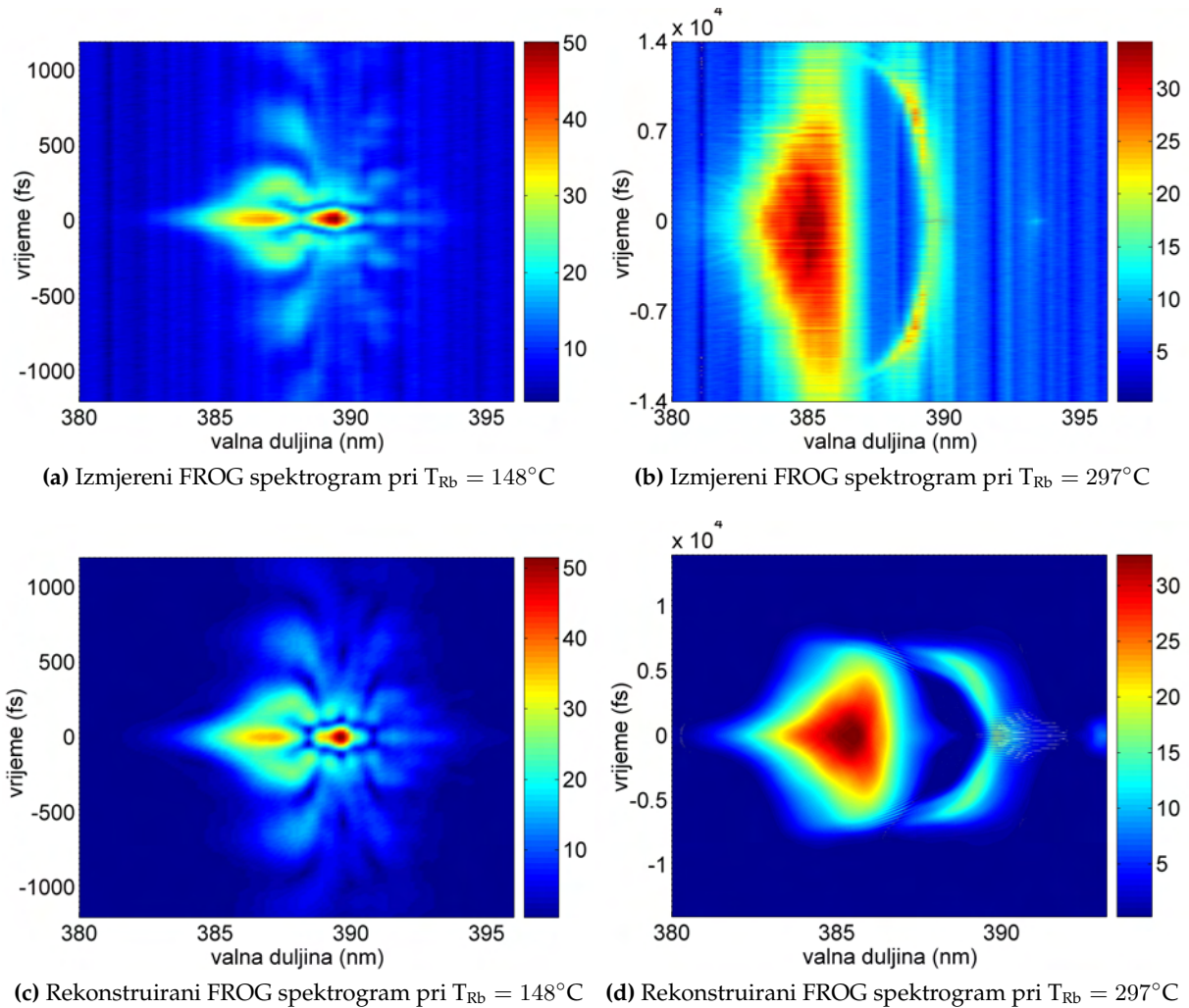
koji su podešeni dalje u plavo ili crveno krilo rezonantnih linija. Spektrogram na slici 4.26b ne zadovoljava u potpunosti FSR uvjet jer nije uzorkovan dovoljno daleko u vremenskoj dimenziji pa zato i rekonstruirani spektrogram, slika 4.26d, nije identičan izmjerenoj. Zbog toga je puls, prikazan na slici 4.26d, još više produljen u vremenu, dok je rekonstruirani spektar dosta vjerodostojan te ima rupu u području oko 780 nm gdje se nalazi D2 rezonantna linija rubidija. Povećanjem koncentracije para rubidija nestaje dio spektra pulsa na valnim duljinama većima od valne duljine D2 rezonantne linije te se čini kao da se spektar pulsa pomiče u plavo. Kako su svi prikazani rezultati normirani, spektralni intenzitet je zapravo puno manji od onoga na nižim koncentracijama. Logično je za pretpostaviti da će s povećanjem koncentracije rubidija spektar biti još više pomaknut u plavo, u skladu sa prijašnjim mjerenjima prikazanim na slici 4.14. Usporedba sa spektrima dobivenima za pulseve postavljene na $\lambda_c = 760$ nm i $\lambda_c = 820$ nm govori da spektar rezonantnog pulsa, za razliku od nerezonantnih pulseva, doživljava bitne promjene zbog izražene apsorpcije. Najveće produljenje u vremenskoj domeni doživljava rezonantni puls. Slijedi ga puls postavljen u plavo krilo rezonantnih linija, dok su najmanje promjene kod pulseva koji su postavljeni u crveno krilo rezonantnih linija. U situaciji kada je centar spektra pulsa apsorbiran spektralna širina pulsa zapravo raste, te čini kao da se, u skladu sa teorijom samomodulacije faze pulsa, stvaraju nove frekvencije pulsa.

Ostaje otvoreno još i pitanje utjecaja geometrijskih efekata u uvjetima konusne emisije na izvedena FROG mjerenja. Zbog samofokusiranja i kasnije konusne emisije, u nelinearnom kristalu se preklapaju pulsevi kojima su različite prostorne komponente u poprečnom presjeku



Slika 4.25: Rekonstrukcija pulsa iz FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija.

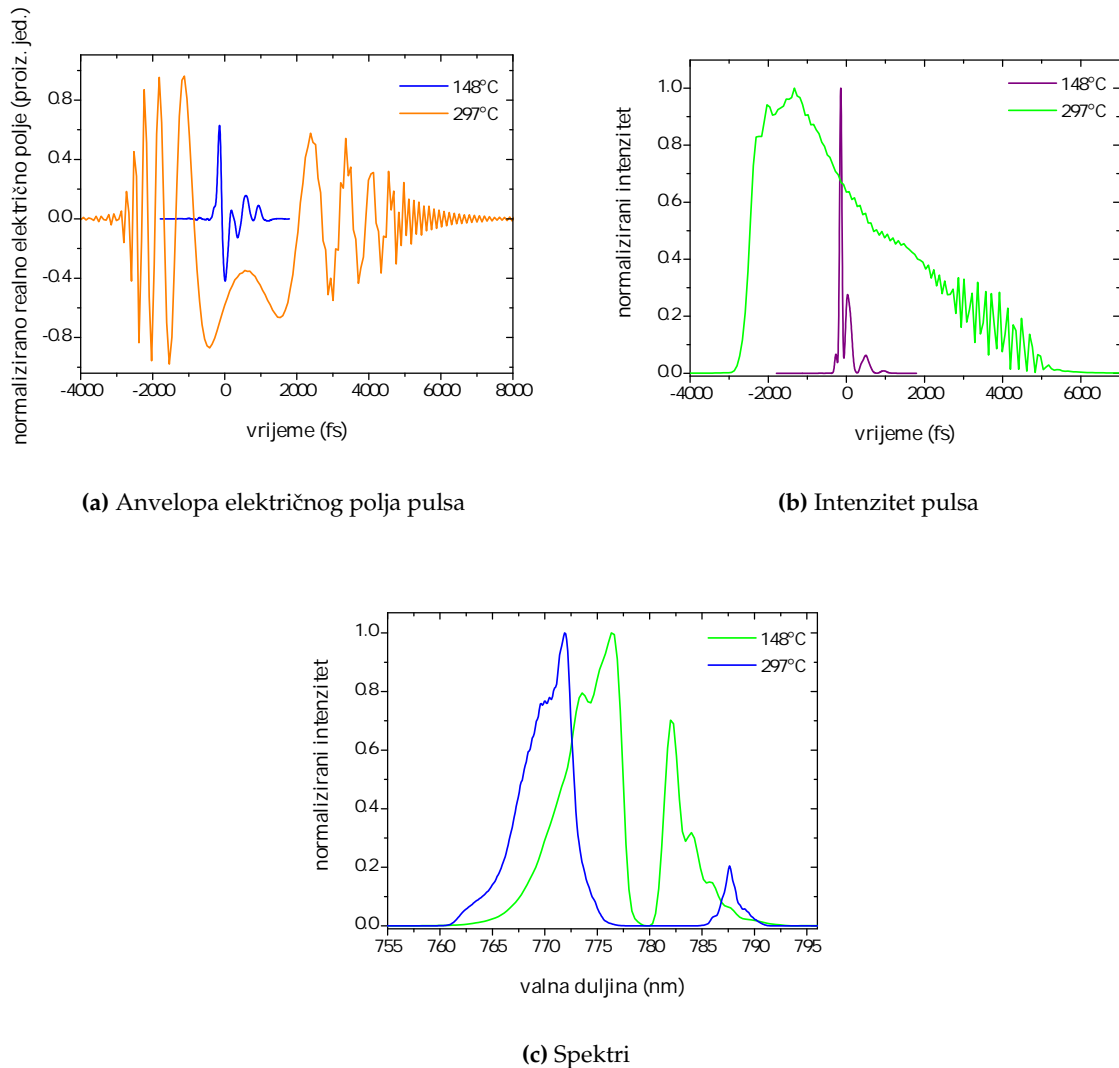
snopa putovale optičkim putevima različitih duljina. Zbog toga je moguće izmjeriti puno veća trajanja pulseva u vremenu od stvarnih vrijednosti. Također, primjenom Fourierovog teorema na funkciju pomaknutu u vremenu, može se pokazati da će spektar pulsa opisanog električnim poljem $E(t)$ postati nazubljen ako je jedan manji dio pulsa prošao duljim optičkim putem od ostatka pulsa. Takva nazubljenost vidljiva je npr. na slici 4.25c. Treba ipak uzeti u obzir da su prethodna međukorelacijska mjerenja, slika 4.11, rađena sa samo jednim dijelom poprečnog presjeka konusne emisije, gdje bi geometrijski efekti morali biti bitno manji, te da su ti rezultati u skladu sa rezultatima FROG mjerenja.



Slika 4.26: Obrada FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog na D2 rezonantnu liniju rubidija.

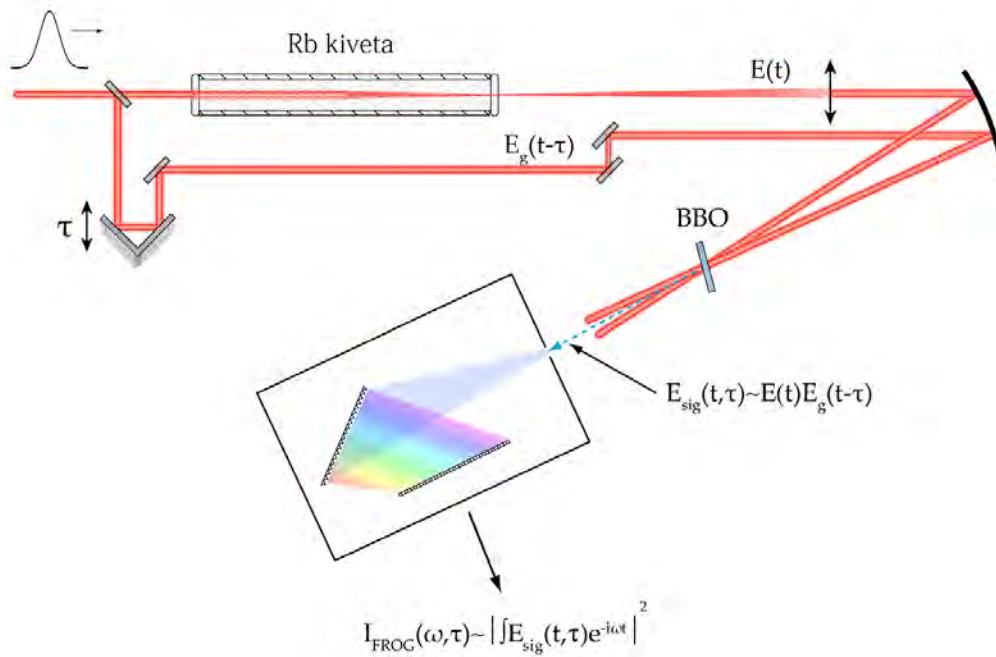
4.3.2. XFROG međukorelacijska mjerenja konusne emisije

Već je ranije spomenuto da je jedna od inačica FROG tehnike, međukorelacijska XFROG tehnika, naročito prikladna za mjerenja kompleksnijih pulseva. Očito je da pulsevi koji stvaraju konusnu emisiju spadaju među takve te je logično pokušati vidjeti može li se korištenjem nove tehnike dobiti bolji rezultati. Osim toga, XFROG mjerenja daju intuitivne spektrograme sa jasno definiranim smjerom vremenske osi. U tim spektrogramima lako je uočiti vremenski redoslijed dolaska različitih spektralnih komponenti pulsa (npr. linearni cvrkut pulsa). S druge strane, za obradu spektrograma pomoću FROG algoritma potrebno je poznavati puls kojim se uzorkuje nepoznati puls. U konkretnom slučaju to ne predstavlja prepreku, jer je puls koji izlazi iz femtosekundnog oscilatora dobro poznat, između ostaloga i na temelju FROG mjerenja pulsa nakon prolaska kroz rubidijevu ćeliju na sobnoj temperaturi (slika 4.5), gdje



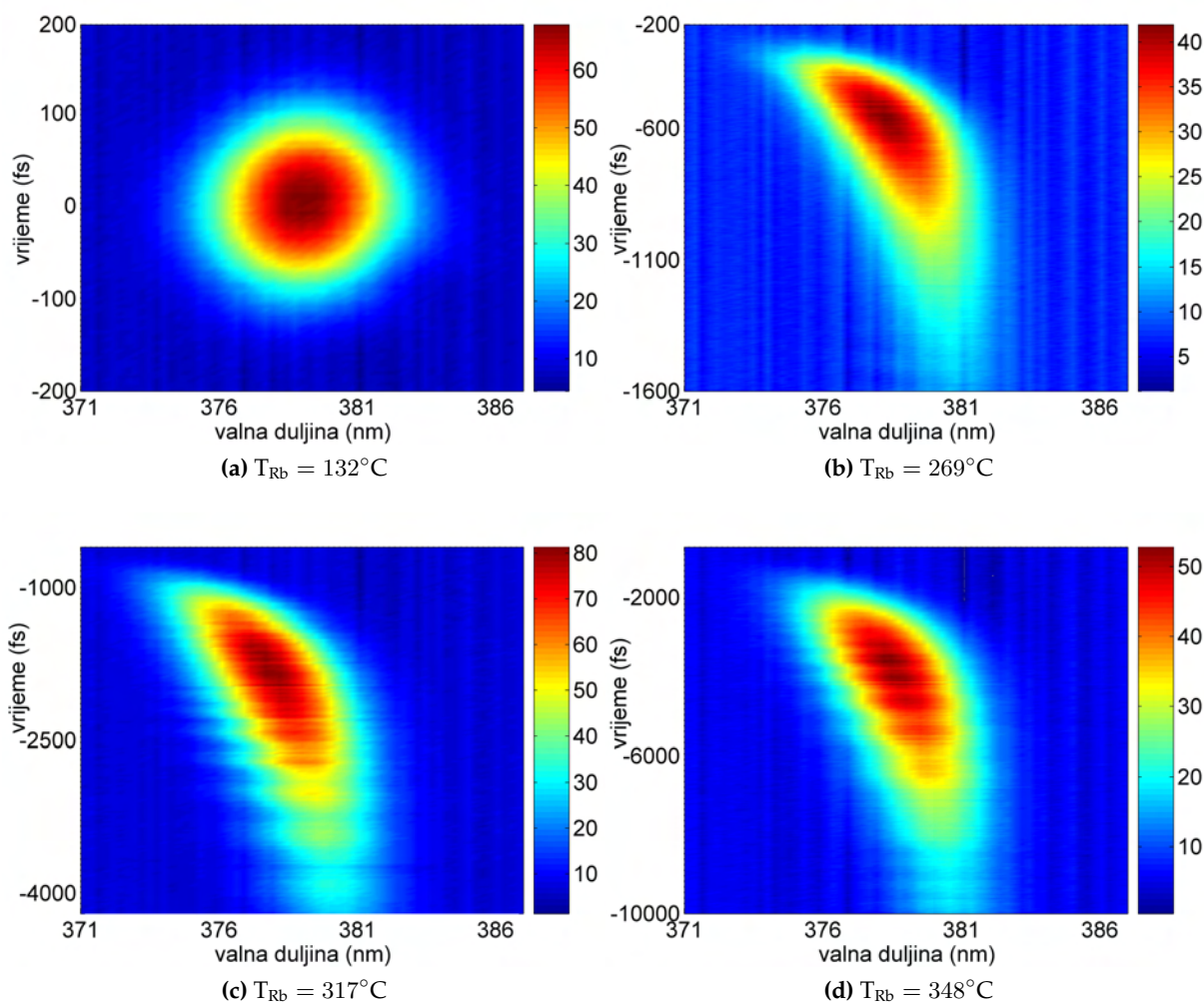
Slika 4.27: Rekonstrukcija pulsa iz FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog na D2 rezonantnu liniju rubidija.

je puls zanemarivo izmijenjen. Na slici 4.28 prikazana je shema eksperimentalnog postava za XFROG mjerenja. Ispred peći s rubidijevom kivetom postavi se djelitelj snopa. Jedan od snopova prolazi kroz kivetu s rubidijevim parama dok drugi ne prolazi i njime zapravo uzorkujemo izmijenjeni puls koji je međudjelovao s gustim rubidijevim parama mijenjajući mu duljinu prijašnjeg optičkog puta. Ponovo se, kao i ranije, snima spektar drugog harmonika stvorenog u nelinearnom kristalu u kojem se nekolinearno preklapaju laserski snopovi. Signal nastaje u smjeru određenom zbrajanjem valnih vektora dvaju laserskih snopova te mu je smjer različit od smjera prostiranja ostalih signala koji napuštaju kristal. U obradi spektrograma za vrijednosti referentnog pulsa (onoga kojim uzorkujemo modificirani puls) korišteni su parametri dobiveni analizom SHG FROG spektrograma nemodificiranih pulseva (slike 4.9 i 4.8 za temper-



Slika 4.28: Shema eksperimentalnog postava kod XFROG mjerenja.

aturu $T_{Rb} = 24^\circ\text{C}$). Referentni puls je trajanja 80 fs (FWHM) te ima linearni cvrkut koji iznosi $-3 \times 10^{-5} \text{ rad fs}^{-2}$. Spektralna širina pulsa je oko 11 nm (FWHM) a centralna valna duljina $\lambda_c = 760 \text{ nm}$. Iz XFROG spektrograma prikazanih na slici 4.29 za nekoliko različitih temperatura para rubidija odmah su uočljiva dva važna svojstva pulseva koji su prošli kroz guste pare rubidija. Prvo, puls kasni u dolasku na nelinearni kristal u odnosu na puls koji nije prošao kroz kivetu i to kašnjenje raste eksponencijalno s povećanjem temperature para rubidija, slika 4.34. Drugo, spektar pulsa mijenja se ovisno o trenutku uzorkovanja na način da najprije sadrži crveni dio spektra referentnog pulsa, dok je u kasnijim (bližima $\tau = 0$) vremenima spektar sve više pomaknut u plavo. U odlomku 2.2.1 opisan je proces samomodulacije faze. Pokazano je da trenutna frekvencija pulsa koji je prošao samomodulaciju faze zbog međudjelovanja sa nelinearnim medijem pokazuje pomak spektra prednjeg dijela pulsa prema većim valnim duljinama i stražnjeg dijela pulsa prema nižim valnim duljinama (*up-chirp*). Uzorkovani puls ima izražen pozitivni linearni cvrkut koji iznosi $-1.5 \times 10^{-5} \text{ rad fs}^{-2}$. Vrijednost linearnog cvrkuta dobivena je prilagodbom polinoma drugog reda na rekonstruiranu fazu električnog polja pulsa u vremenskoj domeni. Kao i kod FROG mjerenja za pulseve podešene u plavo krilo atomske rezonancije i ovdje je rekonstruirana faza u vremenskoj domeni proporcionalna intenzitetu što

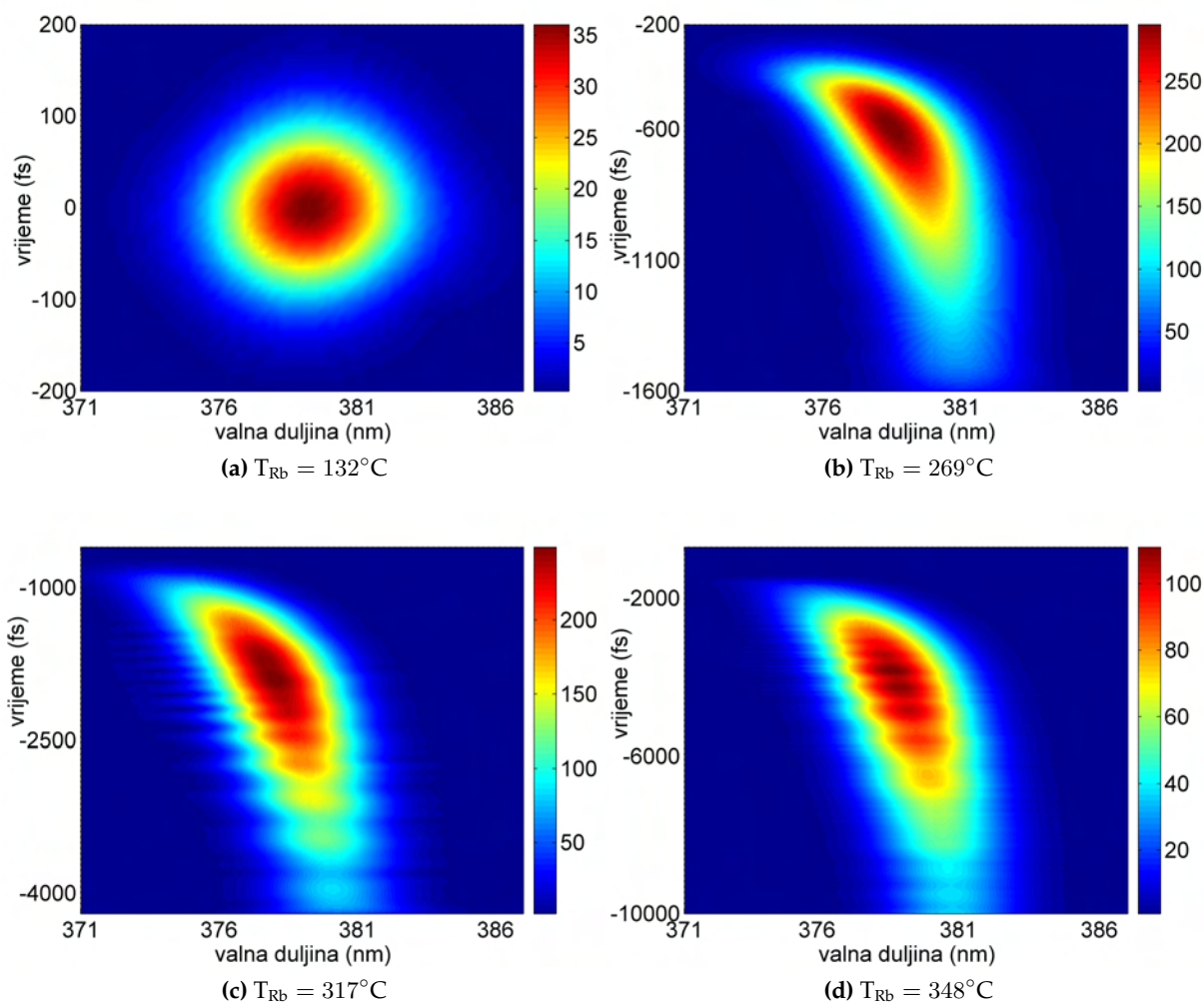


Slika 4.29: XFROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija ($\lambda_c = 760$ nm).

je još jedna potvrda teze da je konusna emisija u promatranim uvjetima rezultat samomodulacije pulsa [10]. Pogreška FROG algoritma najbolja je mjera kvalitete mjerenja. I dok je kod prethodno prikazanih FROG autokorelacijskih mjerenja pogreška u najboljem slučaju iznosila 0.008 (na matrici 1024×1024), kod XFROG međukorelacijskih mjerenja ona je redovito ispod 0.005 u istim uvjetima. Pogreška je redovito bila manja u obradi mjerenja na nižim temperaturama para rubidija jer je puls u tom slučaju manje kompleksan (ima manji TBP).

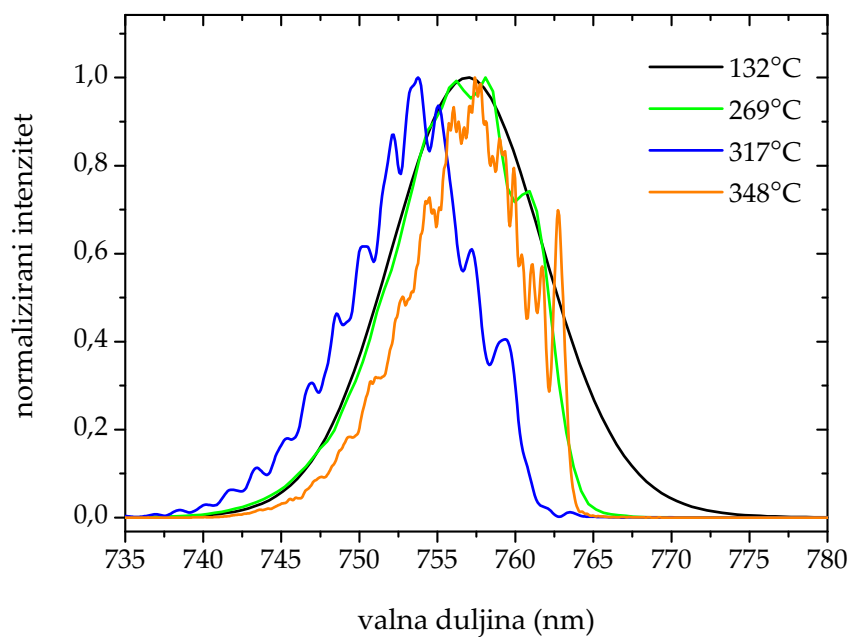
4.4. Zaključak

Konačni zaključak o uzrocima nastajanja konusne emisije u gustim parama rubidija zbog prostiranja femtosekundnih pulseva čija je valna duljina u blizini rezonantnih linija rubidija je slijedeći. U konkretnom slučaju najvjerojatniji fizikalni proces nastajanja konusne emisije je

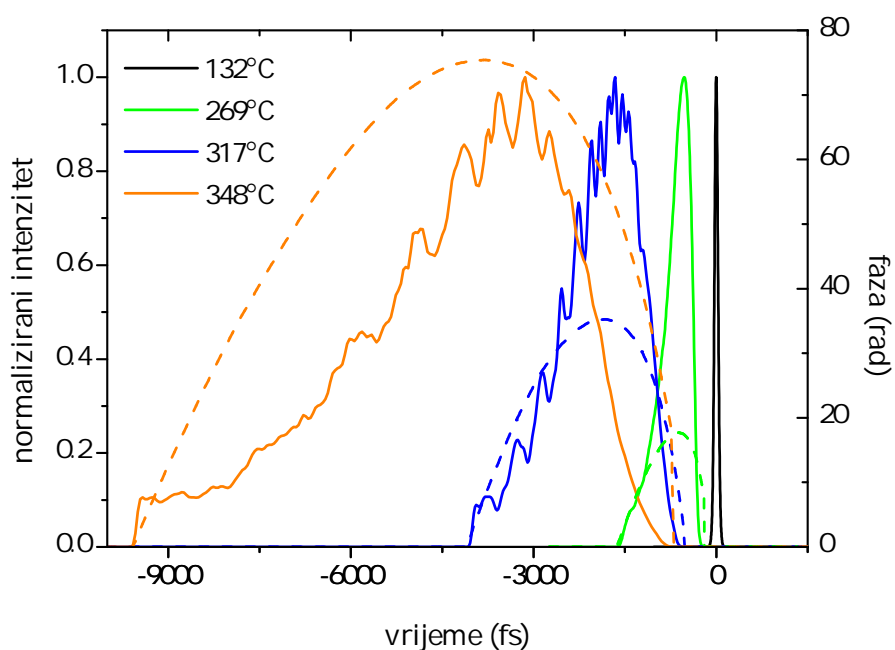


Slika 4.30: Rekonstruirani XFROG spektrogrami konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija.

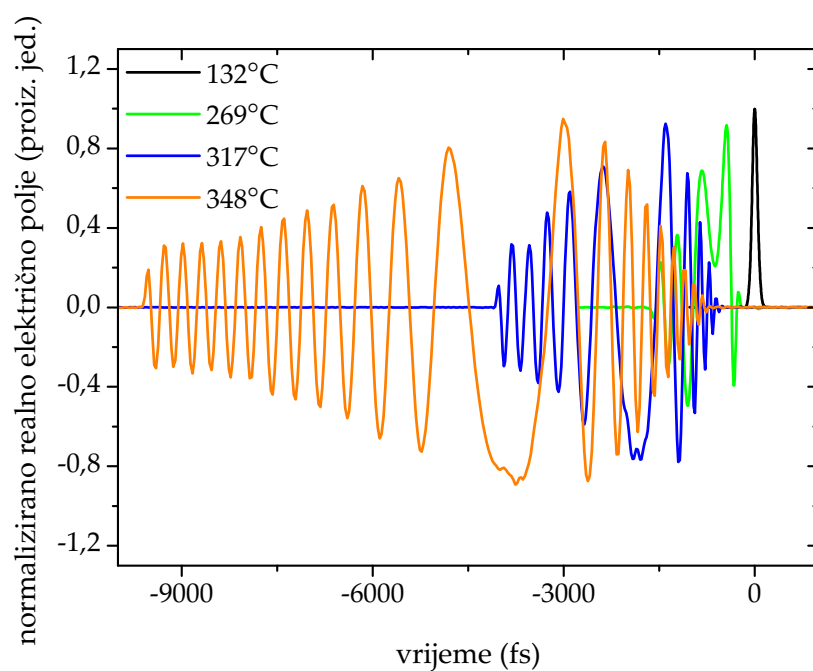
optički Kerrov efekt zbog kojeg dolazi do samofokusiranja pulsa koji je ugođen u plavo krilo rezonantnih linija. Istovremeno sa samofokusiranjem pulsa u prostornoj domeni dolazi do samomodulacije faze u vremenskoj domeni. Sva obavljena mjerenja, uključujući i mjerenja frekventno-razlučivog optičkog uzorkovanja (FROG) pulsa, daju rezultate u skladu sa postavljenom hipotezom. FROG mjerenja su donijela i neke dodatne detalje o obliku femtosekundnog pulsa koji generira konusnu emisiju. Pronađene su i granice unutar kojih je FROG metoda praktična za karakterizaciju pulseva nakon međudjelovanja sa rezonantnim medijem. Izmjenjeni pulsevi zahtijevaju uzorkovanje u širokom prozoru vremenskih pomaka autokorelacijskog mjerenja uz istovremeno zadržavanje dovoljne razlučivosti u frekventnoj domeni što neminovno vodi na korištenje sve većih i većih matrica u FFT transformaciji koju koristi FROG algoritam. Vrijeme potrebno za konvergenciju FROG algoritma raste zbog povećanja matrice s



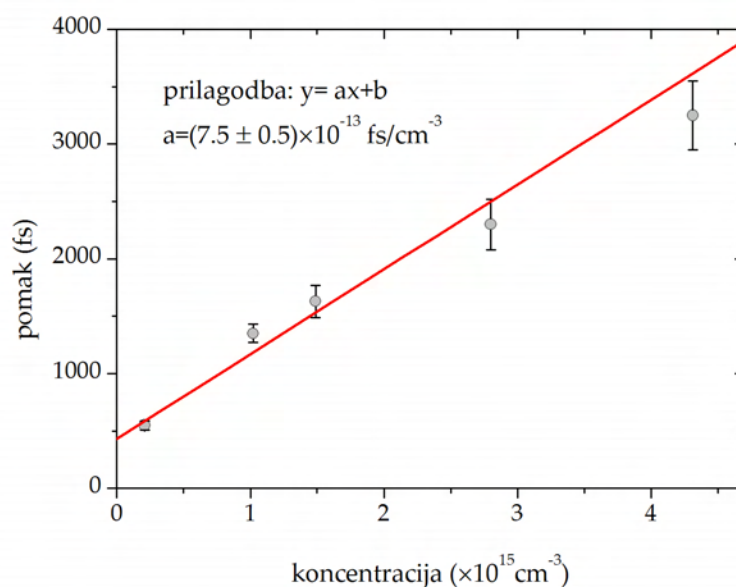
Slika 4.31: Spektri pulseva rekonstruirani iz XFROG mjerenja. Mjerenja na temperaturi od 132°C zapravo odgovaraju mjerenjima u uvjetima zanemarivog međudjelovanja pulseva sa medijem. Intrigantno je pojavljivanje vrha u spektru pri najvišoj temperaturi para rubidija u blizini 762 nm , u skladu sa teorijom četverovalnog miješanja.



Slika 4.32: Intenziteti i faze električnog polja pulsa rekonstruirani iz XFROG mjerenja.



Slika 4.33: Realni dio anvelope električnog polja pulsa rekonstruiran iz XFROG mjerenja.



Slika 4.34: Kašnjenje u dolasku pulsa iz konusne emisije u odnosu na referentni puls u ovisnosti o temperaturi para rubidija izračunato na temelju XFROG mjerenja intenziteta pulsa.

2^n na 2^{n+1} s faktorom $4(1 + n^{-1})$. Zbog toga FROG metoda postaje nepraktična za konkretnu primjenu, iako se metoda redovito primjenjuje za karakterizaciju ultrakratkih pulseva. FROG mjerenja omogućila su još detaljniji uvid u procese međudjelovanja pulsa sa nelinearnim medijem što bi se moglo iskoristiti za usporedbu s torijskim simulacijama temeljenima na rješavanju nelinearne Schrödingerove jednačbe.

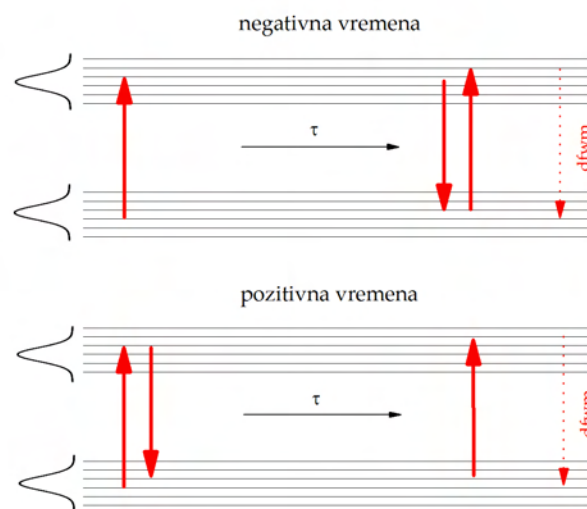
5 Degenerirano četverovalno miješanje u gustim parama natrija

Razvojem femtosekundnih lasera započeto je intenzivno proučavanje molekularne dinamike u realnom vremenu [94, 95]. U istraživanjima se sve češće koriste i tehnike koje se temelje na nelinearnim efektima trećeg reda. Među njima su naročito zanimljiva istraživanja pomoću degeneriranog četverovalnog miješanja (*degenerate four-wave mixing-DFWM*), jer zahtijevaju korištenje samo jednog lasera. Vremenska rezolucija mjerenja procesa četverovalnog miješanja ovise o vremenu trajanja pulseva kojima ispitujemo uzorak i o vremenu koherencije pulseva, tj. o Fourier transformatu spektralne širine lasera. Prednost korištenja femtosekundnih pulseva nad drugim koherentnim izvorima je u vremenu međudjelovanja s medijem koje je puno kraće od brzine raznih relaksacijskih mehanizama.

5.1. Uvod

Signal u eksperimentima četverovalnog miješanja nastaje vremenskim i prostornim preklapanjem triju identičnih pulseva u uzorku. Prostorni i vremenski redoslijed dolaska pulseva u uzorak odgovara konfiguraciji tranzijentne rešetke gdje dva od tri pulsa dolaze istovremeno u uzorak, dok se vremenom dolaska trećeg pulsa može slobodno manipulirati (slika 5.1). Tako treći puls može doći prije ili nakon druga dva - u oba slučaja može doći do nelinearnog međudjelovanja tri pulsa u uzorku. Prostorno preklapanje pulseva izvedeno je u tzv. *BOXCARS* izvedbi gdje su ulazni snopovi geometrijski posloženi tako da dolaze iz tri tjemena zamišljenog kvadra i sijeku se u presjecištu glavnih dijagonala kvadra. Tada je signal $\vec{k}_s = \vec{k}_1 - \vec{k}_2 + \vec{k}_3$ prostorno odvojen od ulaznih pulseva, kao na slici 5.2. Istovremeni dolazak dvaju pulseva stavlja sistem u koherentnu superpoziciju pobuđenih stanja koja ima određenu vremensku dinamiku. Treći puls omogućava ispitivanje dinamike novog stanja sis-

tema mjerenjem intenziteta četvrtog pulsa u ovisnosti o vremenskom razmaku između prva dva i trećeg pulsa. Ultrakratki laserski izvori zanimljivi su za proučavanje višestrukih rezonancija u sistemima zbog činjenica da zbog svoje velike spektralne širine (vrijeme trajanja pulsa i njegov spektar su obrnuto proporcionalni) mogu istovremeno pobuditi više rezonancija (nivoa). Proučavanjem titraja tako izazvanih udara mogu se mjeriti razlike energija stanja, vremena života stanja te širine linija. Moguće je također i direktno mjerenje relaksacija koherencija nastalih između koherentno pobuđenih stanja. Kontrolom nad cvrkutom pulseva može se mijenjati efikasnost pobude valnog paketa.



Slika 5.1: Vremenski redoslijed dolaska pulseva u uzorak.

Fizikalno se proces četverovalnog miješanja može objasniti na slijedeći način [96]. Međudjelovanje prvog pulsa i dielektričnog medija uzrokuje titranje polarizacije dielektrika koji apsorbiranu energiju vraća emisijom zračenja iste frekvencije s određenim faznim pomakom određenim faktorom gušenja titraja pojedinih dipola. Drugi puls također izaziva titranje polarizacije te zbog interferencije dvaju valova električnih polja pulseva dolazi do titranja polarizacije na frekvencijama koje odgovaraju zbroju i razlici frekvencija. I treći puls inducira polarizaciju medija te u titrajima polarizacije dolazi do udara između trećeg i druga dva ulazna vala, kao i između trećeg vala i valova na frekvencijama sume i razlike frekvencija druga dva vala. Ti udari između vala trećeg pulsa i valova na frekvencijama sume i razlike frekvencija druga dva vala uzrokuju nastanak signala četverovalnog miješanja. Razvoj polarizacije u red potencija električnog polja, jedn. 2.2.1, pretpostavlja da se koeficijenti u razvoju, susceptibilnosti, progresivno smanjuju s povećanjem reda razvoja kako bi cijeli razvoj uvijek konvergirao.

Ta pretpostavka zadovoljena je ako je Rabi frekvencija mala u usporedbi s homogenom širinom svake bliske rezonancije medija [97]. U najvećem broju situacija uvjet je zadovoljen, iako postoje važni procesi, kao što je npr. samoinducirana transparentnost (*self-induced transparency*), u kojima taj uvjet nije zadovoljen.

Za procese četverovalnog miješanja odgovorna je nelinearna susceptibilnost trećeg reda $\chi^{(3)}$. Općenito, $\chi^{(3)}$ je tenzor četvrtog reda s 81 elementom. Svaki od elemenata oblika je sume 48 članova. Broj članova drastično se smanjuje zbog simetrija materijala i rezonancija, no za razliku od $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$ može imati elemente različite od nule za svaku moguću simetriju. $\chi^{(2)}$ isčezava kod materijala koji posjeduju simetriju inverzije (plinovi, tekućine). Tipičan član u elementu nelinearne susceptibilnosti trećeg reda sadrži tri rezonantna faktora u nazivniku:

$$\chi_{kjih}^{(3)}(\omega_p + \omega_q + \omega_r, \omega_r, \omega_q, \omega_p) = \frac{N}{\hbar^3} \mathcal{P}_l \sum_{\nu, n, m, l} \rho_{ll}^0 \quad (5.1.1)$$

$$\times \left\{ \frac{\mu_{l\nu}^k \mu_{\nu n}^j \mu_{nm}^i \mu_{ml}^h}{[(\omega_{\nu l} - \omega_p - \omega_q - \omega_r) - i\gamma_{\nu l}] [(\omega_{nl} - \omega_p - \omega_q) - i\gamma_{nl}] [(\omega_{ml} - \omega_p) - i\gamma_{ml}]} \right\}.$$

Sumacija se provodi preko svih stanja oscilatora. N je broj oscilatora, $\mu_{l\nu}$ je matrični dipolni moment prijelaza između stanja l i ν , $\omega_{\nu l}$ je frekvencija prijelaza sa ν na l , $\gamma_{\nu l}$ je relaksacija nedijagonalnih matričnih elemenata matrice gustoće stanja koji povezuju stanja ν i l , a $\omega_{p,q,r}$ su frekvencije polja pulseva. ρ_{ll}^0 je neperturbirani dijagonalni element matrice gustoće stanja. Glavna razlika između 48 članova elementa je u redosljedu frekvencija koje se pojavljuju u sumaciji. U računima perturbacija matrice gustoće prvi puta je korištena metoda dijagramatske reprezentacije članova (koja odgovara Feynmanovim dijagramima u fizici elementarnih čestica) [98] kojom se na jednostavan način mogu izraziti svi doprinosi u promatranim procesima četverovalnog miješanja. Daljnje pojednostavljivanje izraza za susceptibilnost trećeg reda dobiva se zadržavanjem samo onih članova koji bitno doprinose susceptibilnosti zbog rezonancija s frekvencijama oscilatora. Izraz za nelinearnu polarizaciju trećeg reda može se napisati u obliku:

$$P_i(\omega_s, \vec{r}) = \frac{1}{2} \chi_{kjih}^{(3)}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_q, \omega_r) E_j(\omega_p) E_k^*(\omega_q) E_l(\omega_r) e^{i(\vec{k}_p - \vec{k}_q + \vec{k}_r) \cdot \vec{r} - i\omega_s t} + c.c. \quad (5.1.2)$$

Mjereni signal četverovalnog miješanja proporcionalan je $|\chi^{(3)}|^2$, umnošku intenziteta triju ulaznih polja i faktoru koji ovisi o usklađivanju faza. Najlakši način provjere mjeri li se zaista signal četverovalnog miješanja jest da se provjeri funkcionalna ovisnost signala o ovim parametrima. Na primjer, signal četverovalnog miješanja mora isčezavati ukoliko zaustavimo

jedno od ulaznih polja ili ako poremetimo fazno usklađivanje tako da npr. promjenimo geometriju preklapanja ulaznih polja. Zadnja mogućnost je jednostavno ukloniti nelinearni medij.

Uvrštavanjem izraza za nelinearnu polarizaciju mogu se, uz određene aproksimacije, dobiti izrazi za intenzitete pojedinih signala nakon međudjelovanja u nelinearnom mediju. Efikasno vezanje valova moguće je samo ako su zadovoljeni uvjeti aproksimacije rotirajućeg vala (RWA) koja vodi na uvjete: $\omega_s = \omega_p - \omega_q + \omega_r$, i $\vec{k}_s = \vec{k}_p - \vec{k}_q + \vec{k}_r$. Intenzitet DFWM signala u vremenskoj domeni može se izraziti kao:

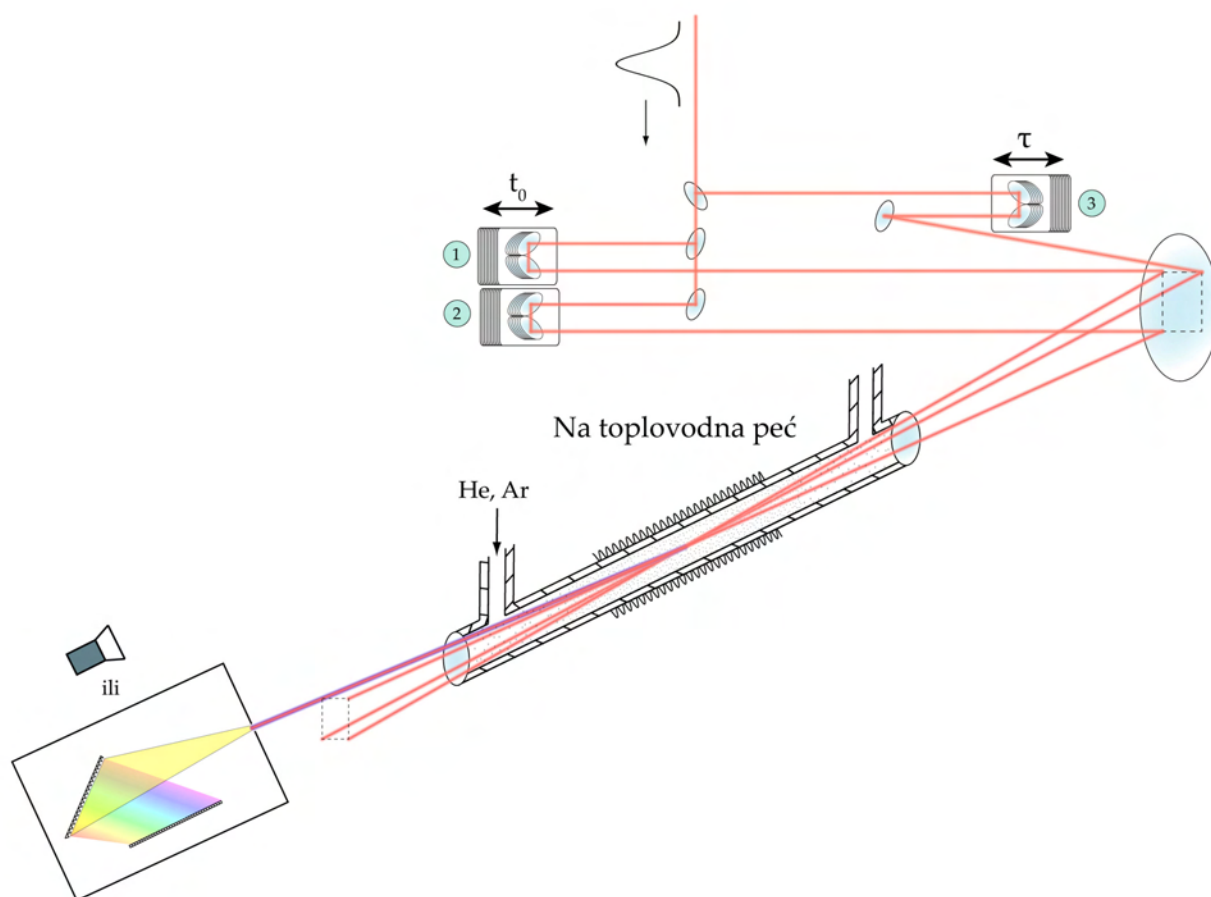
$$I_{\text{DFWM}}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \left| P^{(3)}(\vec{k}_s, t) \right|^2 dt, \quad (5.1.3)$$

gdje je $P^{(3)}(\vec{k}_s, t)$ vremenski ovisna nelinearna polarizacija trećeg reda za dani uvjet faznog usklađivanja. U BOXCARS geometriji polarizaciju možemo izraziti kao:

$$P^{(3)}(\vec{k}_s, t) = -E_2(t) \int_0^{\infty} E_1(\tau - t') E_2(\tau - t') \chi^{(3)}(t') dt'. \quad (5.1.4)$$

5.2. Motivacija i eksperiment

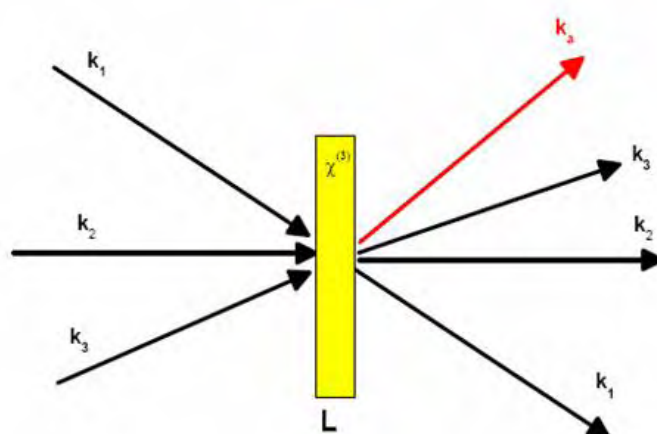
Tehnika četverovalnog miješanja (FWM) femtosekundnih pulseva spada u grupu tzv. *pump-probe* tehnika koje maksimalno iskorištavaju kratkoću pulseva za dobivanje maksimalne vremenske rezolucije promatranog fenomena. Upravo stoga su započeta mjerenja kako bi se dobio uvid u dinamiku procesa u pobuđenim atomima i molekulama alkalija. Kako se za FWM koriste pulsevi velike energije, nije poželjno raditi sa safirnim kivetama koje najčešće imaju relativno nizak prag optičkog oštećenja. Osim toga, prolaskom kroz safirne prozore može ultrakratki puls može promijeniti polarizaciju zbog efekta dvoloma (*birefringence*). S druge strane obične spektroskopske staklene ćelije ne podržavaju grijanje na temperature na kojima je koncentracija para dostatna za nelinearne efekte trećega reda. Stoga je najprije trebalo izraditi izvor alkalijskih para visoke koncentracije - toplovodnu peć (*heat-pipe oven*). Za uzorak je izabran natrij iz nekoliko razloga. Prvo, natrij je najlakše smjestiti u peć jer je manje reaktivan s okolinom u odnosu na ostale alkalije. Drugo, u područje operativnih valnih duljina femtosekundnog pojačala (*Spectra Physics Spitfire*) idealno ulazi singletni satelit na rubu $A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ molekulske vrpce natrija smješten na 804 nm. Ideja je dakle pobuditi titraju između dostupnih vibracijskih stanja molekula natrija u pobuđenom stanju. Treće, spektar lasera pokriva nekoliko višefotonskih rezonancija atomskih nivoa natrija.



Slika 5.2: Eksperimentalna shema četverovalnog miješanja u gustim parama natrija. Fazno ugađanje ostvareno je korištenjem BOXCARS geometrije preklapanja zraka. Detekcija je vršena pomoću spektrometra, fotodiode ili fotomultiplikatora.

Detaljni opis femtosekundnog laserskog pojačala *Spectra Physics Spitfire* nalazi se u diplomskom radu [99]. Ukratko, pulsevi iz femtosekundnog oscilatora, trajanja oko 100 fs, pojačavaju se u laserskom rezonatoru s titanom dopiranim safirnim kristalom uz pomoć nanosekundne laserske pumpe. Pri tome se energija pulseva povećava za oko 10^5 puta (s 10 nJ na oko 1 mJ) dok se trajanje pulseva bitnije ne mijenja (≈ 100 fs). Kako pri pojačavanju ne bi došlo do optičkog oštećenja kristala pulsevi se prije ulaska u rezonator razvuku u vremenu, te se nakon pojačavanja ponovno skupe. Stupanj kompresije nakon pojačavanja a istovremeno i količina cvrkuta koji puls posjeduje mogu se podešavati jer pojačalo radi u određenom rasponu valnih duljina ulaznih femtosekundnih pulseva za koje je nemoguće imati jedinstvenu konfiguraciju kompresora. Osim toga, u pojedinim primjenama je poželjno uvesti određenu količinu negativnog linearnog cvrkuta kako bi puls u disperzivnom mediju bio što kraći (djelomično se poništava utjecaj medija na oblik pulsa) [10]. Radno područje valnih duljina femtosekundnog

pojačala je u rasponu od 760 do 850 nm, nešto uže od radnog područja femtosekundnog oscilatora *Spectra Physics Tsunami*. Spektar Fourier ograničenog pulsa trajanja 100 fs širine je oko 7 nm (FWHM) što odgovara energetskej razlici od 120 cm^{-1} . Laserski snop vlakla pulseva međusobno ramaknutih u vremenu 1 ms, što odgovara repeticiji od 1 kHz razdijeli se u tri snopa jednakih intenziteta koristeći optiku koja minimalno utječe na vremensko širenje pulseva. Optički put dva snopa (pulsa) moguće je podešavati pomoću dva translatora čiji je hod oko 5 cm, a optički put trećeg pomoću motoriziranih „sanjki” čiji je hod 20 cm uz minimalni korak od 300 nm. Ukupno je, u idealnom slučaju, moguće ostvariti razmak između pulseva od oko 1.3 ns. Pomoću BOXCARS geometrije prostornog preklapanja zraka u mediju (vidjeti sliku 5.2) ispunjen je uvjet faznog usklađivanja (zakon sačuvanja impulsa) te je istovremeno olakšano mjerenje DFWM signala jer je prostorno izoliran od ostalih zraka. Zrake su fokusirane u centar peći pomoću sfernog zrcala promjera 5 cm i žarišne duljine $f = 50 \text{ cm}$ (radijus zakrivljenosti $R = 1 \text{ m}$). Velika pažnja posvećena je usmjeravanju zraka koje na sferno zrcalo moraju doći međusobno paralelno. Paralelnost je provjerena mjerenjem udaljenosti od zrcala do presjecišta zraka prije postavljanja toplovodne peći. Toplovodna peć spojena je na vakuumski sistem uz mogućnost punjenja arogonom ili helijem čija je uloga *buffer* plina koji sprječava dolazak alkalijskih čestica do prozora na krajevima cijevi toplovodne peći. Također,

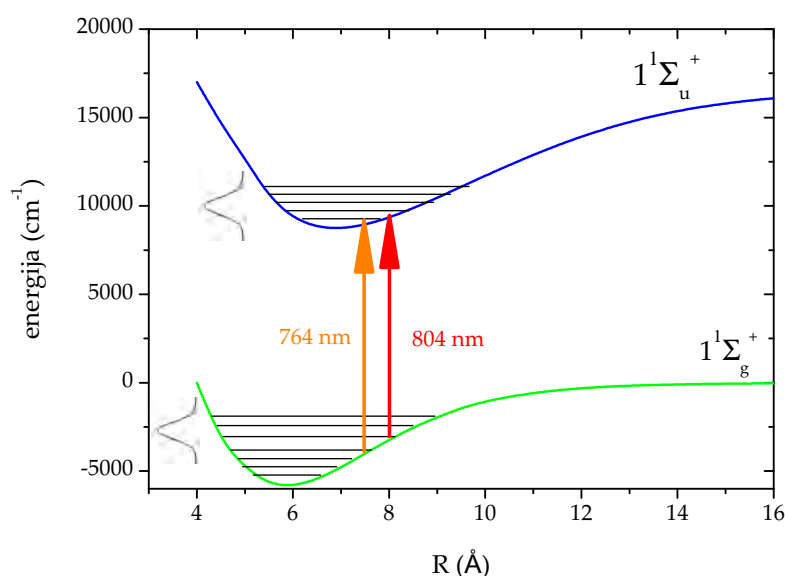


Slika 5.3: Stvaranje signala u nekolinearnom četverovalnom miješanju.

u uvjetima kada peć radi u tzv. *heat-pipe* modu izjednačava se tlak *buffer* plina i natrija te se stvara uniformni stupac alkalijske pare konstantne koncentracije. Električni grijač postavljen je u centralnom području cijevi peći. U blizini prozora peći sustav je hlađenja pomoću me-

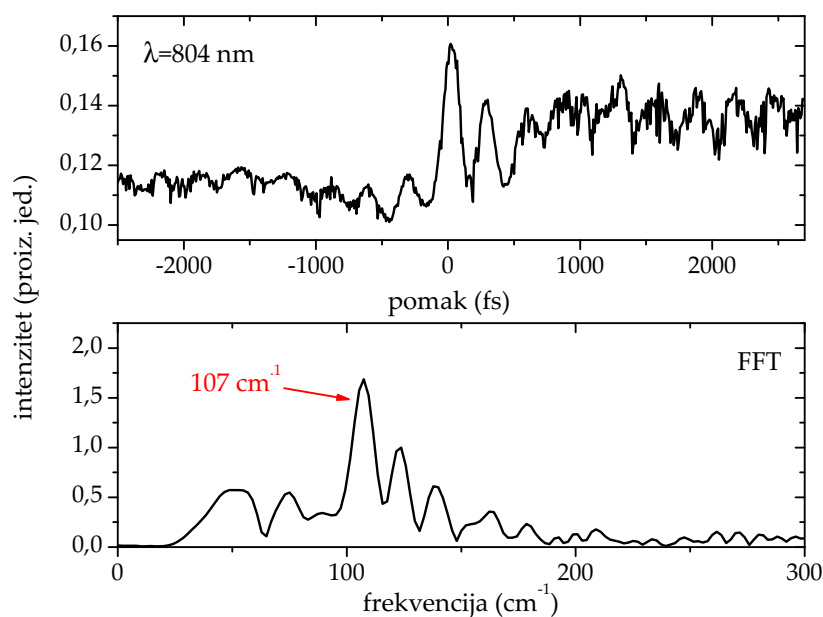
talnih blokova kroz koje neprekidno cirkulira hladna voda. U području hladne zone dolazi do kondenzacije alkalijskih para te se tekući alkaliji kapilarnim silama preko mrežice kojom je obložena unutrašnjost centralnog dijela peći vraćaju u područje grijanja gdje ponovno isparavaju. Toplovodna peć osigurava relativno uniformni stupac para dobro definiranih dimenzija. Preklapanje triju zraka u centru peći bitno je odredilo njezine dimenzije. Cijev peći širine 35 mm i duljine 50 cm značila je da se ne može očekivati uniformna raspodjela gustoće para u poprečnom presjeku te su pri vrlo visokim temperaturama u centru peći bila jasno vidljiva vrtložnja. Čini se da taj nedostatak ipak nije presudno utjecao na dobivene rezultate. Kako bi toplovodna peć dulje vrijeme radila bez taloženja nečistoća na rubovima tople zone tlak *buffer* plina uvijek je bio nešto veći od tlaka para natrija. Tlak mješavine plinova jednak je u cijelom volumenu peći što znači da i toploj zoni imamo mješavinu plinova a ne samo alkalijski plin te to treba uzeti u obzir prilikom eventualnih razmatranja sudarnih efekata. Detekcija DFWM signala ostvarena je korištenjem više različitih detektora. Osim signala na valnoj duljini pobude, za laserske pulseve podešene na centralnu valnu duljinu $\lambda_c = 804$ nm nakon peći umjesto 4 zrake imamo čak 16 prepoznatljivih signala, od kojih su oni koji se nalaze na stranicama kvadra vidljivi na fotografiji prikazanoj na slici 5.9. Iz energetskog dijagrama natrija, slika 5.10, vidljivo je da je laserski puls na valnoj duljini od 804 nm točno trofotonski rezonantan s 6P stanjem natrija te da dodatni signali potječu od svih mogućih kombinacija valnih vektora ulaznih polja koja su trofotonski rezonantna. Fazno usklađivanje i ovdje uvjetuje usmjerenost signala. Mjerenjem valnih duljina dodatnih signala potvrđeno je da se radi upravo o valnoj duljini od 268 nm. Osim rezonantnog nivoa, spontanom emisijom preko dozvoljenih prijelaza ili sudarnim procesima, naseljavaju se i niža stanja što je također potvrđeno pojavljivanjem signala na valnim duljinama od 285 i 330 nm (5p i 4p stanja). Detaljnije će trofotonski rezonantni procesi biti opisani u potpoglavlju 5.3. Proučavanje generiranog UV zračenja zahtijevalo je zamjenu izlaznog prozora peći, izrađenog od običnog BK7 stakla, s kvarcnim prozorom koji dobro propušta UV zračenje. Kako bi se moglo zasebno promatrati vremenski razvoj (tranzijent) signala na pojedinim valnim duljinama signal detektiran pomoću spektrometra (*Ocean Optics HR4000*) mjernog područja od 200 do 1100 nm s rezolucijom od oko 0.6 nm. Za mjerenje signala manjeg intenziteta (za oslabljene ulazne zrake) korišten je fotomultiplikator ili ponekad fotodioda ispred kojih je postavljena kvarcna prizma te bi se prije mjerenja pomoću spektrometra provjerila valna duljina koja upada na detektor. Mjereni signal sakupljan je, pomoću digitalnog osciloskopa, u vremenskom prozoru u kojem DFWM signal ima nezanemariv intenzitet (slično

mjerenjima s *boxcar* usrednjivačem). Izvršeno je i usrednjavanje kako bi se dodatno smanjio šum koji nastaje prvenstveno zbog neujednačenog intenziteta pojedinih pulseva. Provjera vremenskog i prostornog preklapanja zraka vršila se preusmjeravanjem pomoću ravnog zrcala na nelinearni BBO kristal koji je smješten u fokus sfernog zrcala. Osim provjere preklapanja, mjerenjima autokorelacijskog signala bilo kojih dviju od tri laserske zrake lako se moglo provjeriti vremensko trajanje pulsa za određeni stupanj kompresije u pojačalu.



Slika 5.4: Potencijalne krivulje natrijevih dimera.

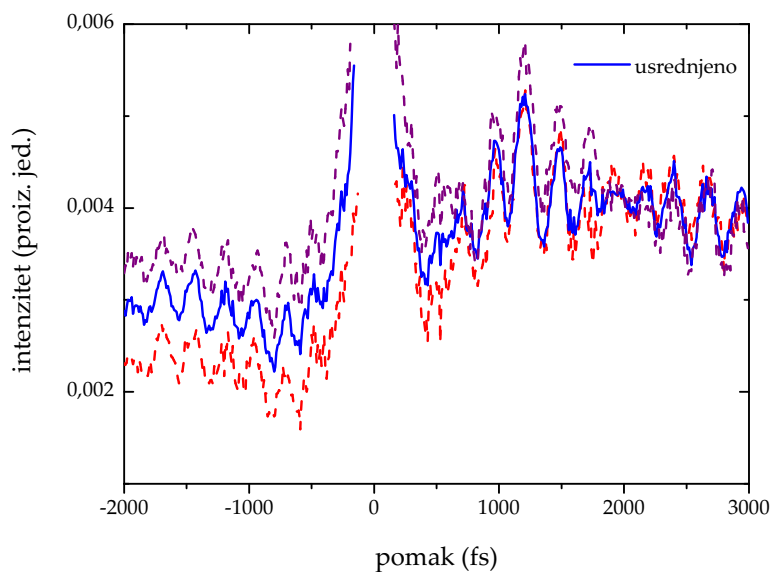
Na slici 5.5 prikazane su titraji u tranzijentu DFWM signala izmjerene uz pobudu na 804 nm. Tranzijent je snimljen za negativne i pozitivne razlike u vremenima dolaska pulseva (dva od tri pulsa dolaze istovremeno). U trenutku $\tau = 0$ u tranzijentu se pojavljuje tzv. koherentni vrh (*coherence spike*) zbog istovremenog međudjelovanja sva tri pulsa. Relevantne natrijeve potencijalne krivulje s označenim položajem pobude laserskim pulsevima prikazane su na slici 5.4. Kako je prosječni razmak vibracijskih nivoa osnovnog $X^1\Sigma_g^+$ stanja natrija oko 159 cm^{-1} što je nešto više od poluširine lasera te je teško očekivati efikasno istovremeno pobuđivanje više vibracijskih nivoa (valnog paketa) što bi uzrokovalo titraje u tranzijentu DFWM signala povezane s razlikama u energijama pobuđenih nivoa. Titraji perioda približno 310 fs FFT analizom otkrivaju da se najvjerojatnije radi o titrajima valnog paketa pobuđenog $A^1\Sigma_u^+$ stanja gdje je prosječni razmak vibracijskih nivoa oko 107 cm^{-1} [100]. Slika 5.6 prikazuje titraje u tranzijentu izmjerene uz valnu duljinu lasera pomaknutu maksimalno u područje manjih val-



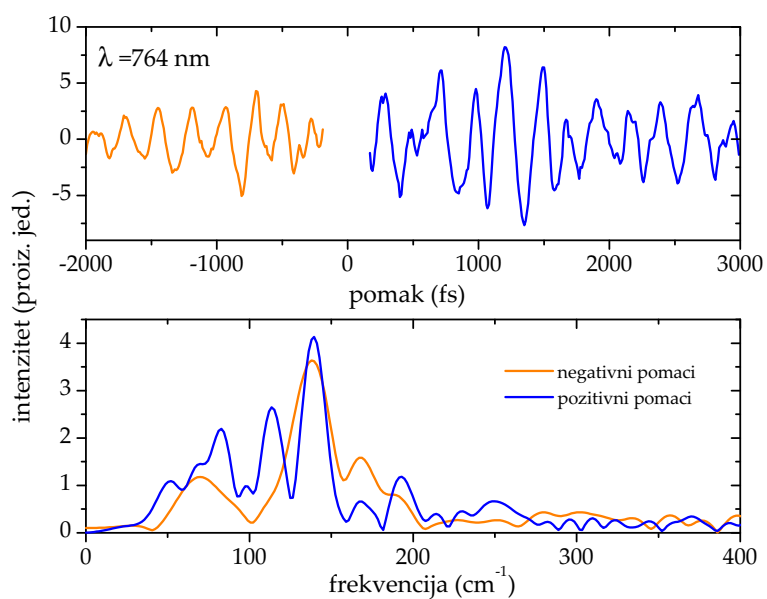
Slika 5.5: Titraji valnog paketa pobuđenih vibracijskih stanja $A^1\Sigma_u^+$ nivoa perioda oko 310 fs.
 $T_{\text{Na}} = 410^\circ\text{C}$ ($N_{\text{Na}} = 6.9 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, $N_{\text{Na}_2} = 1.6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$)

nih duljina, na $\lambda_c = 764 \text{ nm}$. Nakon što mjerenja s pobudom na 804 nm nisu rezultirala lijepim titrajima u tranzijentu cilj je bio probati se pomaknuti što je moguće bliže maksimumu $A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ molekulske vrpce natrija te tako povećati efikasnost induciranih valnih paketa valnih funkcija pobuđenih vibracijskih stanja. Dobiveni su titraji perioda od oko 250 fs koje odgovaraju razlikama energija od 140 cm^{-1} (slika 5.7), što je manje od razlika energija u osnovnom stanju, a više od razlika energija u pobuđenom stanju. Pokušaj kvalitetnih istraživanja položaja pojedinih vibracijskih nivoa u osnovnom i pobuđenim stanju natrijevih dimera nije dao očekivane rezultate. Zbog ograničenog raspona raspoloživih valnih duljina koji se ne poklapa s područjem maksimuma apsorpcije $A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ molekulske vrpce, kao i zbog nedovoljne kratkoće femtosekundnih pulseva kojima se ne može istovremeno pobuditi veći broj vibracijskih nivoa izmjereni signal nema jasan kontrast te se FFT analizom ne mogu dobiti vrlo precizni i pouzdani rezultati.

Shema koja opisuje međudjelovanje pulseva i medija prikazana na slici 5.1 nije dovoljna da bi se u potpunosti shvatili svi mogući procesi do kojih dolazi četverovalnim miješanjem. Stoga je prikladnije izraditi dvostrane Feynmanove dijagrame koji opisuju mijenjanje operatora gustoće (izraz 2.3.17) zbog međudjelovanja atoma s laserskim pulsevima. Na slici 5.8 prikazani su doprinosi signalu četverovalnog miješanja za slučaj kada jedan od pulseva dolazi

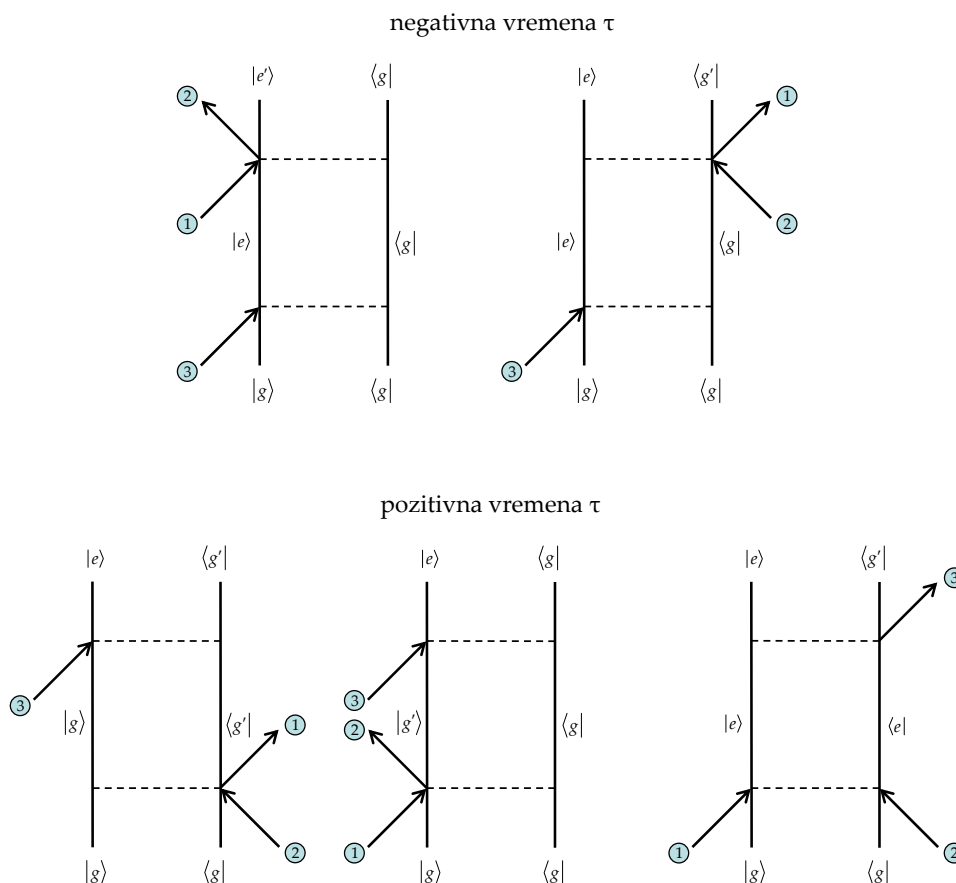


Slika 5.6: Titraji tranzijenta DFWM signala perioda oko 250 fs na valnoj duljini lasera uočene pobudom pulsevima centralne valne duljine $\lambda_c = 764$ nm. Titraji su povezani s koherentno pobuđenim gibanjem vibracijskog valnog paketa natrijevih dimera. $T_{\text{Na}} = 435^\circ\text{C}$ ($N_{\text{Na}} = 1.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $N_{\text{Na}_2} = 3.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$), $P(\text{He})=25$ Torr.



Slika 5.7: FFT analiza snimljenog tranzijenta na 764 nm.

prije ostalih (negativna vremena), i za slučaj kada isti puls dolazi nakon ostalih (pozitivna vremena). Tijek vremena na dijagramima je definiran od donjeg kraja prema gornjem. Svaki dijagram se sastoji od dvije vertikalne linije koje predstavljaju vremenski razvoj $|\psi\rangle$ odnosno $\langle\psi|$ valne funkcije. Nelinearna susceptibilnost ovisi o očekivanoj vrijednosti induciranoeg dipolnog momenta koji se računa preko traga matrice umnoška perturbiranog operatora gustoće i operatora dipolnog momenta. U Feynmanovim dijagramima ta operacija, koja odgovara izračunu mjerenog signala četverovalnog miješanja određena je operatorom gustoće nakon međudjelovanja atoma sa sva tri pulsa. Strelice označene brojevima 1 do 3 označavaju pojedine pulseve. Smjer strelica određen je BOXCARS geometrijom odnosno uvjetima sačuvanja energije i impulsa u procesima četverovalnog miješanja. To znači da su dvije strelice međusobno paralelne dok je preostala suprotno orijentirana, odnosno predstavlja kompleksno-konjugirano električno polje. Na taj je način zadovoljena RWA aproksimacija jer su isključeni svi brzo oscilirajući članovi. Ukoliko je strelica usmjerena prema vertikalnoj liniji znači da puls dovodi foton dok u suprotnom puls odvodi foton. Strelica kojom se označava mjereni signal obično se ne stavlja na dijagrame jer je njen položaj u vremenu nije točno određen. Zna se samo da signal mjerimo nakon međudjelovanja atoma sa svim pulsevima. Zbog BOXCARS geometrije, strelica koja označava DFWM signal ima smjer identičan pulsu br. 2, dakle, označava spuštanje *bra* ili *ket* vektora u osnovno stanje. Zbog toga se ona u dijagramima uvijek nalazi na lijevoj strani, iznad gornje crtkane linije koja označava trenutak u kojem zadnji nailazeći puls međudjeluje s atomom. Crtkana stanja označavaju stanja atoma nakon međudjelovanja s poljem. Feynmanove dijagrame crtamo na slijedeći način: odredimo točan vremenski slijed pulseva te zatim posložimo strelice vodeći računa o RWA aproksimaciji. Na primjer, za negativna vremena imamo slijed 3, 2&1. Budući da je sistem u osnovnom stanju prije međudjelovanja s poljem 3 jedina mogućnost je dovođenje fotona sistemu, što nužno znači međudjelovanje s *ket* stranom. Ako nakon vremena τ djelujemo na *ket* stranu moramo spustiti stanje, dakle sa sistemom prvo međudjeluje polje 2 pa potom 3, iako ona dolaze istodobno. Drugi dijagram dobiven je djelovanjem pulseva 2&1 na *bra* stranu nakon vremena τ . Budući da smo na *bra* strani, uloga pulseva 2 i 1 je izmijenjena pa puls 2 dovodi, a puls 1 odvodi foton. Oba dijagrama za negativna vremena pokazuju da se sistem, u vremenu u kojem se slobodno razvija, nalazi u nedijagonalnim elementima, koherencijama. Tranzijentni signal četverovalnog miješanja ovisi o tim nedijagonalnim elementima matrice gustoće stanja na način da će za različite vremenske pomake τ signal biti moduliran eksponencijalnom funkcijom koja trne s karakterističnim vre-



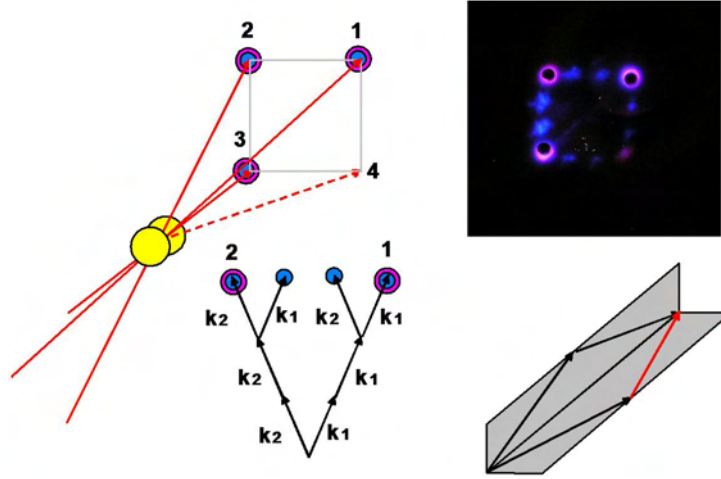
Slika 5.8: Opis međudjelovanja atoma i laserskih polja u četverovalnom miješanju pomoću dvostranih Feynmanovih dijagrama.

menom T_2 određenim vremenom života koherencija. Na dijagramima za pozitivne vremenske pomake τ matrica gustoće stanja u vremenu u kojem se odvija međudjelovanje s pulsevima određena je dijagonalnim elementima te će modulacije u pozitivnim vremenskim pomacima ovisiti o vremenima života osnovnog (lijevi i srednji dijagram) i pobuđenih stanja (desni dijagram) određenima karakterističnim vremenom T_1 . U pozitivnim vremenima uočava se dinamika osnovnog i pobuđenog stanja, dok se, prema Condonovoj aproksimaciji koja vrijedi za rezonantnu pobudu, u negativnim vremenima dominantno uočava dinamika pobuđenog stanja [101]. Zbog toga se u mjerenjima koja se provode za negativna i pozitivna vremena u FFT rezultatu očekuju potpisi razmaka vibracijskih nivoa osnovnog i pobuđenog elektronskog stanja.

5.3. Trofotonska pobuđenja atoma natrija

Toplovodne peći često se koriste za pripremanje medija koji u nelinearnom međudjelovanju sa snažnim laserskim poljima može proizvesti više harmonike frekvencija ulaznog polja. Četverovalno miješanje jedan je od mogućih procesa stvaranja viših harmonika. Za postizanje visoke efikasnosti konverzije valnih duljina presudno je dobro fazno usklađivanje kako bi fundamentalni i novonastali kolinearni viši harmonik putovali sredstvom istim faznim brzinama. Dvokomponentni sustavi gdje su alkalijske pare pomiješane s inertnim plinom pogodni su za generaciju viših harmonika jer višefotonske rezonancije alkalijskih para daju mješavini veliku nelinearnu susceptibilnost dok se reguliranjem tlaka inertnog plina vrši fazno usklađivanje [102, 103]. U slučaju kada se dvije laserske zrake susreću pod kutem različitim od nule do zračenja trećeg harmonika dolazi u dva pravca koji leže između upadnih snopova – zračenje je s kutno ugođenom fazom i pojačano u odnosu na zračenje emitirano u upadnim pravcima. Ovo relativno pojačanje kutno ugođenih zraka prema kolinearnom zračenju može pod određenim uvjetima biti i posljedica interferencije pri trofotonski rezonantnoj pobudi atomskog prijelaza. Na slici 5.9 prikazane su mogući smjerovi nastajanja trećeg harmonika kod faznog ugađanja dviju zraka u BOXCARS geometriji. Dodavanjem treće i četvrte zrake koja je rezultat procesa četverovalnog miješanja nastaju novi fazno ugođeni signali na frekvenciji trećeg harmonika unutar kvadra određenog zrakama na fundamentalnoj valnoj duljini. Fazno ugađanje pomoću inertnih plinova u tim pravcima nije moguće. Upravo zbog činjenice da imamo fazno ugađanje koje odgovara zbrajanju valnih vektora koji odgovaraju fundamentalnim (ω_1), a ne frekvencijama trećeg harmonika možemo u daljnjim razmatranjima isključiti mogućnost da pri fokusiranju upadnih laserskih snopova prije točke preklapanja dolazi do znatnijeg stvaranja zračenja na frekvencijama $3\omega_1$. U tom bi slučaju imali izražene plave točke samo u vrhovima kvadra, dok opažanja pokazuju da su točke u vrhovima kvadra zapravo nešto manje intenzivne od ostalih točaka.

Kada je trofotonski prijelaz s osnovnog na pobuđeni nivo ujedno i dipolno dozvoljeni (jednofotonski) prijelaz, dolazi do interferencije polja koje je nastalo miješanjem fundamentalnog polja (*sum-frequency field*) i rezonantnog (jednofotonskog) polja. Destruktivna interferencija dovodi do slabljenja rezonantnog zračenja [104]. U fazno ugođenim pravcima u negativnim vremenima nema polja upadnog zračenja pa tamo niti ne dolazi do destruktivne interferencije. U eksperimentima višefotonske ionizacije u frekventnoj domeni uočeno je odsustvo pojačanja



Slika 5.9: Razne mogućnosti faznog usklađivanja za slučaj trofotonske rezonancije u parama natrija.

signala zbog trofotonske rezonancije. Rezultantno transversalno polje \mathcal{F} koje tjera koherentnu polarizaciju na prijelazu između g i e stanja preko jednofotonskog i trofotonskih prijelaza dano je s:

$$\langle e | ex\mathcal{F}(3\omega_1) | g \rangle = \left(\sum_{mn} \frac{[ex_{em}E(\omega_1)][ex_{mn}E(\omega_1)][ex_{ng}E(\omega_1)]}{\hbar(\omega_{mg} - 2\omega_1)\hbar(\omega_{ng} - \omega_1)} \right) + ex_{eg}E(\omega_3), \quad (5.3.1)$$

gdje je ex_{mn} dipolni matricni element prijelaza sa g na m , $\omega_{jg} = \omega_j - \omega_g - i2\gamma_{jg}/2$ i $\omega_3 = 3\omega_1$. $2\gamma_{jg}/2$ je širina linije jg prijelaza. Tri ulazna pulsa na frekvenciji ω_1 stvaraju nelinearnu polarizaciju:

$$E(\omega_1) = \frac{1}{2}E_t(\omega_1)e^{i(k_1z - \omega_1t)} \longrightarrow P^{\text{NLS}}(3\omega_1) = \frac{1}{2}P_t^{\text{NLS}}(3\omega_1)e^{i(3k_1z - 3\omega_1t)} \quad (5.3.2)$$

koja preko valne jednadžbe:

$$\nabla^2 E(\omega_3) + \epsilon_3 \left(\frac{\omega_3}{c}\right)^2 E(\omega_3) = -4\pi \left(\frac{\omega_3}{c}\right)^2 \frac{P_t^{\text{NLS}}(3\omega_1)}{2} e^{i(3k_1z - 3\omega_1t)} \quad (5.3.3)$$

postaje izvor novonastalog polja na rezonantnoj frekvenciji. P^{NLS} označava efektivnu nelinearnu polarizaciju izvora (*nonlinear source term*) [14, 105] izmijenjenu zbog uključivanja efekta mikroskopskog lokalnog električnog polja:

$$P^{\text{NLS}} = \frac{\epsilon + 2}{3} P^{\text{NL}}, \quad (5.3.4)$$

gdje je P^{NL} nelinearna polarizacija inducirana makroskopskim poljem, a ϵ je linearna dielektrična konstanta. Rješenje valne jednadžbe ima oblik:

$$E(\omega_3) = \frac{E_t(\omega_3)}{2} e^{i(3k_1z - 3\omega_1t)} + \frac{A_t}{2} e^{i(k_3z - \omega_3t)}, \quad (5.3.5)$$

gdje je $k_i = \sqrt{\epsilon_i}\omega_i/c$. Prvi dio rješenja je partikularno rješenje valne jednadžbe s amplitudom $E_t(\omega_3)$ a drugi dio je rješenje homogene valne jednadžbe amplitude A_t . U optički debelom sredstvu homogeno rješenje brzo trne te preživljava samo tjerani val:

$$E_t(\omega_3) = \frac{4\pi P_t^{\text{NLS}}(3\omega_1)}{\epsilon_1 - \epsilon_3}. \quad (5.3.6)$$

Kada dominantni doprinos nelinearnoj susceptibilnosti $\chi^{(3)}(3\omega_1)$ dolazi od rezonantnog prijelaza sa g na e efektivna nelinearna polarizacija je dana sa:

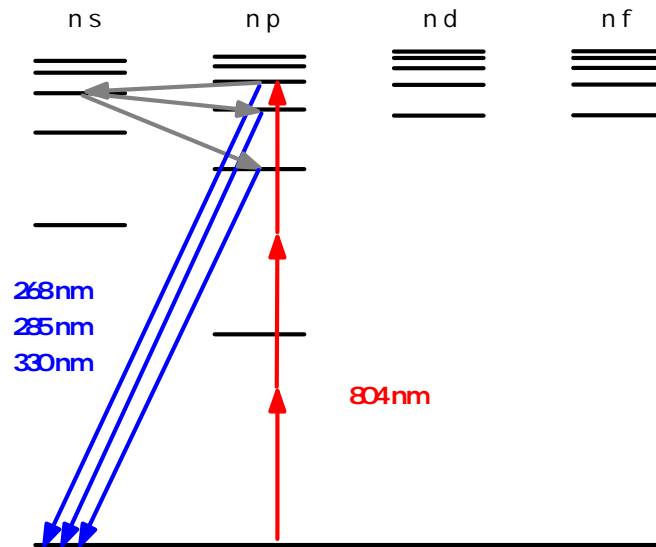
$$P_t^{\text{NLS}}(3\omega_1) = \frac{\chi^{(3)}(3\omega_1)}{4} E_t^3(\omega_1) = \frac{Ne^4}{4\hbar^3} \left(\sum_{mn} \frac{x_{ge}x_{gm}x_{mn}x_{ng}}{(\omega_{eg} - 3\omega_1)(\omega_{mg} - 2\omega_1)(\omega_{ng} - \omega_1)} \right) E_t^3(\omega_1), \quad (5.3.7)$$

gdje je N broj atoma. Ako dominantni doprinos linearnoj susceptibilnosti također dolazi od rezonantnog prijelaza sa g na e slijedi:

$$\epsilon_1 - \epsilon_3 \cong -\frac{4\pi Ne^2 |x_{eg}|^2}{\hbar(\omega_{eg} - \omega_3)}. \quad (5.3.8)$$

Uvrštavanjem izraza 5.3.7 i 5.3.8 u 5.3.6 postaje jasno da polje $E_t(\omega_3)$ ima suprotan predznak od polja $E_t^3(\omega_1)$. Ako se dobiveni izraz za $E_t(\omega_3)$ uvrsti u izraz 5.3.1, koji opisuje stvaranje polarizacije na prijelazu između i i e stanja, postaje očita potpuna destruktivna interferencija između amplituda polja koje je nastalo miješanjem fundamentalnog polja (*sum-frequency field*) i rezonantnog (jednofotonskog) polja. Destruktivna interferencija sprječava prijenos populacije s osnovnog na pobuđeni nivo, iako zračenje na frekvencijama ω_1 i na ω_3 postoje [104].

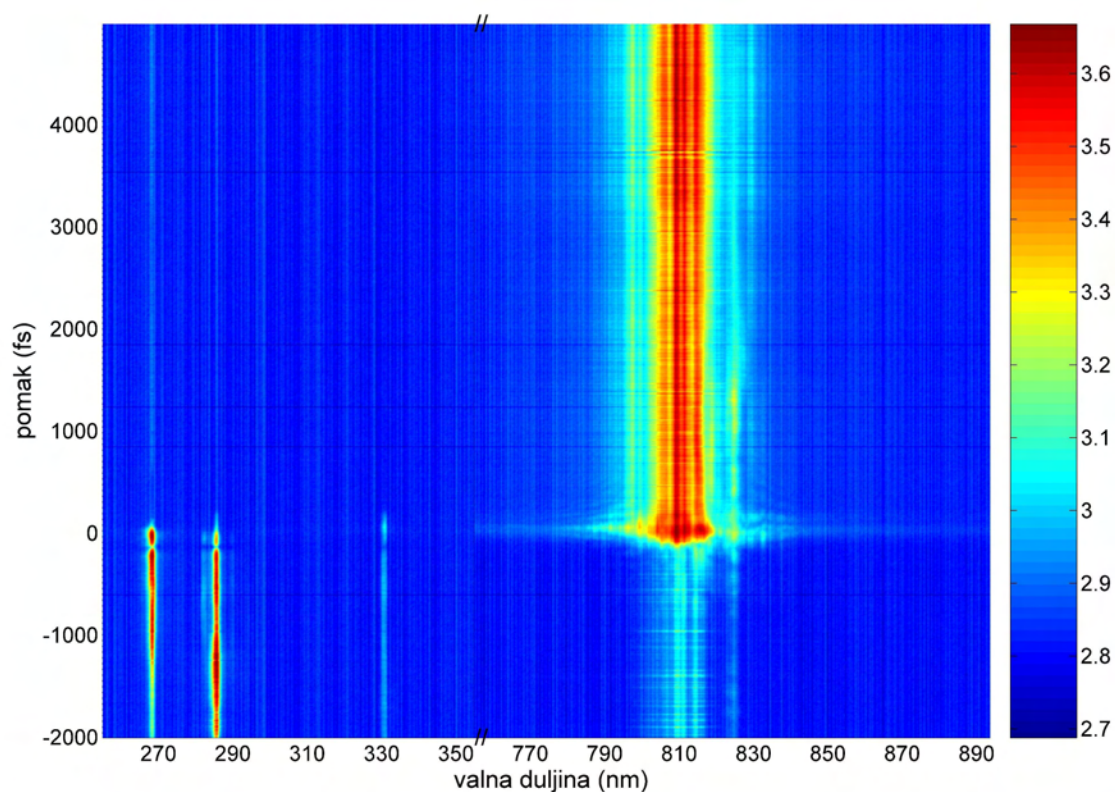
Stvaranje trećeg harmonika u uvjetima kutno ugođene faze promatrano je u atomima natrija gdje je fundamentalno fs pulsno zračenje ugođeno na 804 nm što dovodi do trofotonskog pobuđenja 6p nivoa i stvaranje trećeg harmonika na 268 nm. Energetski nivoi natrija prikazani su u Grotrianovom dijagramu, slika 5.10, gdje je naznačena trofotonska rezonancija za zračenje valne duljine 804 nm. U mjerenom spektru mogući su, i opažaju se, još i signali zbog kaskadno naseljenih nižih 5p i 4p energetskih nivoa. Valne duljine koje odgovaraju prijelazima između tih nivoa i osnovnog 3s nivoa su redom 285 i 330 nm. U vremenu međudjelovanja triju pulseva dolazi do transfera populacije što objašnjava prisutnost kaskadno naseljenih nivoa natrija. Nakon međudjelovanja populacija je ponovno u osnovnom stanju ali su u prostoru međudjelovanja svi atomi u koherentnoj superpoziciji osnovnog i pobuđenog stanja koju mjeri DFWM (ovdje se zapravo radi o miješanju dest valova) signal. Kako bi se istovremeno snimilo ponašanje tranzijenta na valnoj duljini pobudnog zračenja te eventualni signali na valnoj duljini trećeg harmonika nastalog u smjeru DFWM signala obavljena su mjerenja spektra tranzijenta



Slika 5.10: Grotrianov dijagram energetske strukture natrija.

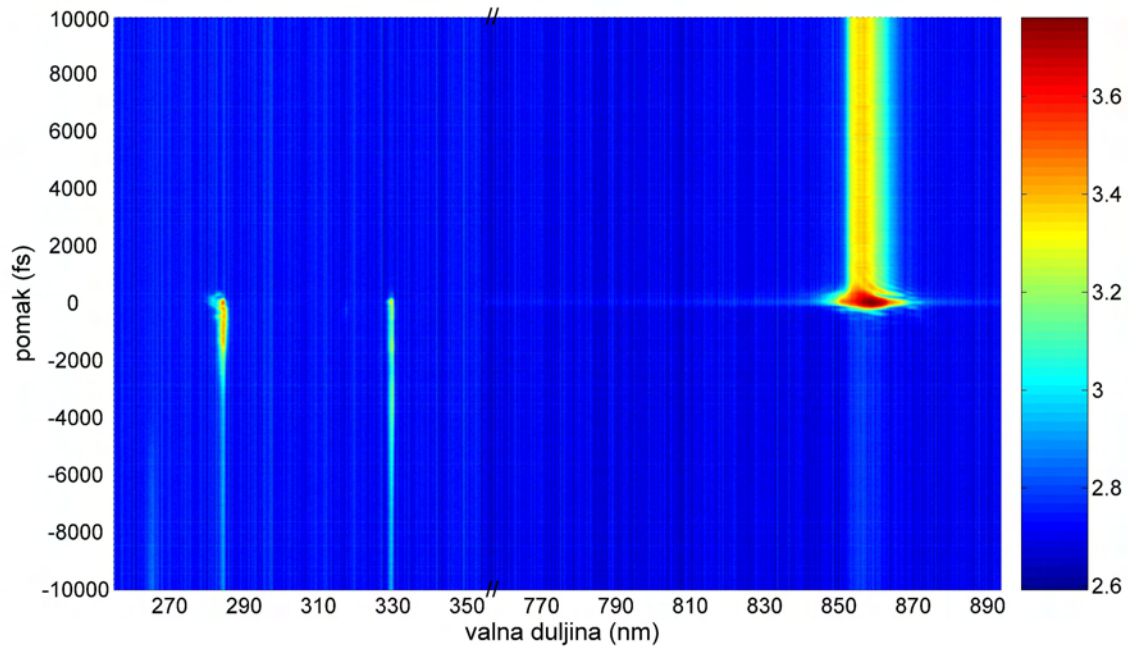
prikazana na slici 5.11. Spektralni sastav tranzijentnog signala pokazuje naglu promjenu oko vremena $\tau = 0$. U negativnim vremenima pojavljuju se linije koje odgovaraju trećem harmoniku i prijelazima s nižih p nivoa u osnovno stanje dok su u pozitivnim vremenima spektar sastoji isključivo od DFWM signala na fundamentalnoj frekvenciji. Titraji signala na 268 nm, opisani u slijedećem odlomku, ovdje nisu prisutni zbog nešto veće ulazne snage laserskih pulseva i relativno visoke koncentracije para natrija. Signal u UV području u negativnim vremenima posljedica je stvorene koherencije između osnovnog i pobuđenog stanja. Stoga je i vrijeme života signala određeno vremenom T_2 koje odgovara relaksaciji makroskopske polarizacije. U pozitivnom vremenu UV signala nema jer, zbog gore opisanog mehanizma, nema stvaranja populacije u pobuđenom stanju. DFWM signal u negativnim vremenima prema Feynmanovim dijagramima, slika 5.8, određen je dinamikom pobuđenog stanja. Budući da na 804 nm ne postoji rezonantno stanje, FWM signal je nula na 804 nm za negativna vremena. To je također vidljivo i na ranijim rezultatima. U pozitivnim vremenima signal je dosta izražen i manifestira dinamiku osnovnog stanja. Kada se proces promatra kao nerezonantan, nelinearnoj susceptibilnosti bitno doprinose i anti-RWA termovi te je izbor aktivnih Feynmanovih dijagrama dosta otežan. Može se pokazati da za odabrani vremenski slijed pulseva bitan doprinos opaženom DFWM signalu daju dijagrami za pozitivna vremena (još jedan razlog da signal

u negativnim vremenima bude slab) koji odražavaju dinamiku osnovnog stanja (lijevi i srednji



Slika 5.11: Tranzijenti različitih frekventnih komponenti u signalu četverovalnog miješanja snimljeni spektrometrom. Valna duljina femtosekundnih pulseva podešena je na $\lambda_c = 804$ nm. $P(\text{He})=25$ Torr, $T_{\text{Na}} = 435^\circ\text{C}$ ($N_{\text{Na}} = 1.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $N_{\text{Na}_2} = 3.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$). $P_{\text{ulaz}} = 10 \mu\text{J}$. Zbog isticanja slabijih signala prikazan je logaritam intenziteta.

na slici 5.8). Fizikalno se generirani signal objašnjava preko impulzivnog pobuđenja rotacijskih i vibracijskih nivoa osnovnog stanja molekula [101]. Treći harmonik u parama natrija moguće je, pomoću korištenog femtosekundnog pojačala, generirati i kada se valna duljina pulseva podesi na trofotonsku rezonanciju s 5p nivoom natrija čija je jednofotonska rezonantna valna duljina 285 nm. Naravno, moguće je trofotonski pobuditi i np nivoe iznad 6p nivoa jer se valna duljina femtosekundnih pulseva može spustiti do oko 760 nm. No činilo se da je bolje probati se maknuti dalje od A-X molekulske vrpce kako bi promatrani procesi imali što jednostavnije tumačenje. Slika 5.12 prikazuje spektrar tranzijentnog signala u negativnim i pozitivnim vremenima. U principu nema bitniji promjena u odnosu na pobudu sa 804 nm. Najbitnija razlika je u potpunom nestanku signala na 854 nm u negativnim vremenima. Na ovoj valnoj duljini pobuda je potpuno nerezonantna te se i ne očekuje pojavljivanje signala u negativnim vremenima.

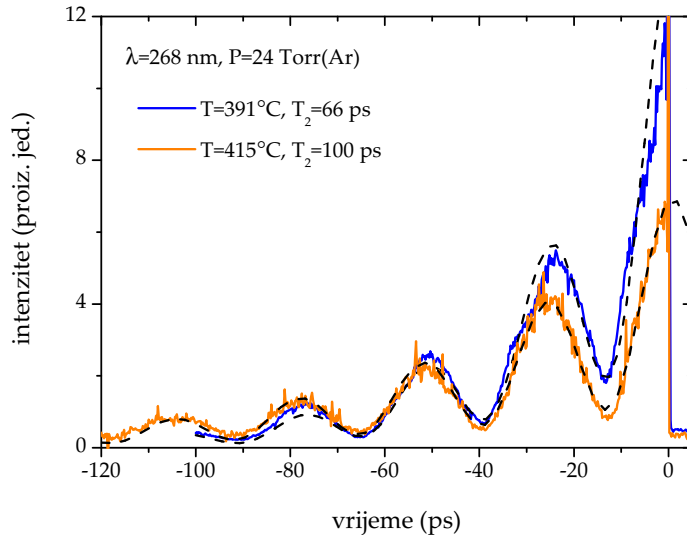


Slika 5.12: Tranzijenti različitih frekventnih komponenti u signalu četverovalnog miješanja snimljeni spektrometrom. Valna duljina femtosekundnih pulseva podešena je na $\lambda_c = 854$ nm. $P(\text{He})=25$ Torr, $T_{\text{Na}} = 420^\circ\text{C}$ ($N_{\text{Na}} = 8.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, $N_{\text{Na}_2} = 2.1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$). $P_{\text{ulaz}} = 5 \mu\text{J}$. Zbog isticanja slabijih signala prikazan je logaritam intenziteta.

Kako su 5p i 6p nivoi natrija zapravo, zbog vezanja spinskog i orbitalnog kutnog momenta, dubleti logično je očekivati pojavu kvantnih udara (*quantum beats*) zbog istovremenog pobuđivanja oba prijelaza sa spektralno širokim femtosekundnim pulsevima. Radi se o koherentnom i rezonantnom efektu pa je bitno dobro podesiti sve eksperimentalne parametre kako bi efekt bio što izraženiji. Već je spomenuto da femtosekundno pojačalo može stvarati pulseve s različitim linearnim cvrkutom. Mijenjanjem cvrkuta pulsa moguće je barem djelomično poništiti nelinearne propagacijske efekte širenja ultrakratkih pulseva. U prethodnom poglavlju spomenuta su mjerenja konusne emisije nastale zbog širenja femtosekundnih pulseva čija je valna duljina bila usklađena s Cs_2 X-B molekulsom vrpcom cezija. Na temelju izmjerenih podataka zaključeno je da je glavni mehanizam nastanka konusne emisije u tim uvjetima prostorna samomodulacija faze zbog induciranog nelinearnog indeksa loma u području izražene molekularne apsorpcije. U DFWM eksperimentu bitno je pripremiti puls određenog negativnog linearnog cvrkuta koji će području preklapanja pulseva u disperzivnom mediju imati najkraće moguće trajanje.

U literaturi se često umjesto izraza kvantni udari proces opisuje stvaranjem atomskog valnog paketa [106]. Kvantni udari zbog koherentnog pobuđenja rezonantnog dubleta natrija

pokazali su da period udara odgovara razmaku 3p nivoa fine strukture [107]. Pokazano je da pobuđeni titraji bitno ovise o koncentraciji natrija te su izmjerena karakteristična vremena relaksacija naseljenosti (T_1) i koherencija (T_2). U režimu višefotonskih pobuđenja kvantnih udara do sada nisu opaženi titraji u slučaju trofotonske pobude. Poznata mjerenja titraja kvantnih udara kroz razvoj koherentnog UV zračenja temeljena su na dvofotonskoj pobudi atoma rubidija i kalija [106]. U spektralnoj analizi vremenskog razvoja UV emisije demonstrirana je modulacija valnog paketa na THz frekvencijama povezanim s razlikama energija između ns i np stanja atoma. Gornja vremenska granica opažene UV emisije bila je 300 ps. O. U dvofotonskim eksperimentima opaženi su isključivo prijelazi koji zadovoljavaju izborno pravilo $\Delta l=0, 2$ u rubidiju i kaliju.

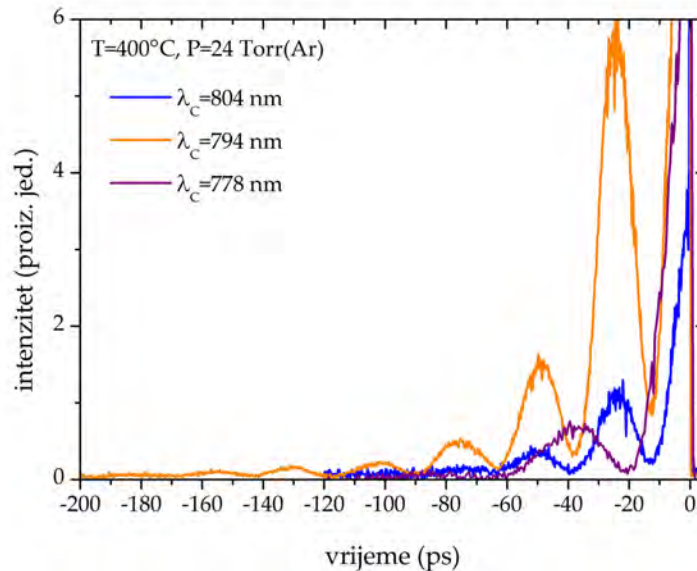


Slika 5.13: Kvantni udari na 268 nm perioda 25 ps zbog trofotonskog pobuđenja 6p nivoa za dvije različite koncentracije para natrija. $N_{\text{Na}}(391^\circ\text{C})=4.2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, $N_{\text{Ar}}=7.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. $P_{\text{ulaz}}=2 \mu\text{J}$.

Na slici 5.13 prikazani su kvantni udari zbog trofotonske pobude pulsevima podešenima na $\lambda_c = 804 \text{ nm}$ za dvije različite koncentracije para natrija. Valna duljina tranzijenta snimljena pomoću fotomultiplikatora postavljenoga nakon kvarcne prizme kojom su prostorno razložene različite spektralne komponente DFWM signala odgovarala je 268 nm. Prikazani tranzijenti za dvije različite koncentracije natrija prilagođeni su funkciji koja opisuje smanjivanje titraja kvantnih udara zbog relaksacije koherencija oblika:

$$I_{\text{DFWM}}(\tau) = \sum_J A_J e^{-4\pi\Gamma_J \tau} + 2 \sum_J A_J A_{J'} e^{-2\pi(\Gamma_J + \Gamma_{J'})\tau} \cos \left[\frac{(E_J - E_{J'})\tau}{\hbar} \right], \quad (5.3.9)$$

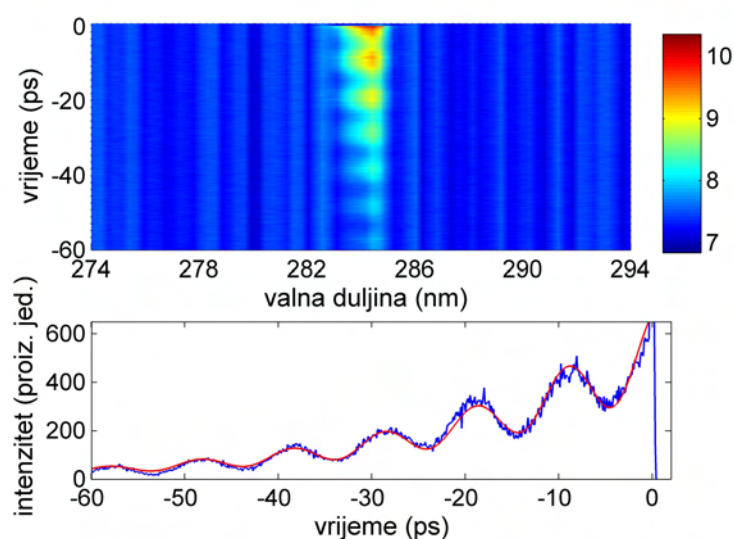
gdje je J ukupni angularni moment nivoa, A_J težinski koeficijenti koji odgovaraju relativnoj naseljenosti pojedinih nivoa, Γ_J širina linija i E_J energije pobuđenih nivoa [108]. Širina linija Γ_J povezana je s vremenom života koherencija preko relacije $T_2(J)^{-1} = 2\pi\Gamma_J$. Razlika energija zbog fine strukture 6p nivoa natrija iznosi $\Delta E = 1.3 \text{ cm}^{-1}$ [109] što odgovara izmjerenim titrajima perioda 25 ps. Iz prilagodbe funkcije 5.3.9 mjerenim titrajima dobiveno je srednje vrijeme (dva mjerenja) života koherencija koje iznosi $T_2 = 83 \text{ ps}$. Gornja granica vremena života koherencija određena je relacijom $T_2 = 2T_1$. Vrijeme života 6p nivoa natrija iznosi $5.5 \mu\text{s}$ [109], pa maksimalno vrijeme života koherencija iznosi $11 \mu\text{s}$. Zbog elastičnih sudara između atoma natrija, i atoma natrija s atomima plemenitog plina vrijeme života koherencija je puno kraće te se može procjeniti iz poznatih koncentracija i sudarnih udarnih presjeka za navedene sudare [110] korištenjem izraza 2.3.43 i 2.3.44. Koncentracija argona izračunata je na temelju jednadžbe idealnog plina. Kod viših np stanja alkalija oscilatorna jakost prijelaza kontinuirano se smanjuje pa je širenje linija glavnog niza međusobnim sudarima atoma sve manje. S druge strane, širenje linija zbog sudara s atomima plemenitog plina veće je kod viših članova glavnog niza i ima maksimum određen koncentracijom atoma perturbirera [111]. U prvoj aproksimaciji



Slika 5.14: Kvantni udari na 268 nm perioda 25 ps zbog trofotonskog pobuđenja 6p nivoa u ovisnosti o odmaku valne duljine ulaznih pulseva od trofotonske rezonancije. Titraji kvantnih udara na $\lambda_c = 794 \text{ nm}$ izraženiji su od titraja na $\lambda_c = 804 \text{ nm}$ zbog bolje optimizacije kompresora pojačala. Ponovna optimizacija nužna je pri promjeni valne duljine pulseva.

možemo vlastito širenje linija prijelaza zanemariti [103]. U tom slučaju, iz poznatih vrijed-

nosti za širenje linija zbog tlaka plemenitog plina (argona) dobiva se vrijeme života koherencija iznosa $T_2 = 720$ ps. Mjereno vrijeme života koherencija puno je kraće od očekivane vrijednosti. Očito relaksaciji koherencija doprinose i neki procesi koji nisu bili uključeni u račun. Tranzijentni signal nastaje u području preklapanja fokusiranih laserskih snopova pa je moguće da dolazi do širenja linija zbog međudjelovanja s laserskom pobudom trajanja kraćeg od vremena života stanja koje se pobuđuje (*transit-time broadening*) [13]. Na temperaturi od 400°C najvjerojatnija brzina atoma natrija iznosi oko 700 m/s pa je atomima potrebno oko 140 ns da prijeđu područje preklapanja zraka procijenjeno na površinu promjera oko 100 μm . To nije dovoljno kratko da objasni mala vremena života koherencija. Drugi mogući uzrok smanjenja života koherencija je širenje linija zbog sudara s ioniziranim česticama (Starkovo širenje). Ukoliko bi vrijeme života koherencija ovisilo o ionizaciji, ovisilo bi o snazi pulseva. No, mjerenja kvantnih udara u različitim uvjetima, opisana na slijedećim stranicama, pokazala su da se vrijeme života koherencija ne mijenja bitno s promjenom snage pulseva.

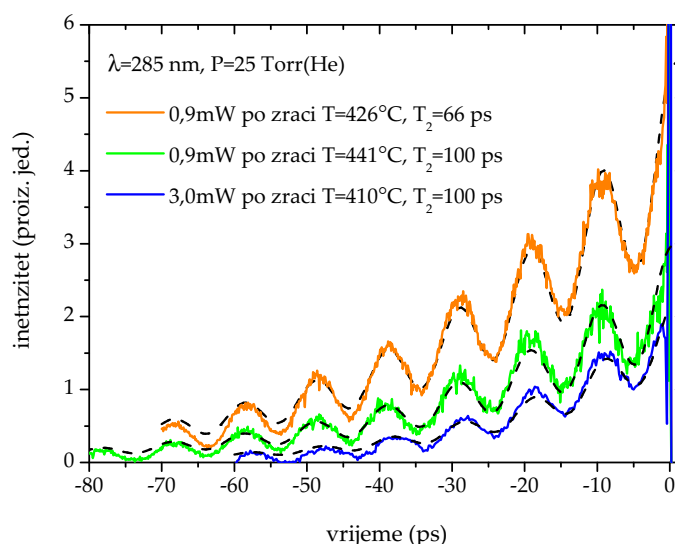


Slika 5.15: Kvantni udari na 285 nm perioda 9.8 ps zbog trofotonskog pobuđenja $5p$ nivoa pulsevima podešenima na $\lambda_c = 854$ nm snimljeni spektrometrom. Donji dio slike prikazuje tranzijent na valnoj duljini od 285 nm te prilagodbu na izraz 5.3.9. $p(\text{He})=25$ Torr, $T_{\text{Na}} = 425^\circ\text{C}$ ($N_{\text{Na}} = 9.9 \times 10^{15}\text{cm}^{-3}$). $P_{\text{ulaz}} = 2$ μJ . Pri većim snagama titraji nestaju.

Slika 5.14 prikazuje promjenu tranzijentnog signala zbog mijenjanja centralne valne duljine pulseva. Titraji u tranzijentnom signalu vidljivi su i kada je valna duljina pulseva pomaknuta za 10 nm od trofotonske rezonancije na $\lambda_c = 804$ nm. Pomak od 10 nm odgovara spektralnoj poluširini (FWHM) pulseva koji izlaze iz femtosekundnog pojačala. Daljnjim odmicanjem od rezonancije titraji nestaju, odnosno pojavljuje se samo jedna amplituda na oko -40 ps koju bi

bilo pretenciozno povezati sa kvantnim udarima zbog pobuđivanja fine strukture 7p stanja natrija.

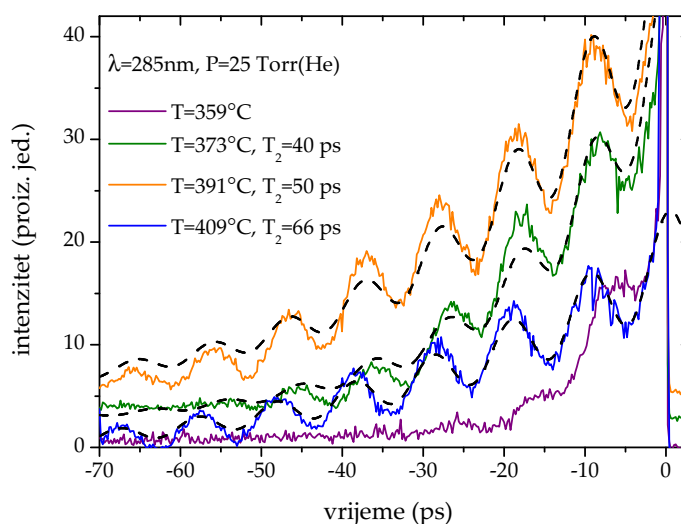
Kvantni udari zbog trofotonske pobude 5p nivoa natrija pulsevima podešenima na $\lambda_c = 854$ nm prikazani su kroz spektralnu ovisnost tranzijentnog signala na 285 nm na slici 5.15. Također je prikazan tranzijent na valnoj duljini najvećeg intenziteta, koji je potom prilagođen funkciji oblika 5.3.9. Na taj način dobiveno je vrijeme života koherencija koje iznosi $T_2 = 80$ ps. Titraji imaju period od 9.8 ps što odgovara razlici energija od $\Delta E = 3 \text{ cm}^{-1}$. U literaturi se mogu naći vrijednosti energija koje odgovaraju razlikama u rasponu od 2.5 do 3.1 cm^{-1} [103, 109]. Kvantni udari na stvarnoj razlici energija imali bi period titraja od 13.3 ps. Laserom inducirani a.c. Stark pomak atomskih nivoa može se, u prvoj aproksimaciji, isključiti iz razmatranja jer



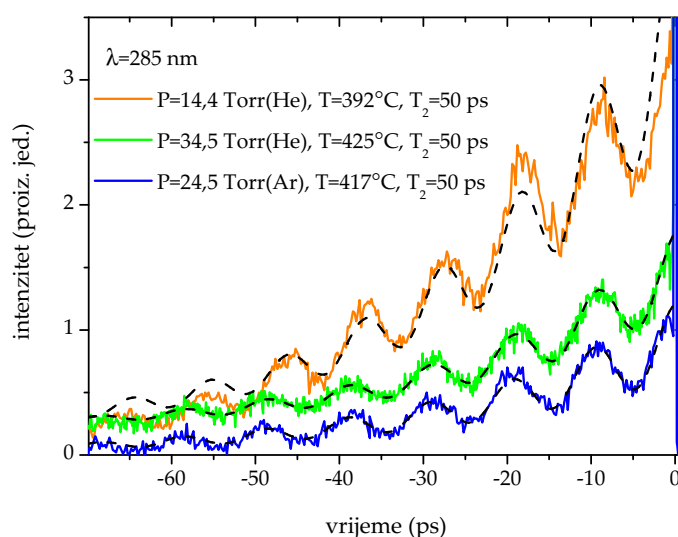
Slika 5.16: Kvantni udari na 285 nm snimljeni pri različitim energijama pobude i koncentracijama para natrija u rasponu od $N_{\text{Na}} = 6.9 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ do $N_{\text{Na}} = 1.4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

do njega dolazi samo za vrijeme trajanja pulsa (100 fs) i jednako utječe na energije oba nivoa [108]. Provjerena je i ovisnost perioda titraja o koncentraciji natrija i energiji pobudnih pulseva, te o koncentraciji *buffer* plina. Ti su rezultati prikazani na slikama 5.16, 5.17 i 5.18. Mjerenja ovisnosti titraja o koncentraciji atoma natrija, slika 5.17, pokazali su da postoji donji prag koncentracija ispod kojeg titraji nestaju. Na temelju mjerene temperature peći može se reći da je minimalna potrebna koncentracija približno $N_{\text{Na}} = 1.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Sva izmjerena titranja prilagođena su funkciji oblika 5.3.9 te je dobiveno vrijeme relaksacija koherencija u rasponu od $T_2 = 40$ ps do $T_2 = 100$ ps. Dobiveno vrijeme relaksacije koherencija odgovara rezultatu

dobivenom na temelju prethodnih mjerenja na 6p stanju. U svim mjerenjima titraja DFWM signala na 285 nm dobiven je otprilike isti period titraja koji iznosi već spomenutih 9.8 ps. Rješavanje ove nepoznanice biti će predmetom budućih istraživanja.



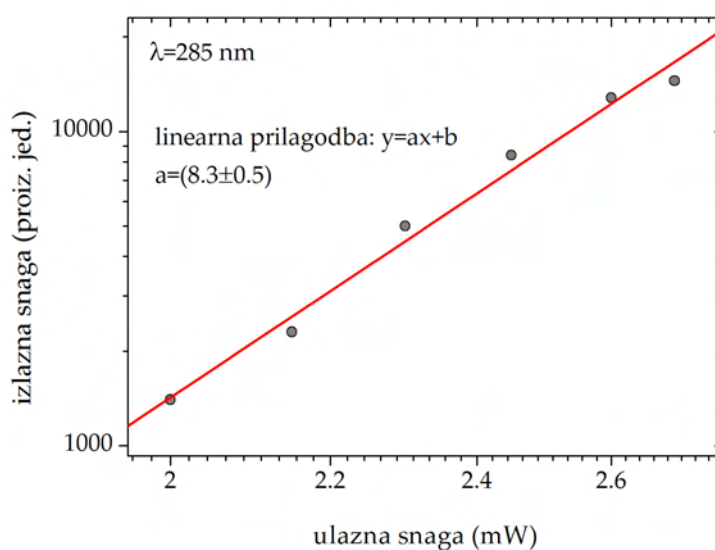
Slika 5.17: Kvantni udari na 285 nm u ovisnosti o koncentraciji para natrija u rasponu od $N_{\text{Na}} = 1.7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ do $N_{\text{Na}} = 6.7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.



Slika 5.18: Ovisnost oscilacija na 285 nm o vrsti i tlaku *buffer* plina.

U procesima stvaranja trećeg harmonika intenzitet stvorenog zračenja ovisi o mediju u kojem je zračenje stvoreno. U slučaju optički debelog sredstva stvoreno zračenje može, prije

napuštanja medija, biti ponovno apsorbirano. Za dovoljno velike energije pulseva, u DFWM eksperimentima, pojavljuje se efekt saturacije intenziteta. Osim toga, pri većim energijama izraženiji su nelinearni procesi koji utječu na širenje pulseva do točke u kojoj je zadovoljeno fazno usklađivanje. Povećanjem energije pulseva drugi nelinearni procesi višeg reda, koji rastu sa višim potencijama jakosti električnog polja pulseva, igraju sve važniju ulogu. Zbog provjere utjecaja nelinearnih efekata na uočene kvantne udare napravljena je ovisnost intenziteta zračenja na frekvencijama trećih harmonika o snazi ulaznih pulseva. Mjerenja su bila otežana zbog činjenice da promjenu energije ulaznih pulseva nije moguće izvesti pomoću npr. neutralnih filtera, a da se barem malo ne poremeti osjetljiva geometrija preklapanja. Osim promjene geometrije eksperimenta prolaskom kroz filtre mijenja se i linearni cvrkut pulsa što također mijenja efikasnost procesa stvaranja trećeg harmonika. U procesu mjerenja dolazi do promjene efikasnosti filtra što mijenja funkcionalnu ovisnost mjerene veličine. Ispoban je veći broj metoda smanjivanja energije pulseva (polarizacijski i neutralni filteri, dijeljenje snopova pomoću

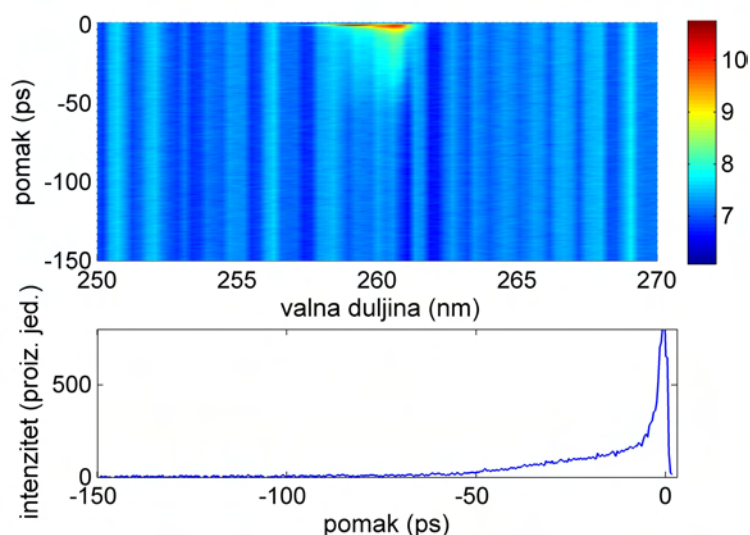


Slika 5.19: Ovisnost intenziteta signala trećeg harmonika na 285 nm o ulaznoj snazi pulseva. $p(\text{He})=25$ Torr, $T_{\text{Na}} = 425^\circ\text{C}$ ($N_{\text{Na}} = 9.9 \times 10^{15}\text{cm}^{-3}$).

pokrovnih stakalaca, smanjivanje efikasnosti femtosekundnog pojačala ...) i u različitim područjima snage ulaznih pulseva. Na slici 5.19 prikazana su mjerenja ovisnosti intenziteta na 285 nm o ulaznom intenzitetu zračenja gdje je intenzitet ulaznih pulseva mjereno pomoću mjerača optičke snage (Thorlabs S121B 200-1100 nm, 50 nW-500 mW) dok je izlazni intenzitet mjereno pomoću spektrometra. Ovisnost je prikazana u log-log skali čiji je nagib blizu idealne vrijed-

nosti. U slučaju ovisnosti DFWM signala na fundamentalnoj valnoj duljini očekuje se ovisnost sa trećom potencijom ulazne snage (trajanje pulsa ne mijenjamo pa je energija pulsa proporcionalna prosječnoj snazi), u skladu sa izrazom 5.1.2. U slučaju generiranja DFWM signala na frekvenciji trećeg harmonika ulaznog zračenja očekuje se da intenzitet izlaznog zračenja ovisi sa 9 potencijom intenziteta ulaznog zračenja jer se zapravo radi o procesu deseterovalnog miješanja. Pretpostavka je da bi na nižim koncentracijama para natrija rezultati mjerenja ovisnosti snage bili točniji, bez obzira na probleme sa smanjivanjem snage laserskih pulseva.

Korišteni laserski sistem omogućava trofotonsku pobudu i viših np nivoa natrija. Prvi slijedeći nivo koji se još nalazi u rasponu dostupnih valnih duljina je $7p$ nivo natrija na 260 nm koji je trofotonski rezonantan sa upadnim zračenjem na $\lambda_c = 780$ nm. Razlika energija zbog fine strukture $7p$ nivoa natrija iznosi $\Delta E = 0.65 \text{ cm}^{-1}$ što odgovara titrajima perioda oko 50 ps. Rezultat mjerenja prikazan je na slici 5.20. U svim mjerenjima opažen je DFWM signal u nega-

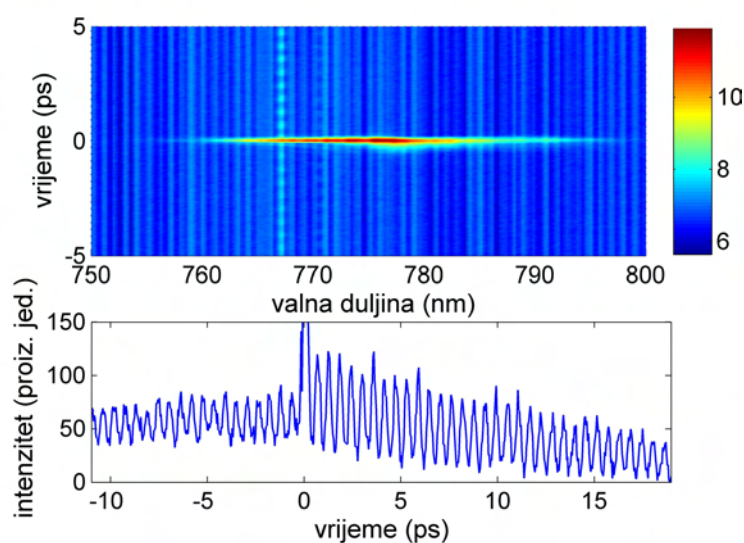


Slika 5.20: Tranzijent na 260nm-pobuđivanje $8P$ stanja natrija. Laser postavljen na $\lambda_c = 775$ nm. $P(\text{Ar})=16$ Torr. $T_{\text{Na}} = 420^\circ\text{C}$ ($N_{\text{Na}} = 8.8 \times 10^{15}\text{cm}^{-3}$).

tivnim vremenima na odgovarajućoj valnoj duljini ali niti jedno mjerenje nije pokazalo titraje signala odgovarajućeg perioda koji bi se mogli povezati sa kvantnim udarima. Ranija mjerenja pokazala su da je vrijeme života koherencija relativno kratko, naročito u odnosu na period očekivanih kvantnih udara $7p$ nivoa natrija. Stoga neopažanje titraja povezanih sa kvantnim udarima ne iznenađuje. Treba spomenuti i da se u području valnih duljina ispod 800 nm nalazi veći broj atomskih rezonantnih linija nečistoća (kalij, rubidij) ali i A-X molekulska vrpca natrija sa maksimumom u području 650 – 700 nm [112].

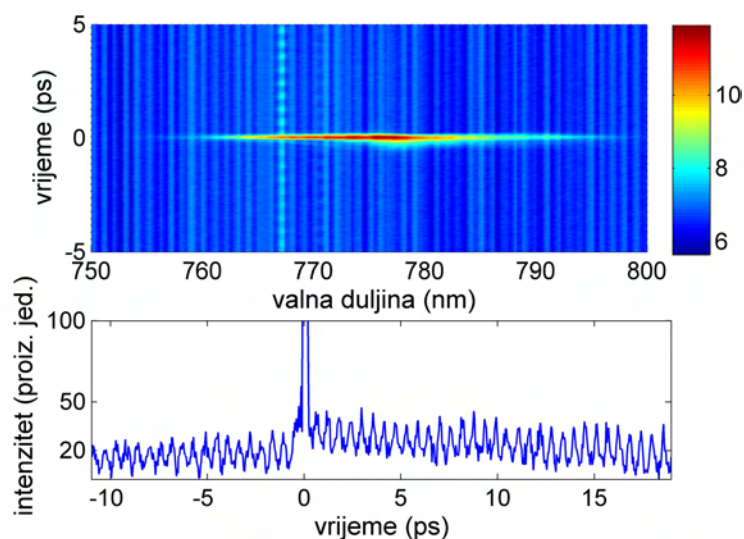
5.4. Koherentno pobuđenje atoma kalija u parama natrija

U prethodnom odlomku proučavana su višefotonska pobuđenja viših rezonantnih dubleta ($5p$ i $6p$) natrija. Pokazano je da u pozitivnim vremenima signala nema zbog destruktivne interferencije pulsa koji se širi na fundamentalnoj frekvenciji i pulsa na trećem harmoniku fundamentalne frekvencije. Zanimljivo je usporediti te rezultate sa rezultatima za jednofotonsku pobudu rezonantnih linija. Natrijeve rezonantne linije ne preklapaju se sa područjem valnih



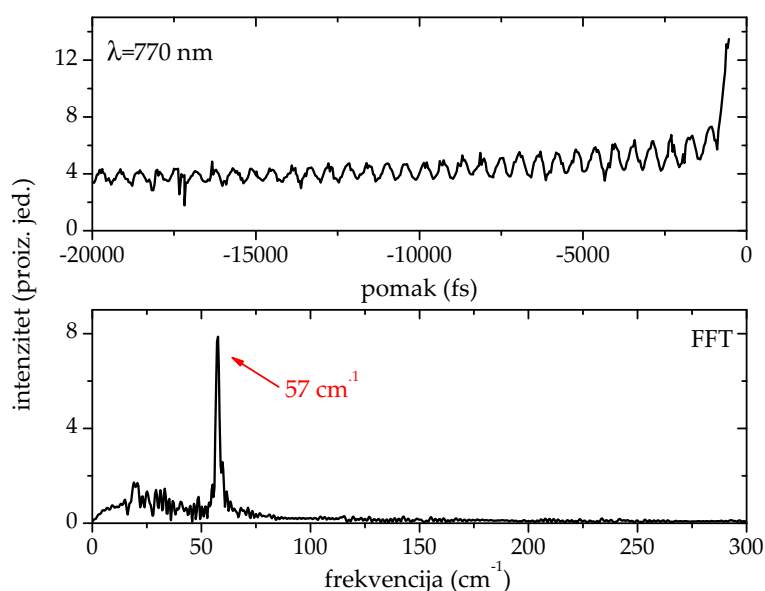
Slika 5.21: Kvantni udari pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija snimljeni spektrometrom. Titraji na valnoj duljini od 766.5 nm. $p(\text{Ar})=16$ Torr, $T_K = 390^\circ\text{C}$ ($N_K = 4.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$).

duljina femtosekundnog pojačala. No natrij kojim je punjena toplovodna peć uvijek sadržava, u malim koncentracijama, i primjese ostalih alkalija. Kalijeve rezonantne linije nalaze se na 766.5 ($4s_{1/2} - 4p_{3/2}$) i 769.9 nm ($4s_{1/2} - 4p_{1/2}$). Razlika energija tih stanja iznosi $\Delta E = 57.5 \text{ cm}^{-1}$ [113]. Rubidijeve rezonantne linije, iako na dostupnim valnim duljinama imaju prevelik razmak (15 nm) da bi ih se moglo istovremeno pobuditi. Iz Feynmanovih dijagrama za BOX-CARS geometriju u slučaju jednofotonske pobude očekujemo signal u negativnim vremenima koji će opisivati dinamiku pobuđenog stanja te signal u pozitivnim vremenima koji će opisivati dinamiku osnovnog i pobuđenog stanja. Za danu valnu duljinu pobude nije moguće vidjeti dinamiku osnovnog stanja koje nema finu strukturu. Na slikama 5.21 i 5.22 prikazani su izmjereni titraji kvantnih udara u DFWM mjerenjima sa femtosekundnim pulsevima postavljeno na $\lambda_c = 770$ nm. U spektru tranzijenta vidljivi su titraji na valnim duljinama koje odgovaraju položajima rezonantnih linija kalija. Kada se pogleda tranzijentni signal svake pojedine



Slika 5.22: Kvantni udari pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija snimljene spektrometrom. Titraji na valnoj duljini od 769.9 nm. Eksperimentalni uvjeti odgovaraju onima na slici 5.21.

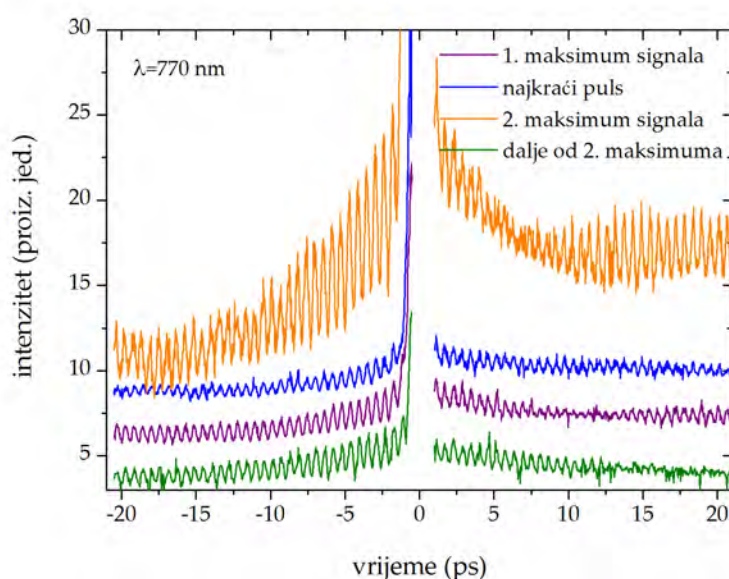
spektralne komponente dobivaju se titraji identičnog perioda koji iznosi 550 fs. FFT analiza, prikazana na slici 5.23 pokazuje da period titraja točno odgovara razlici energija 4p nivoa fine strukture kalija. Iako su mjerenja ovog tipa poznata u literaturi [107], ovakvim je mjerenjima moguć uvid u dinamiku sistema u vremenu kada dolazi do nelinearnog odziva medija. U



Slika 5.23: Spektralno razlučen tranzijentni signal na 770 nm snimljen pomoću fotomultiplikatora i FFT analiza snimljenog tranzijenta.

konkretnom slučaju mjerenja su bila korisna za provjeru ispravnosti ostalih rezultata. DFWM

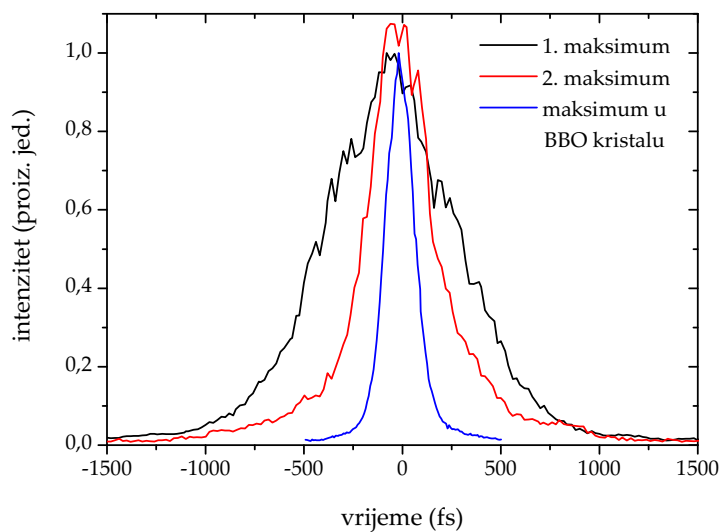
metoda zapravo je *Doppler-free* metoda što potvrđuju i snimljeni spektri tranzijenata. Spektralna širina uočenih signala ovdje je određena rezolucijom spektrometra. Titraji tranzijenata jako ovise o linearnom cvrkutu. Mjerenja kvantnih udara u kaliju prikazana na slici 5.24 za različite kompresije ulaznih pulseva (različiti linearni cvrkut) pokazuju da intenzitet titraja i njihovo trajanje bitno ovise o linearnom cvrkutu. Maksimum intenziteta kvantnih udara ne podudara se sa najkraćim pulsom, čija je autokorelacija snimljena pomoću BBO kristala prije ulaska u toplovodnu peć (slika 5.25).



Slika 5.24: Kvantni udari pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija za različiti stupanj kompresije femtosekundnog pojačala. Prisutnost titraja u pozitivnim i negativnim vremenima dokaz je da se promatra dinamika pobuđenog stanja sistema.

5.5. Zaključak

U ovom poglavlju prikazani su rezultati dobiveni tehnikom degeneriranog četverovalnog miješanja korištenjem femtosekundnih pulseva relativno velike energije. Rezultati se mogu podijeliti u nekoliko grupa. U prvoj grupi rezultata nalaze se mjerenja titraja valnog paketa nastalog koherentnim pobuđivanjem većeg broja vibracijskih stanja natrijevih molekula pokazano je da uočeni titraji tranzijentnog signala odgovaraju razlikama energija vibracijskih nivoa pobuđenog $A^1\Sigma_u^+$ stanja. Ustanovljeno je i da korišteni laserski pulsevi ne pokrivaju dovoljan raspon energija kojim bi koherentno pobuđivanje većeg broja vibracijskih nivoa bilo



Slika 5.25: Autokorelacijska mjerenja trajanja pulseva u uvjetima maksimalnih amplituda titraja kvantnih udara pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija.

efikasno, čime bi i rezultati mjerenja bili pouzdaniji. Ograničeno područje radnih valnih duljina drugi je bitan nedostatak korištenog laserskog sistema, kada ga se koristi za mjerenja pobuđenja vibracijskog valnog paketa u natrijevim molekulama. Rezultati bi bili puno bolji kada bi se valna duljina lasera mogla podesiti na maksimum $A^1\Sigma_u^+$ natrijeve molekulske vrpce, oko 650-700 nm. Drugu grupu rezultata čine trofotonska pobuđenja viših np nivoa osnovne serije u natriju kroz proces miješanja deset valova. U određenim uvjetima dolazi i do zanimljivog efekta destruktivne interferencije jednofotonskih i trofotonskih procesa. Osim fazno ugođene emisije na frekvenciji trećeg harmonika opaženi su i titraji tranzijentnog signala povezani sa koherentnim pobuđivanjem fine strukture np nivoa natrija čija se energetska razlika odražava u periodu titraja tranzijentnog signala. U trećoj grupi mjerenja nalaze se jednofotonska pobuđenja na frekvenciji rezonantnih kalijevih linija gdje je također uočena pojava kvantnih udara zbog koherentnog pobuđivanja nivoa fine strukture $4p$ stanja kalija. Daljnja istraživanja biti će usmjerena na proučavanje procesa koji utječu na relaksacije koherencija. Pomoću metoda karakterizacije ultrakratkih pulseva (autokorelacija, FROG, ...) provjeriti će se oblik pulsa koji stvara emisiju na frekvenciji trećeg harmonika. Detaljnije će se proučiti utjecaj oblika ulaznog pulsa, prije svega linearnog cvrkuta koji je moguće mijenjati, na efikasnost stvaranja trećeg harmonika, ali i na efikasnost uočenih kvantnih udara.

Popis slika

2.1. Promjena frekvencije vala nosioca kod pulseva koji posjeduju fazu drugoga reda . . .	8
2.2. Utjecaj faze drugog reda na intenzitet i fazu pulsa u vremenskoj i spektralnoj domeni	9
2.3. Utjecaj amplitude i faze signala u fotografiji kroz Fourierovu analizu	10
2.4. Stvaranje drugog harmonika u kolinearnoj i nekolinearnoj konfiguraciji	20
2.5. Disperzija indeksa loma pozitivnog jednoosnog kristala	26
2.6. Relaksacijski procesi u slučaju zatvorenog sistema atoma s dva nivoa	34
3.1. Fano interferencija	38
3.2. Λ shema atoma s tri nivoa	40
3.3. Λ , V i kaskadna (Ξ) shema sistema s tri nivoa	44
3.4. Ovisnost realnog i imaginarnog dijela susceptibilnosti o relaksaciji koherencije nevezanih stanja	47
3.5. Ovisnost realnog i imaginarnog dijela susceptibilnosti o omjeru Rabi frekvencije i širine apsorpcijskog profila probne linije	48
3.6. Eksperimentalni postav za mjerenje elektromagnetski inducirane transparentije . . .	49
3.7. V shema izotopa ^{85}Rb s hiperfinom strukturom	51
3.8. Simulirani apsorpcijski profili za različite vrijednosti relaksacija koherencija između nevezanih nivoa	55
3.9. Maksimalna transparentija kao funkcija brzine relaksacija koherencija	56
3.10. Uvećano područje centralnog dijela apsorpcijskog profila u aproksimaciji idealne koherencije nevezanih stanja	57
3.11. Eksperimentalni rezultat nastanka transparentije na valnoj duljini probnog lasera pri uključivanju veznog polja	58

3.12. Imaginarni i realni dijelovi koherencija između osnovnog $^{85}\text{Rb } 5^2S_{1/2}(F_g = 2)$ i pobuđenog $^{85}\text{Rb } 6^2P_{3/2}(F_e = 1, 2, 3)$ stanja za jakosti veznog polja koja odgovara eksperimentalnim uvjetima i dvostruko većoj jakosti polja	59
3.13. Realni i imaginarni dio sporo promjenjive koherencije σ_{47} nevezanih stanja za dvije snage veznog lasera	60
3.14. Realni dio koherencije σ_{47} nevezanih stanja za različite snage probe te u slučaju kada je nehomogeno širenje linija bitno smanjeno	61
3.15. Struktura čipa optičkog poluvodičkog pojačala	62
3.16. Kućište optičkog poluvodičkog pojačala	63
3.17. Spektar optičkog poluvodičkog pojačala za različite jakosti struja kroz poluvodič . .	64
4.1. Geometrijska interpretacija iterativnog algoritma generaliziranih projekcija	72
4.2. Shema mjerenja FROG tehnikom sa frekventnim udvostručavanjem	73
4.3. Teorijske simulacije stvaranja $0-\pi$ pulseva u mediju u okviru linearne disperzijske teorije	76
4.4. Teorijski spektri pulsa nakon prolaska kroz rezonantne pare rubidija	77
4.5. Usporedba izmjerenih spektrograma sa spektrogramima rekonstruiranim pomoću FROG algoritma	78
4.6. Usporedba realnog dijela anvelope električnog polja pulsa izračunatog pomoću linearne propagacijske teorije s rezultatima FROG algoritma za teorijski izračunat i eksperimentalno mjereni spektrogram	79
4.7. Razlike u realnom dijelu anvelope električnog polja pulsa dobivene iz FROG mjerenja i pomoću linearne disperzijske teorije	80
4.8. Rekonstruirani spektri pulsa iz eksperimentalnih FROG spektrograma	81
4.9. Rekonstruirana anveopa električnog polja pulsa iz eksperimentalnih FROG spektrograma za dvije temperature para rubidija	82
4.10. Izgled FROG spektrograma rekonstruiranih korištenjem teorijskog $0-\pi$ pulsa u okviru linearne propagacijske teorije	83
4.11. Eksperimentalni postav za mjerenje konusne emisije u gustim parama rubidija . . .	85
4.12. Linearna ovisnost kuta konusne emisije o koncentraciji atoma rubidija	86
4.13. Fotografije konusne emisije u gustim parama rubidija	87
4.14. Spektralna i kutna raspodjela konusne emisije	88

4.15. Ovisnost kuta konusne emisije o snazi laserskog pulsa	89
4.16. Međukorelacijska mjerenja konusne emisije u parama rubidija	90
4.17. Žarišna duljina z_f samofokusirajućeg pulsa kao funkcija snage lasera	92
4.18. Kut konusne emisije kao funkcija pomaka centralne frekvencije lasera od frekvencije D2 rezonantnog prijelaza	93
4.19. FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u crveno krilo rezonantnih linija rubidija	94
4.20. Rekonstruirani FROG spektrogrami konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u crveno krilo rezonantnih linija rubidija	95
4.21. Rekonstrukcija pulsa iz FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u crveno krilo rezonantnih linija rubidija	96
4.22. FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija	97
4.23. Rekonstruirani FROG spektrogrami konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija	98
4.24. Vremenska promjena trenutne frekvencije pulseva čija je centralna valna duljina postavljena u crveno ili plavo krilo rezonantnih linija rubidija	99
4.25. Rekonstrukcija pulsa iz FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija	100
4.26. Obrada FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog na D2 rezonantnu liniju rubidija	101
4.27. Rekonstrukcija pulsa iz FROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog na D2 rezonantnu liniju rubidija	102
4.28. Shema eksperimentalnog postava kod XFROG mjerenja	103
4.29. XFROG mjerenja konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija	104
4.30. Rekonstruirani XFROG spektrogrami konusne emisije femtosekundnog lasera postavljenog u plavo krilo rezonantnih linija rubidija	105
4.31. Spektri pulseva rekonstruirani iz XFROG mjerenja	106
4.32. Intenziteti i faze električnog polja pulsa rekonstruirani iz XFROG mjerenja	106
4.33. Realni dio anvelope električnog polja pulsa rekonstruiran iz XFROG mjerenja	107

4.34. Kašnjenje u dolasku pulsa iz konusne emisije u odnosu na referentni puls dobiveno XFROG mjerenjima	107
5.1. Vremenski redoslijed dolaska pulseva u uzorak	110
5.2. Eksperimentalna shema četverovalnog miješanja u gustim parama natrija	113
5.3. Stvaranje signala u nekolinearnom četverovalnom miješanju	114
5.4. Potencijalne krivulje natrijevih dimera	116
5.5. Titraji valnog paketa pobuđenih vibracijskih stanja $A^1\Sigma_u^+$ nivoa	117
5.6. Titraji tranzijenta DFWM signala perioda oko 250 fs na valnoj duljini lasera uočene pobudom pulsevima centralne valne duljine $\lambda_c = 764$ nm povezane s koherentno pobuđenim gibanjem vibracijskog valnog paketa natrijevih dimera	118
5.7. FFT analiza snimljenog tranzijenta na 764 nm	118
5.8. opis međudjelovanja atoma i laserskih polja u četverovalnom miješanju pomoću dvostranih Feynmanovih dijagrama	120
5.9. Razne mogućnosti faznog usklađivanja za slučaj trofotonske rezonancije u parama natrija	122
5.10. Grotrianov dijagram energetske nivoa natrija	124
5.11. Tranzijenti različitih frekventnih komponenti u signalu četverovalnog miješanja snimljeni spektrometrom za $\lambda_c = 804$ nm	125
5.12. Tranzijenti različitih frekventnih komponenti u signalu četverovalnog miješanja snimljeni spektrometrom za $\lambda_c = 854$ nm	126
5.13. Kvantni udari na 268 nm perioda 25 ps zbog trofotonskog pobuđenja 6p nivoa za dvije različite koncentracije para natrija	127
5.14. Kvantni udari na 268 nm perioda 25 ps zbog trofotonskog pobuđenja 6p nivoa u ovisnosti o odmaku valne duljine ulaznih pulseva od trofotonske rezonancije	128
5.15. Kvantni udari na 285 nm perioda 9.8 ps zbog trofotonskog pobuđenja 5p nivoa pulsevima podešenima na $\lambda_c = 854$ nm snimljeni spektrometrom	129
5.16. Kvantni udari na 285 nm snimljeni pri različitim energijama pobude i različitim koncentracijama para natrija	130
5.17. Kvantni udari na 285 nm u ovisnosti o koncentraciji para natrija	131
5.18. Ovisnost oscilacija na 285 nm o vrsti i tlaku <i>buffer</i> plina	131
5.19. Ovisnost intenziteta signala trećeg harmonika na 285 nm o ulaznoj snazi pulseva	132

5.20. Tranzijent na 260nm-pobuđivanje 7p stanja natrija)	133
5.21. Kvantni udari pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija snimljeni spektrometrom. Titraji na 766.5 nm	134
5.22. Kvantni udari pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija snimljene spektrometrom. Titraji na 769.9 nm	135
5.23. FFT analiza snimljenog tranzijenta na 770 nm	135
5.24. Kvantni udari pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija za različiti stupanj kompresije femtosekundnog pojačala	136
5.25. Autokorelacijska mjerenja trajanja pulseva u uvjetima maksimalnih amplituda titraja kvantnih udara pobuđenih stanja $4^2P_{1/2,3/2}$ nivoa kalija	137

Bibliografija

- [1] T. H. Maiman, *Nature* **187**, 493 (1960).
- [2] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
- [3] W. Kaiser and G. C. B. Garrett, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 229 (1961).
- [4] E. J. Woodbury and W. K. Ng, *Proc. IRE* **50**, 2367 (1962).
- [5] P. D. Maker, R. W. Terhune, and C. M. Savage, *Quantum Electronics* (Columbia University, New York, 1964), pp. 1559–1578.
- [6] P. D. Maker and R. W. Terhune, *Phys. Rev.* **137**, A801 (1965).
- [7] <http://nobelprize.org>.
- [8] S. Harris, J. Field, and A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1107 (1990).
- [9] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 633 (2005).
- [10] R. Trebino, *Frequency-resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses* (Kluwer Academic Publishers, Norwell, 2000).
- [11] H. Stark, ed., *Image Recovery: Theory and Application* (Academic Press, Orlando, 1987).
- [12] J.-C. Diels and W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena* (Academic Press, San Diego, 2006).
- [13] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy* (Springer-Verlag, Berlin, 2003).
- [14] R. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, San Diego, 2003).
- [15] E. Akutowicz, *Trans. Amer. Math. Soc.* **83**, 179 (1956).
- [16] E. Akutowicz, *Trans. Amer. Math. Soc.* **84**, 234 (1957).
- [17] S. Vdović, T. Ban, D. Aumiler, and G. Pichler, *Opt. Commun.* **272**, 407 (2007).
- [18] K. J. Boller, A. Imamoglu, and S. E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2593 (1991).
- [19] P. R. Hemmer, D. P. Katz, J. Donoghue, M. Cronin-Golomb, M. S. Shahriar, and P. Kumar, *Opt. Lett.* **20**, 769 (1995).
- [20] K. Hakuta, M. Suzuki, M. Katsuragawa, and J. Z. Li, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 209 (1997).
- [21] J. Marangos, *J. Mod. Optic.* **45**, 471 (1998).

-
- [22] O. Kocharovskaya and Y. I. Khanin, *Sov. JETP Lett.* **48**, 630 (1988).
- [23] S. Harris, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1033 (1989).
- [24] M. O. Scully, S.-Y. Zhu, and A. Gavridiles, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2813 (1989).
- [25] L. V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, and C. H. Behroozi, *Nature* **397**, 594 (1999).
- [26] D. F. Phillips, A. Fleischhauer, A. Mair, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 783 (2001).
- [27] W. Hanle, *Z. Phys.* **30**, 93 (1924).
- [28] M. Scully and M. Zubairy, *Quantum Optics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1997).
- [29] U. Fano, *Phys. Rev.* **124**, 1866 (1961).
- [30] C. H. Townes and A. L. Schawlow, *Microwave Spectroscopy* (Dover, 1975).
- [31] E. T. Jaynes and F. W. Cummings, *Proc. IEEE* **51**, 89 (1963).
- [32] P. L. Knight and P. W. Milonni, *Phys. Rep.* **66**, 21 (1980).
- [33] F. Schuda, C. R. S. Jr., and M. Hercher, *J. Phys. B:Atom. Molec. Phys.* **7**, L198 (1974).
- [34] C. Delsart and J.-C. Keller, *J. Phys. B* **9**, 2769 (1976).
- [35] F. Y. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy, and B. R. Mollow, *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1077 (1977).
- [36] G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, and G. Orriols, *Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis. B* **36**, 5 (1976).
- [37] E. Arimondo and G. Orriols, *Lett. Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis.* **17**, 333 (1976).
- [38] E. Arimondo, *Prog. Opt.* **35**, 259 (1996).
- [39] O. Kocharovskaya and P. Mandel, *Quantum Opt.* **6**, 217 (1994).
- [40] A. S. Zibrov, M. D. Lukin, D. E. Nikonov, L. Hollberg, and M. O. Scully, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1499 (1995).
- [41] G. G. Padmabandu, G. R. Welch, I. N. Shubin, E. S. Fry, D. E. Nikonov, M. D. Lukin, and M. O. Scully, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2053 (1996).
- [42] D. J. Fulton, S. Shepard, R. R. Moseley, B. D. Sinclair, and M. H. Dunn, *Phys. Rev. A* **52**, 2302 (1995).
- [43] J. R. Boon, E. Zekou, D. McGloin, and M. H. Dunn, *Phys. Rev. A* **59**, 4675 (1999).
- [44] J. R. Boon, E. Zekou, D. J. Fulton, and M. H. Dunn, *Phys. Rev. A* **57**, 1323 (1998).
- [45] J. R. Boon, E. Zekou, D. McGloin, and M. H. Dunn, *Phys. Rev. A* **58**, 2560 (1998).
- [46] D. A. Steck, *Rubidium 87 d line data*, <http://steck.us/alkalidata/>.
- [47] A. N. Nesmeyanov, *Vapor Pressures of Chemical Elements* (Elsevier, New York, 1963).
- [48] J. Gea-Banacloche, Y. Li, S. Jin, and M. Xiao, *Phys. Rev. A* **51**, 576 (1995).

-
- [49] K. B. MacAdam, A. Steinbach, and C. Wieman, *Am. J. Phys.* **60**, 1098 (1992).
- [50] C. Cohen-Tannondji and A. Kastler, *Prog. Opt.* **5**, 3 (1966).
- [51] E. Gomez, S. Aubin, L. A. Orozco, and G. D. Sprouse, *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 2058 (2004).
- [52] H. Ghafouri-Shiraz, *The Principles of Semiconductor Laser Diodes and Amplifiers* (Imperial College Press, London, 2004).
- [53] R. A. Nyman, G. Varoquaux, B. Villier, D. Sacchet, F. Moron, Y. L. Coq, A. Aspect, and P. Bouyer, *Rev. Sci. Instrum.* **77**, 033105 (2006).
- [54] F. C. Cruz, M. C. Stowe, and J. Ye, *Opt. Lett.* **31**, 1337 (2006).
- [55] C. Schwedes, E. Peik, J. V. Zanthier, A. Y. Nevsky, and H. Walther, *Appl. Phys. B Photo-phys. Laser Chem.* **76**, 143 (2003).
- [56] C. Zimmermann, V. Vuletic, A. Hemmerich, and T. W. Hänsch, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 2318 (1995).
- [57] G. P. Agrawal and N. A. Olsson, *IEEE J. Quantum Electron.* **25**, 2297 (1989).
- [58] Y. Lai, K. L. Hall, E. P. Ippen, and G. Eisenstein, *IEEE Photon Technol. Lett.* **2**, 711 (1990).
- [59] R. Trebino and D. J. Kane, *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 1101 (1993).
- [60] G. Taft, A. Rundquist, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Opt. Lett.* **20**, 743 (1995).
- [61] J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and I. P. Christov, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 752 (1996).
- [62] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, *Science* **282**, 919 (1998).
- [63] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, and D. J. Kane, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 3277 (1997).
- [64] *Femtosoft technologies*, <http://www.femtosoft.biz/>.
- [65] S. L. McCall and E. L. Hahn, *Phys. Rev.* **183**, 457 (1969).
- [66] M. D. Crisp, *Phys. Rev. A* **1**, 1604 (1970).
- [67] D. Grischkowsky, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 866 (1970).
- [68] G. L. Lamb, *Rev. Mod. Phys.* **43**, 99 (1971).
- [69] H. M. Gibbs and R. E. Slusher, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 505 (1971).
- [70] D. J. Kaup and L. R. Scacca, *J. Opt. Soc. Am.* **70**, 224 (1980).
- [71] H.-J. Hartmann and L. Laubereau, *J. Chem. Phys.* **80**, 4663 (1984).
- [72] U. Kallmann, S. Brattke, and W. Hartmann, *Phys. Rev. A* **59**, 814 (1999).
- [73] J. E. Rothenberg, D. Grischkowsky, and A. C. Balant, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 552 (1984).

-
- [74] D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, and S. S. Vianna, *Opt. Commun.* **215**, 69 (2003).
- [75] D. Felinto, L. H. Acioli, and S. S. Vianna, *Phys. Rev. A* **70**, 043403 (2004).
- [76] D. Aumiler, T. Ban, H. Skenderović, and G. Pichler, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 233001 (2005).
- [77] T. Ban, D. Aumiler, H. Skenderović, S. Vdović, N. Vujičić, and G. Pichler, *Phys. Rev. A* **76**, 043410 (2007).
- [78] T. Ban, D. Aumiler, S. Vdović, N. Vujičić, H. Skenderović, and G. Pichler, *Phys. Rev. A* **80**, 023425 (2009).
- [79] P. H. Heckmann and E. Trabert, *Introduction to the Spectroscopy of Atoms* (North-Holland, Amsterdam, 1989).
- [80] R. Netz, T. Feurer, and J. A. Fülöp, *Phys. Rev. A* **64**, 043808 (2001).
- [81] M. Gorris-Neveux, P. Monnot, M. Fichet, M. Ducloy, R. Barbé, and J. C. Keller, *Opt. Commun.* **134**, 85 (1997).
- [82] D. Harter and R. W. Boyd, *Phys. Rev. A* **29**, 739 (1984).
- [83] D. Harter, P. Narum, M. G. Raymer, and R. W. Boyd, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 1192 (1981).
- [84] A. Dreischuh, V. Kamenov, S. Dinev, U. Reitner-Domiaty, D. Gruber, and L. Windholz, *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 34 (1998).
- [85] J. F. Valley, G. Khitrova, H. M. Gibbs, J. W. Grantham, and X. Jiajin, *Opt. Commun.* **119**, 56 (1995).
- [86] G. D. Filipo, S. Guldberg-Kjaer, S. Milošević, and J. O. P. Pedersen, *Opt. Commun.* **144**, 315 (1997).
- [87] J. F. Valley, G. Khitrova, H. M. Gibbs, J. W. Grantham, and X. Jiajin, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2364 (1990).
- [88] C. Sachhi, C. Townes, and J. Lifshitz, *Phys. Rev.* **174**, 439 (1968).
- [89] D. Aumiler, T. Ban, and G. Pichler, *Phys. Rev. A* **71**, 063803 (2005).
- [90] D. Grischkowsky and A. Armstrong, *Phys. Rev. A* **6**, 1566 (1972).
- [91] H. Skenderović, T. Ban, N. Vujičić, D. Aumiler, S. Vdović, and G. Pichler, *Phys. Rev. A* **77**, 063816 (2008).
- [92] J. Krasinski, D. J. Gauthier, M. S. Malcuit, and R. W. Boyd, *Opt. Commun.* **54**, 241 (1985).
- [93] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley, New York, 1984).
- [94] A. H. Zewail, ed., *Femtochemistry vols I and II* (World Scientific, Singapore, 1994).
- [95] A. M. Zheltikov, *J. Raman Spectrosc.* **31**, 653 (2000).
- [96] C. W. Thiel, *Four-wave mixing and its applications*, <http://www.physics.monta->

- na.edu/students/thiel/docs/FWMixing.pdf.
- [97] N. Bloembergen, *J. Opt. Soc. Am.* **70**, 1429 (1980).
- [98] S. Y. Yee, T. K. Gustafson, S. A. J. Druet, and J.-P. E. Taran, *Opt. Commun.* **23**, 1 (1977).
- [99] N. Vujičić, *Stvaranje niskotlačne plazme u zraku, heliju i dušiku djelovanjem femtosekundnog laserskog pojačala* (Diplomski rad, Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet, 2005).
- [100] T. Baumert, M. Grosser, R. Thalweiser, and G. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3753 (1991).
- [101] E. J. Brown, Q. Zhang, and M. Dantus, *J. Chem. Phys.* **110**, 5772 (1999).
- [102] C. R. Vidal, *Appl. Opt.* **19**, 3897 (1980).
- [103] R. B. Miles and S. E. Harris, *IEEE J. Quantum Electron.* **9**, 470 (1973).
- [104] D. J. Jackson and J. J. Wynne, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 543 (1982).
- [105] N. Bloembergen, *Nonlinear Optics* (World Scientific, Singapore, 1996).
- [106] E. J. Brown, Q. Zhang, and M. Dantus, *Opt. Lett.* **23**, 70 (1998).
- [107] M. Motzkus, S. Pedersen, and A. H. Zewail, *J. Phys. Chem.* **100**, 5620 (1996).
- [108] T. Lang and M. Motzkus, *J. Raman Spectrosc.* **31**, 65 (2000).
- [109] J. E. Sansonetti, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **37**, 1659 (2008).
- [110] J. Kielkopf, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **9**, L547 (1976).
- [111] S. Ch'en and M. Takeo, *Rev. Mod. Phys.* **29**, 20 (1957).
- [112] S. Vdović, R. Beuc, D. Aumiler, T. Ban, and G. Pichler, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38**, 3107 (2005).
- [113] P. Risberg, *Ark. Fys.* **10**, 583 (1956).

Sažetak

Istraživana je nelinearna interakcija između atomskih para alkalija i laserskih izvora u različitim uvjetima. U primjeru elektromagnetski inducirane transparentije interakcija se odvija između kontinuiranih lasera i atomskih para rubidija u tzv. V shemi vezanja atomskih stanja. Inducirana transparentija rezultat je ponajviše smanjenja populacije u jednom od promatranih nivoa zbog saturacije jednog prijelaza pri čemu dolazi do povećanja transparentije na drugom prijelazu. No osim saturacije, usporedbom razvijenog teorijskog modela sa eksperimentalnim rezultatima, zaključeno je da i stvorena koherencija u atomima također doprinosi povećanju transparentije medija. Također je istražena interakcija femtosekundnih pulseva sa rezonantnim parama rubidija različitim koncentracijama korištenjem tehnike frekventno razlučivog optičkog uzorkovanja (FROG). Efekti prostiranja femtosekundnih laserskih pulseva optički tankim rezonantnim sredstvom mogu se opisati stvaranjem $0-\pi$ pulseva kod kojih, zbog interakcije s rezonantnim sredstvom, dolazi do značajnih modulacija električnog polja pulsa na skali od nekoliko ps. Mjerenja $0-\pi$ pulseva zahtijevaju veliku spektralnu razlučivost i široki vremenski prozor mjerenja što za FROG algoritam znači korištenje velike matrice za spremanje snimljenih spektrograma. Dobiveni rezultati uspoređeni su s teorijskim simulacijama prostiranja pulsa rezonantnim medijem u okviru linearne disperzijske teorije. Pokazano je da su pogreške u izmjerenim poljima koja su dobivena uzorkovanjem u vremenskom prozoru koji ne sadržava „cijeli“ $0-\pi$ puls rezultat uzorkovanja u preuskom vremenskom prozoru. FROG tehnikom mjereni su i pulsevi nakon rezonantne nelinearne interakcije sa gustim parama rubidija. Konačan rezultat takve interakcije je konusna emisija, koja se opaža u dalekom polju. U okviru aproksimacije adijabatske slijednosti pokazano je da zbog različitog predznaka razlike između centralne valne duljine pulsa i valne duljine najbliže rezonantne linije dolazi do samofokusiranja odnosno samodefokusiranja, kada prostiranje pulsa medijem promatramo u prostornoj domeni. U frekventnoj domeni dolazi do samomodulacije faze pulsa koja također ovisi o predznaku razlike valnih duljina pulsa i rezonantne linije. Izmjerena je spektralna faza

pulsa konusne emisije te su potvrđene gore navedene teze kroz različito ponašanje spektralne i vremenske faze pulsa ovisno o položaju spektra pulsa u odnosu na rezonanciju. Degenerirano četverovalno miješanje (DFWM) femtosekundnih pulseva u natrijevim parama mjereno je u režimu tranzijentne rešetke u BOXCARS geometriji. Proučavan je vremenski razvoj UV emisije uzrokovane višefotonskom apsorpcijom u mediju kao i vremenski razvoj generiranog DFWM signala. Pomoću procesa destruktivne interferencije polja na fundamentalnoj frekvenciji i polja na frekvenciji trećeg harmonika objašnjena je činjenica da se u snimljenim tranzijentima UV signal pojavljuje samo u negativnim vremenima. Modulacije intenziteta tranzijenata objašnjavaju se kvantnim udarima zbog pobuđivanja stanja fine strukture. Period modulacije određen je razlikom energija nivoa različitog spina. Modulacije eksponencijalno trnu u vremenu određenom karakterističnim vremenom relaksacija koherencija. Osim na trofotonskim rezonancijama, kvantni udari uočeni su i na fundamentalnoj frekvenciji lasera kada je valna duljina lasera podešena na rezonantne linije kalijevog 4p dubleta. Mjerenjem perioda titraja stvorenog vibracijskog valnog paketa u natrijevim molekulama pobuđenog $A^1\Sigma_u^+$ stanja dobivene su energetske razlike susjednih vibracijskih nivoa.

Summary

This thesis examines nonlinear interaction between the alkali vapor and different laser sources in various conditions. Interaction between cw lasers and rubidium atomic vapor in the V coupling scheme produces electromagnetically induced transparency where the main contribution to the induced transparency comes from nonlinear saturation effects on the strongly coupled transition. However, by comparison between the theoretical model and experimental results it is shown that part of the induced transparency comes from coherences induced between the uncoupled transitions. Interaction between the femtosecond (fs) pulses and resonant rubidium atomic vapor is investigated using frequency-resolved optical gating (FROG) technique for pulse characterization. Propagation of the fs pulses in the optically thin medium result in formation of $0-\pi$ pulses which have strong modulation of the electric field amplitude on a time scale of several ps. For the FROG measurements of $0-\pi$ fs pulses high spectral resolution and long temporal window is needed. This means that the grid size of the FROG algorithm has to be large. The pulse reconstruction process will therefore be rather slow. Since it is impossible to cover the whole time evolution of the $0-\pi$ pulse, the reconstruction process can never be accurate enough. This point is shown using calculated $0-\pi$ pulse that is truncated in time domain to correspond actual measurements for the FROG algorithm reconstruction. The $0-\pi$ pulse formation was calculated within the linear dispersion theory. The same technique was used for the characterization of nearly-resonant pulses that propagated through the optically thick rubidium vapor. The resulting conical emission, observed in the far-field, is a result of self-focusing or self-defocusing of the pulse in time domain and self-phase modulation in the frequency domain. Using the adiabatic following approximation, it is shown that the physical processes depend on the sign of the wavelength difference between the wavelength of the pulse and the resonance line wavelength. The pulse electric field phase in both domains, retrieved from the FROG measurements, shows different behavior with respect to the sign of the detuning from the rubidium resonance lines. Degenerate four-wave mixing (DFWM) of femtosecond

pulses in sodium vapor was performed in BOXCARS geometry. When on three-photon atomic resonance, transient grating signal appeared on the frequency of the third harmonic of fundamental frequency at negative delay times with modulations whose period corresponds to the energy difference between the simultaneously excited upper state fine structure levels. In positive time delays transient grating signal appears at the fundamental frequency and there is no signal at third harmonic frequency. This is explained by destructive interference between the field at fundamental frequency and the field at the frequency of third harmonic. The amplitudes of modulations at negative time delays have exponential time dependence determined by the coherence relaxation time. These quantum beats between two coherently excited polarizations were also seen when the laser pulse central wavelength matched potassium resonance lines wavelengths. Beats of period corresponding to the energy difference between the fine structure levels of potassium are seen both in negative and positive delay times since in this case there is no destructive interference. DFWM experiments were also performed on sodium molecular levels where wavepacket was excited in the $A^1\Sigma_u^+$ sodium state. Here the measured oscillations have period corresponding to the energy difference between the excited vibrational levels.

Popis objavljenih znanstvenih radova

1. T. Ban, D. Aumiler, S. Vdović, N. Vujičić, H. Skenderović i G. Pichler:
Coherent population dynamics in rubidium atoms excited by resonant $0-\pi$ pulses,
Phys. Rev. A **80**, 023425 (2009).
2. D. Aumiler, T. Ban, N. Vujičić, S. Vdović, H. Skenderović i G. Pichler:
Characterization of the optical frequency comb using modified direct frequency comb spectroscopy,
Appl. Phys. B **97**, 553 (2009).
3. H. Skenderović, T. Ban, N. Vujičić, D. Aumiler, S. Vdović i G. Pichler:
Cone emission induced by femtosecond excitation in rubidium vapor,
Phys. Rev. A **77**, 063816 (2008).
4. T. Varzhapetyan, A. Nersisyan, V. Babushkin, D. Sarkisyan, S. Vdović i G. Pichler:
Study of atomic transition self-broadening and shift with the help of a nano-cell,
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **41**, 185004 (2008).
5. T. Ban, D. Aumiler, H. Skenderović, S. Vdović, N. Vujičić i G. Pichler:
Cancellation of the coherent accumulation in rubidium atoms excited by a train of femtosecond pulses,
Phys. Rev. A **76**, 043410 (2007).
6. R. Beuc, M. Movre, B. Horvatić, M. Čopor, S. Vdović, A. Nevsesyan, T. Varzhapetyan, D. Sarkisyan i G. Pichler:
RbCs bands observation and interpretation,
Appl. Phys. B **88**, 111 (2007).
7. S. Vdović, T. Ban, D. Aumiler i G. Pichler:
EIT at $5^2S_{1/2} - 6^2P_{3/2}$ transition in a mismatched V-type rubidium system,
Opt. Commun. **272**, 407-413 (2007).

-
8. N. Vujičić, S. Vdović, D. Aumiler, T. Ban, H. Skenderović i G. Pichler:
Femtosecond laser pulse train effect on Doppler profile of cesium resonance lines,
Eur. Phys. J. D **41**, 447-454 (2007).
 9. S. Vdović, D. Sarkisyan i G. Pichler:
Absorption spectrum of rubidium and cesium dimers compact computer operated spectrometer,
Opt. Commun. **268**, 58-63 (2006).
 10. S. Vdović, R. Beuc, D. Aumiler, T. Ban i G. Pichler:
Absorption spectrum of Na-K-He mixture: experiment and theory,
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **38**, 3107 (2005).

Životopis

Silvije Vdović rođen je 24.8.1975. u Zagrebu.

Obrazovanje

Osnovna škola: Zagreb (1982.-1990.)

Srednja škola: X. Gimnazija, Zagreb (1990.-1994.)

Dodiplomski studij: Prirodoslovno-matematički fakultet u Zagrebu (1994.-2004.)
Fizički odsjek, smjer dipl. inž. fizike

Diplomski rad: *Širenje natrijevih i kalijevih rezonantnih linija u atmosferi helija: smeđi patuljci* (19.05.2004.), voditelj dr. sc. Goran Pichler

Poslijediplomski studij: Prirodoslovno-matematički fakultet u Zagrebu (2004.-2010.)
Fizički odsjek, smjer Atomska i molekulska fizika i astrofizika

Radno iskustvo

01.09.2004.- znanstveni novak

Institut za fiziku, Bijenička 46, Zagreb

projekti *Femtosekundna laserska spektroskopija i ultrahladne molekule* (2002-2006.) i *Femtosekundna laserska fizika atoma i molekula* (2007.-)

voditelj projekata dr. sc. Goran Pichler