

**MATEMATICKO-FYZIKÁLNÍ  
FAKULTA**  
Univerzita Karlova

## **DIPLOMOVÁ PRÁCE**

Bc. Adam Gindl

# **Generace vysokých harmonických frekvencí v krystalických materiálech**

Katedra chemické fyziky a optiky

Vedoucí diplomové práce: doc. RNDr. Martin Kozák, Ph.D.

Studijní program: Optika a optoelektronika

Studijní obor: FOOP

Praha 2023



Prohlašuji, že jsem tuto diplomovou práci vypracoval samostatně a výhradně s použitím citovaných pramenů, literatury a dalších odborných zdrojů. Tato práce nebyla využita k získání jiného nebo stejného titulu.

Beru na vědomí, že se na moji práci vztahují práva a povinnosti vyplývající ze zákona č. 121/2000 Sb., autorského zákona v platném znění, zejména skutečnost, že Univerzita Karlova má právo na uzavření licenční smlouvy o užití této práce jako školního díla podle § 60 odst. 1 autorského zákona.

V ..... dne .....

Podpis autora



Rád by som sa poďakoval pánovi doc. RNDr. Martinovi Kozákovi, Ph.D. za všetku podporu a odborné rady, ktoré mi počas písania tejto práce poskytol.



Název práce: Generace vysokých harmonických frekvencí v krystalických materiálech

Autor: Bc. Adam Gindl

Katedra: Katedra chemické fyziky a optiky

Vedoucí diplomové práce: doc. RNDr. Martin Kozák, Ph.D., Katedra chemické fyziky a optiky

Abstrakt: Interakce intenzivních ultrakrátkých laserových pulzů s materiálem v režimu silného pole nelineární optiky umožňuje zkoumání elektronových excitací v materiálu s vysokým časovým rozlišením. V této práci se věnujeme experimentálnímu výzkumu generace vysokých harmonických frekvencí v krystalickém křemíku. Cílem naší studie je dosáhnout modulace amplitudy a fáze generovaného pole použitím koherentní kontroly superpozicí optických polí na základní a její třetí harmonické frekvenci. K modulaci generovaného pole následně dochází vlivem změny relativního fázového posunu mezi budícími poli. Výsledné změny amplitudy a fáze generovaného pole jsou zkoumány pro různé poměry mezi budícími poli pomocí metod spektroskopie a spektrální interferometrie. Nově uvedená technika spektrální interferometrie umožňuje měření zpoždění emise vysokoenergetických fotonů na attosekundové časové škále.

Klíčová slova: ultrakrátké laserové pulzy, nelineární optika, vysoké harmonické frekvence

Title: Generation of high harmonic frequencies in crystalline materials

Author: Bc. Adam Gindl

Department: Department of Chemical Physics and Optics

Supervisor: doc. RNDr. Martin Kozák, Ph.D., Department of Chemical Physics and Optics

Abstract: The interaction of intense ultrashort laser pulses with materials in the strong field regime of nonlinear optics enables the study of electron excitations with high temporal resolution. In this thesis, we focus on the experimental research of high harmonic generation in crystalline silicon. The goal of our study is to reach the modulation of the amplitude and the phase of the generated field using coherence control by a superposition of optical fields at the fundamental and its third harmonic frequency. The modulation of the generated field occurs due to the change of the relative phase shift between the driving fields. The resulting amplitude and phase changes of the high harmonic field are investigated for different amplitude ratios of the driving fields using spectroscopic methods and spectral interferometry. The newly introduced spectral interferometry technique enables the measurement of the emission delay of high-energy photons on attosecond time scale.

Keywords: ultrashort laser pulses, nonlinear optics, high harmonic frequencies





Názov práce: Generácia vysokých harmonických frekvencií v kryštalických materiáloch

Autor: Bc. Adam Gindl

Katedra: Katedra chemické fyziky a optiky

Vedúci diplomovej práce: doc. RNDr. Martin Kozák, Ph.D., Katedra chemické fyziky a optiky

Abstrakt: Interakcia intenzívnych ultrakrátkych laserových pulzov s materiálom v režime silného poľa nelineárnej optiky umožňuje skúmanie elektrónových excitácií v materiáli s vysokým časovým rozlíšením. V tejto práci sa venujeme experimentálnemu výskumu generácie vysokých harmonických frekvencií v kryštalickom kremíku. Cieľom našej štúdie je dosiahnuť modulácie amplitúdy a fázy generovaného poľa použitím koherentnej kontroly superpozíciou optických polí na základnej a jej tretej harmonickej frekvencii. K modulácii generovaného poľa následne dochádza v dôsledku zmeny relatívneho fázového posunu medzi budiacimi poľami. Výsledné zmeny amplitúdy a fázy generovaného poľa sú skúmané pre rôzne pomery amplitúd medzi budiacimi poľami pomocou metód spektroskopie a spektrálnej interferometrie. Novo uvedená technika spektrálnej interferometrie umožňuje meranie omeškania emisie vysokoenergetických fotónov na attosekundovej časovej škále.

Kľúčové slová: ultrakrátke laserové pulzy, nelineárna optika, vysoké harmonické frekvencie



# Obsah

Úvod	3
<b>1 Teoretické základy</b>	<b>5</b>
1.1 Nelineárna optika . . . . .	5
1.1.1 Generácia tretej harmonickej frekvencie . . . . .	6
1.2 Nelineárna optika v režime silného poľa . . . . .	8
1.3 Generácia vysokých harmonických frekvencií v súbore atómov . .	11
1.4 Generácia vysokých harmonických frekvencií v pevných látkach .	13
1.5 Kvantová koherentná kontrola . . . . .	14
<b>2 Experimentálne usporiadanie</b>	<b>19</b>
2.1 Experimentálne usporiadanie pre generáciu a moduláciu poľa vyso- kých harmonických frekvencií generovaného v kryštalickom kremíka	19
2.2 Experimentálne usporiadanie pre spektrálnu interferenciu dvoch fázovo a časovo posunutých polí vysokých harmonických frekvencií	23
2.3 Schéma usporiadania . . . . .	26
<b>3 Výsledky meraní</b>	<b>27</b>
3.1 Radiálny profil zväzkov . . . . .	27
3.2 Generácia a charakterizácia poľa tretej harmonickej frekvencie . .	28
3.3 Generácia a modulácia poľa vysokých harmonických frekvencií po- mocou koherentnej kontroly . . . . .	34
3.3.1 Fázový posun modulácie poľa vysokých harmonických frek- vencií . . . . .	42
3.3.2 Viditeľnosť modulácie poľa vysokých harmonických frekvencií	46
3.3.3 Teoretická závislosť modulácie polí vysokých harmonických frekvencií . . . . .	49
3.4 Spektrálna interferencia dvoch fázovo a časovo posunutých polí vysokých harmonických frekvencií . . . . .	52
<b>4 Zhrnutie a diskusia výsledkov</b>	<b>63</b>
<b>Záver</b>	<b>67</b>
<b>Zoznam použitej literatúry</b>	<b>69</b>
<b>A Prílohy</b>	<b>73</b>
A.1 Potlačenie zväzku na druhej harmonickej frekvencii spektrálnym filtrom . . . . .	73
A.2 Meranie modulácie bez zaradenia polarizátora pred vzorku kremíka	74
A.3 Kalibrácia stredného výkonu pulzu tretej harmonickej frekvencie .	75
A.4 Interferenčné spektrá polí tretej harmonickej frekvencie . . . . .	77



# Úvod

V tejto diplomovej práci sa budeme zaoberať generáciou vysokých harmonických frekvencií v pevných kryštalických látkach, konkrétne vo vzorke kryštalického kremíka. Generácia vysokých harmonických frekvencií je nelineárny optický jav, ktorý nastáva v tzv. režime silného poľa nelineárnej optiky. Javy spojené s režimom silného poľa pozorujeme pri interakcii látky so silným optickým poľom, ktoré je porovnateľné alebo väčšie ako Coulombické pole medzi atómovými jadrami a valenčnými elektrónmi látky. Pole vysokých harmonických frekvencií sme generovali pomocou superpozície poľa na základnej frekvencii v strednej infračervenej oblasti spektra a poľa na odpovedajúcej tretej harmonickej frekvencii, pričom pri generácii sme využili tzv. koherentnú kontrolu. Študovali sme moduláciu signálu vysokých harmonických frekvencií pri zmene relatívnej fázy medzi generujúcimi poľami, ako aj pri zmene pomeru amplitúd týchto dvoch poľí. Fázové posuny generovaných vln na jednotlivých vysokých harmonických frekvenciách sme ďalej merali pomocou novo vyvinutej metódy spektrálnej interferometrie, v ktorej sme využívali dva časovo posunuté pulzy na základnej frekvencii. Táto metóda nám umožňovala merať omeškanie emisie vysokoenergetických fotónov s presnosťou niekoľko attosekúnd.

V prvej kapitole si popíšeme teoretické základy nelineárnej optiky. Vysvetlíme účinnú generáciu poľa tretej harmonickej frekvencie z poľa na základnej frekvencii splnením podmienky sfázovania. Taktiež načrtneme základné rozlíšenie medzi nelineárnou optikou v poruchovom režime a v režime silného poľa. Dynamiku spojenú s režimom silného poľa si priblížime pomocou klasického pohybu ionizovaného elektrónu v optickom poli. Jedným z výsledkov tejto dynamiky je práve generácia vysokých harmonických frekvencií. Tú vysvetlíme pre model súboru nezávislých atómov, ako aj pre model atómov v kryštalickej mriežke pevnej látky. Zároveň poukážeme na základné odlišnosti týchto dvoch modelov. Na záver kapitoly si predstavíme jav koherentnej kontroly a jeho využitie v našich experimentoch.

Popis jednotlivých meraní a usporiadania použitého pri experimentoch bude uvedený v druhej kapitole. Priblížime si využitie a parametre jednotlivých optických prvkov a súčiastok použitých v meraniach. Ďalej vysvetlíme prevedenie jednotlivých experimentov. Nakoniec si predstavíme základnú schému experimentálneho usporiadania.

V priebehu tretej kapitoly sa zameriame na výsledky jednotlivých meraní. Pri meraniach sme overili gaussovský radiálny profil a zmerali veľkosť stôp dopadajúcich na vzorku. Taktiež sme zvlášť pre jednotlivé polia podieľajúce sa na generácii vysokých harmonických frekvencií previedli meranie priepustnosti polarizátora použitého v usporiadaní. Ďalej sme sa zaoberali charakterizáciou generovaného poľa tretej harmonickej frekvencie, ktoré prispieva ku koherentnej kontrole generácie vysokých harmonických frekvencií. Konkrétne nás zaujímalo spektrum tohto poľa, jeho polarizácia a fázový posun v závislosti na polohe kryštálu, z ktorého ho generujeme.

Prvým z dvoch hlavných experimentov študujúcich generáciu vysokých harmonických frekvencií bola detekcia spektra vysokých harmonických frekvencií v závislosti na relatívnom fázovom posune poľí na základnej a tretej harmonickej

frekvencii. Meranie sme previedli pre rôzne pomery amplitúd generujúcich polí, pričom sme sledovali zmeny modulácie spektra piateho, siedmeho a deviateho harmonického rádu. Zmerali sme relatívny fázový posun generujúcich polí, pri ktorom jednotlivé rády vysokých harmonických frekvencií nadobúdali maximálnej intenzity a viditeľnosť modulácie intenzity jednotlivých rádov v závislosti na pomere amplitúd generujúcich polí. Na základe výsledkov tohto merania poukážeme na rozdiely medzi experimentálnymi hodnotami hĺbky modulácie vysokých harmonických frekvencií a poruchovým modelom. Na záver získané experimentálne dáta porovnáme s numerickými výpočtami.

V druhom experimente zaoberajúcom sa generáciou vysokých harmonických frekvencií sme sa venovali generácii dvoch v čase posunutých pulzov vysokých harmonických frekvencií, pričom prvý z týchto bol generovaný len z poľa na základnej frekvencii a druhý bol generovaný rovnako ako v prvom experimente, teda je závislý na relatívnom fázovom posune generujúcich polí. Tieto dva pulzy boli voči sebe fázovo a časovo posunuté, čo viedlo na ich spektrálnu interferenciu. Z polôh interferenčných maxím v spektre vysokých harmonických frekvencií sme boli schopní určiť relatívny fázový posun medzi týmto modulovaným a nemodulovaným poľom vysokých harmonických frekvencií.

Obsahom štvrtej kapitoly bude zhrnutie výsledkov jednotlivých experimentov. Budeme diskutovať jednotlivé pozorované javy, ako aj ich pôvod a dôsledky. Taktiež sa budeme zaoberať možnými nepresnosťami v meraniach a ich príčinami.

# 1. Teoretické základy

## 1.1 Nelineárna optika

Pri intenzitách žiarenia, s ktorými sa stretávame v bežnom živote, postačuje na popis jeho interakcie s látkou priblíženie lineárnej optiky. V tejto aproximácii závisí polarizácia látky lineárne na elektrickej intenzite dopadajúceho žiarenia  $P \sim E$ . K ďalším charakteristikám lineárnej optiky patrí lineárnosť Maxwellových rovníc, index lomu a absorpčný koeficient materiálu nezávisia na intenzite dopadajúceho žiarenia, taktiež platí princíp superpozície, teda optické zväzky sa vzájomne neovplyvňujú a frekvencia žiarenia sa prechodom cez materiál nemení. Zvyšovaním elektrickej intenzity optického poľa na hodnoty porovnateľné s poľom medzi atómami látky (rádovo  $10^5$  až  $10^8$  V m<sup>-1</sup> [1]) však začíname pozorovať v odozve látky nelinearity, čím sa stráca lineárna závislosť polarizácie látky na elektrickej intenzite. So zmenou intenzity žiarenia dochádza k zmenám indexu lomu a absorpčného koeficientu látky, jednotlivé optické zväzky sa cez interakciu s látkou vzájomne ovplyvňujú a taktiež prechodom cez materiál dochádza k zmene frekvencie žiarenia.

Ak s látkou interaguje dostatočne silné optické pole, ktoré je ale slabšie ako Coulombické pole držiace elektrón v atóme  $E < E_{at}$ , môžeme k tomuto poľu pristupovať ako k poruche a problém popisovať poruchovou teóriou, kedy hodnotu Coulombického poľa môžeme odhadnúť ako:

$$E_{at} \approx \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e}{a_B^2} = 5,14 \times 10^{11} \text{ V m}^{-1}, \quad (1.1)$$

kde sme zaviedli permitivitu vákuua  $\epsilon_0$ , elementárny náboj  $e$  a Bohrov polomer atómu vodíku  $a_B$ . Tomuto poľu odpovedá intenzita žiarenia:

$$I_{at} \approx 3,51 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}, \quad (1.2)$$

pričom dosiahnutie takýchto intenzít žiarenia s dnešnými modernými laserami nie je problém [2], [3].

Pri interakcii silného optického poľa s pevnou látkou však hraje dôležitú úlohu usporiadanie atómov v kryštalickej mriežke, kedy je vzdialenosť medzi atómami približne o rád väčšia ako Bohrov polomer zo vzťahu (1.1). Elektrické pole pôsobiace medzi valenčnými elektrónmi, ktoré tvoria chemické väzby a atómovými jadrami, je navyše tienené dielektrickou funkciou materiálu. Typické hodnoty takéhoto poľa sú potom rádovo:

$$E_{at}^{solid} \approx 10^{10} \text{ V m}^{-1}, \quad (1.3)$$

čo odpovedá intenzite žiarenia:

$$I_{at}^{solid} \approx 10^{13} \text{ W cm}^{-2}. \quad (1.4)$$

V prípade poruchovej teórie tak môžeme v skalárnej aproximácii polarizáciu  $P$  rozvinúť do Taylorovej rady podľa mocnín elektrickej intenzity poľa  $E$ :

$$P(E) = P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots = \epsilon_0 \left[ \chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots \right], \quad (1.5)$$

kde  $P^{(1)}$  označujeme ako lineárnu polarizáciu, teda časť polarizácie, ktorá popisuje lineárnu odozvu látky. Vyššie rády polarizácie, ktoré sme označili  $P^{(n)}$  pre  $n > 1$ , preto popisujú nelinearity v odozve látky. Podľa rádu polarizácie, ku ktorému sa pozorovaný nelineárny efekt viaže, tak zavádzame nelineárne optické javy  $n$ -tého rádu.

Ďalej sme tiež zaviedli susceptibilitu  $n$ -tého rádu  $\chi^{(n)}$ . Vo všeobecnom vektorovom prípade predstavuje susceptibilita  $n$ -tého rádu  $\chi^{(n)}$  tenzor  $(n + 1)$ -ého rádu. V takom prípade môžeme nelineárnu polarizáciu druhého rádu zapísať po zložkách ako:

$$P_i^{(2)}(\omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 \sum_{j,k=1,2,3} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m; \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m). \quad (1.6)$$

V látke následne dochádza k interakcii dvoch vstupujúcich polí na frekvenciách  $\omega_n$  a  $\omega_m$  a poľa daného ich kombináciou. Medzi nelineárne optické javy druhého rádu tak patrí generácia druhej harmonickej frekvencie ( $\omega_n = \omega_m$ ), generácia súčtovej a rozdielovej frekvencie ( $\omega_n \pm \omega_m$ ) a optické usmernenie (statické pole). Tieto javy nepozorujeme pre centrosymetrické materiály, čo sa dá jednoducho dokázať zo vzťahu (1.6) inverziou súradných osí.

Podobne môžeme zapísať nelineárnu polarizáciu tretieho rádu po zložkách v tvare:

$$P_i^{(3)}(\omega_p + \omega_q + \omega_r) = \epsilon_0 \sum_{j,k,l=1,2,3} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_p + \omega_q + \omega_r; \omega_p, \omega_q, \omega_r) \times E_j(\omega_p) E_k(\omega_q) E_l(\omega_r). \quad (1.7)$$

K základným nelineárnym optickým javom tretieho rádu tak prislúcha generácia tretej harmonickej frekvencie ( $\omega_p = \omega_q = \omega_r$ ), rôzne štvorvlnné parametrické generácie ( $\omega_p \pm \omega_q \pm \omega_r$ ) a optický Kerrov jav, kedy pri vysokých intenzitách žiarenia pozorujeme intenzitnú závislosť indexu lomu a absorpčného koeficientu interagujúcej látky, a ktorého dôsledkom je napríklad automodulácia fázy alebo autofokusácia.

Základy nelineárných optických javov druhého a tretieho rádu, sú bližšie popísané napríklad v prácach [1], [4], alebo [5]. Detailnejší popis najznámejších nelineárných optických javov, ako aj teórie, ktorá sa k ním viaže, môžeme nájsť v [2], [3], [6] alebo [7].

### 1.1.1 Generácia tretej harmonickej frekvencie

V experimentoch bude hrať dôležitú úlohu pole tretej harmonickej frekvencie (angl. *third harmonic generation*, THG), jav generácie tohto poľa si preto bližšie popíšeme. Pre monochromatické pole s amplitúdou  $A$  a frekvenciou  $\omega$  v tvare:

$$E(t) = A \cos(\omega t) = \frac{1}{2} A \exp(i\omega t) + \text{c.c.}, \quad (1.8)$$

si môžeme nelineárnu polarizáciu tretieho rádu vyjadriť ako:

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t)^3 = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} A^3 [\cos(3\omega t) + 3 \cos(\omega t)]. \quad (1.9)$$



Prvý člen predošlého výrazu, kmitajúci na frekvencii  $3\omega$ , predstavuje generáciu tretej harmonickej frekvencie. Druhý člen kmitá na rovnakej frekvencii ako základné pole, do polarizácie látky na frekvencii  $\omega$  tak bude vnášať závislosť na intenzite dopadajúceho žiarenia, čo povedie na optický Kerrov jav.

Pre účinnú generáciu poľa tretej harmonickej frekvencie musí byť splnená podmienka sfázovania medzi vlničkami základnej  $k_\omega$  a tretej harmonickej frekvencie  $k_{3\omega}$  v tvare  $\Delta k = 3k_\omega - k_{3\omega} = 0$ , kedy uvažujeme kolineárne usporiadanie a podmienka má tak skalárny charakter. Podmienku si môžeme prepísať pomocou indexu lomu ako:

$$n(\omega) = n(3\omega). \quad (1.10)$$

Vyššie uvedenú rovnicu však nie je možné splniť v oblasti normálnej disperzie v opticky izotropnom materiáli, kedy index lomu monotónne rastie s frekvenciou. Účinnú generáciu je však možné dosiahnuť použitím anizotropného nelineárneho kryštálu, kedy sa jeden zo zväzkov kryštálom šíri ako riadny, má teda polarizáciu kolmú na optickú os kryštálu, a druhý ako mimoriadny, ktorého polarizácia naopak na optickú os kolmá nie je. Takto je možné dosiahnuť rovnosti (1.10). Index lomu mimoriadneho zväzku  $n_e(\theta)$  závisí na uhle  $\theta$  medzi smerom šírenia mimoriadneho zväzku a optickou osou kryštálu. Týmto spôsobom môžeme dosiahnuť uhlového ladenia, kedy zmenou uhlu  $\theta$  meníme mimoriadny index lomu na intervale medzi hlavnou hodnotou mimoriadneho indexu lomu  $n_e$  pre  $\theta = 90^\circ$  a riadneho indexu lomu  $n_o$  pre  $\theta = 0^\circ$ . Pre uhlovú závislosť mimoriadneho indexu lomu platí vzťah [8], [9]:

$$n_e(\omega, \theta) = \frac{n_o(\omega) n_e(\omega)}{[n_e^2(\omega) \cos^2 \theta + n_o^2(\omega) \sin^2 \theta]^{1/2}}. \quad (1.11)$$

Podľa toho, ako sa anizotropným kryštálom šíri fundamentálny zväzok a zväzok tretej harmonickej frekvencie, môžeme sfázovanie rozdeliť do dvoch typov. Pre negatívny jednoosý kryštál sa pri sfázovaní zväzok tretej harmonickej frekvencie vždy šíri ako mimoriadny, potom, ak sa všetky tri príspevky fundamentálneho zväzku šíria ako riadne, dochádza k sfázovaniu typu I v tvare ooo-e. Ak sa dva príspevky fundamentálneho zväzku šíria ako riadne a jeden ako mimoriadny, resp. dva ako mimoriadne a jeden ako riadny, dochádza k sfázovaniu typu II v tvare ooe-e, resp. oee-e. Podmienky sfázovania majú následne tvar [3]:

$$n_o(\omega) = n_e(3\omega, \theta) \quad \text{typ I (ooo-e)}, \quad (1.12)$$

$$2n_o(\omega) + n_e(\omega, \theta) = 3n_e(3\omega, \theta) \quad \text{typ II (ooe-e)}, \quad (1.13)$$

$$n_o(\omega) + 2n_e(\omega, \theta) = 3n_e(3\omega, \theta) \quad \text{typ II (oee-e)}. \quad (1.14)$$

Pri pozitívnom anizotropnom kryštáli postupujeme analogicky, pričom ale proti predošlému prípadu dôjde k prehodeniu riadneho a mimoriadneho zväzku. Jednotlivé sfázovania teda budú mať pre typ I tvar eee-o a pre typ II tvar eeo-o resp. eoo-o. Dosadením výrazu (1.11) pre uhlovú závislosť mimoriadneho indexu lomu do odpovedajúcej podmienky sfázovania (1.12)–(1.14) dostaneme rovnicu pre uhol sfázovania  $\theta$ , pri ktorom je splnená podmienka sfázovania a vo výsledku tak dochádza k efektívnej generácii poľa na tretej harmonickej frekvencii.

## 1.2 Nelineárna optika v režime silného poľa

Poruchovou teóriou sme schopní popísať širokú paletu nelineárnych optických javov. Problém však nastáva pri ďalšom zvyšovaní intenzity dopadajúceho svetla, kedy pole žiarenia dosahuje hodnoty porovnateľné alebo dokonca väčšie ako je Coulombické pole pôsobiace na elektróny v látke  $E \geq E_{at}$ . V takom prípade mocninná rada (1.5) prestáva konvergovať a pôsobiace pole už nemôžeme považovať za poruchu. Systém sa nachádza v režime silného poľa, kedy namiesto poruchovej teórie musíme zvoliť nový postup.

Takýchto vysokých špičkových intenzít žiarenia (1.2) sa dosahuje stlačením vysokoenergetických laserových pulzov na femtosekundové dĺžky ( $10^{-15}$  s). Pri takto krátkych pulzoch sa dostávame do stavu, kedy pulz obsahuje len niekoľko períód optického poľa. Nelinearity sú v takomto prípade riadené priamo optickým poľom, nie jeho obálkou ako je tomu v poruchovom režime. V dnešnej dobe sme schopní vytvárať pulzy blížiac sa jednej període poľa pod obálkou [10].

Na základné rozlíšenie týchto dvoch režimov interakcie svetla s látkou sa používa Keldyshov parameter:

$$\gamma_K = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}, \quad (1.15)$$

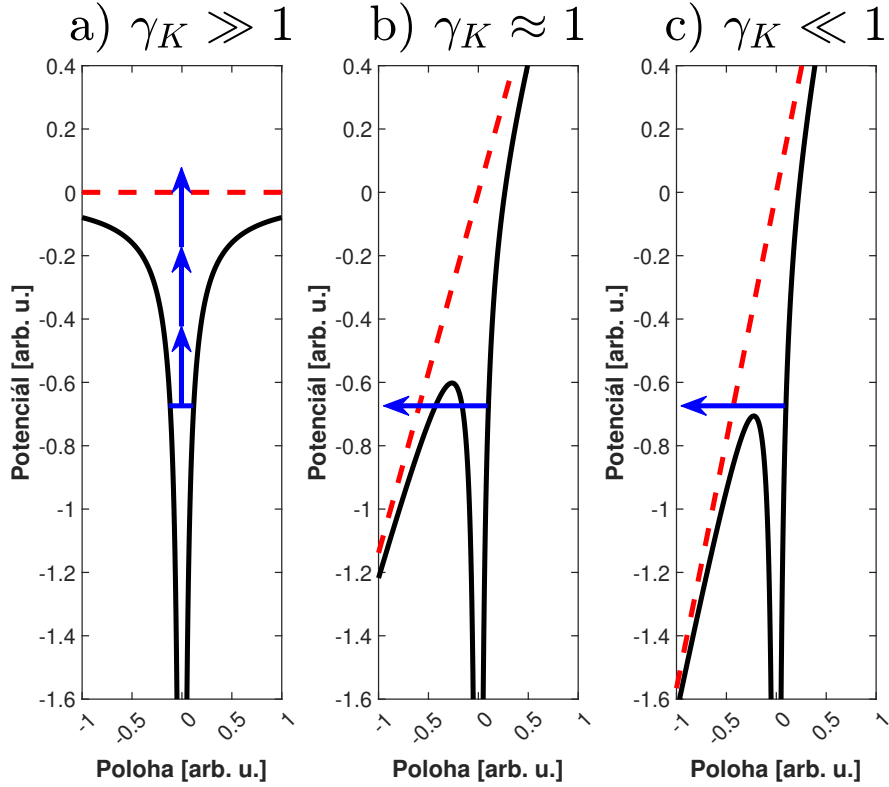
kde sme zaviedli veličinu ionizačný potenciál  $I_p$ , ktorý predstavuje energiu potrebnú k uvoľneniu elektrónu z obalu atómu a ponderomotívny potenciál  $U_p$ , ktorý popisuje strednú kinetickú energiu elektrónu oscilujúceho v elektromagnetickom poli dopadajúceho pulzu. K ponderomotívnemu potenciálu sa neskôr vrátíme.

Ak je Keldyshov parameter  $\gamma_K \gg 1$ , prevláda ionizácia viacfotónovou absorpciou, ako je znázornené na obrázku 1.1 a), môžeme teda použiť poruchovú teóriu. Ak ale  $\gamma_K \approx 1$ , tak začíname pozorovať tunelovú ionizáciu elektrónov z obalu atómu látky, teda prípad na obrázku 1.1 b) a nachádzame sa v režime silného poľa. V tomto režime je elektrón urýchľovaný laserovým poľom, čím po ionizácii dosahuje vysoké hodnoty energie. Pri veľmi vysokej intenzite žiarenia  $\gamma_K \ll 1$  sme schopní tieto elektróny ionizovať cez zníženú bariéru, čo je vidieť na obrázku 1.1 c) a urýchliť ich až na relativistické rýchlosti [3]. Relativistické javy v nelineárnej optike sú bližšie popísané v práci [2].

Pri popise pohybu ionizovaného elektrónu môžeme zanedbať vplyv relativistických javov a magnetického poľa. Ako systém berieme súbor nezávislých atómov a žiarenie nech je laserový pulz  $\mathbf{E}(t) = E(t)\hat{x}$  lineárne polarizovaný pozdĺž osi x. Pôsobením intenzívneho laserového poľa na súbor atómov dochádza k „nakláňaniu“ Coulombického potenciálu atómu a tunelovej ionizácii elektrónov z obalu cez tento potenciál do vákuua, ako je znázornené na obrázku 1.1 b). Po ionizácii elektrónu môžeme s dostatočnou presnosťou zanedbať vplyv poľa atómu, pohyb elektrónu je preto riadený len optickým poľom. Predpokladajme pole v tvare:

$$E(t) = E_0 f(t) \cos(\omega_L t + \phi_0), \quad (1.16)$$

kde sme zaviedli amplitúdu poľa  $E_0$ , pomaly premennú obálkovú funkciu  $f(t)$ , frekvenciu laserového poľa  $\omega_L$  a fázu poľa  $\phi_0$  v momente ionizácie elektrónu  $t = 0$ . Fáza  $\phi_0$  preto predstavuje relatívny fázový posun medzi optickým poľom a jeho pomaly premennou obálkou, zvykne sa preto nazývať aj CE fáza (angl. *carrier-envelope*). Pri pulzoch obsahujúcich iba pár períód optického poľa tak výsledná nelinearita silne závisí na hodnote tejto fázy.



Obr. 1.1: Zmeny Coulombického potenciálu a ionizácie elektrónu vplyvom pôsobenia optického poľa: a) viacfotónová ionizácia, b) tunelová ionizácia, c) ionizácia cez zníženu bariéru. Červená prerušovaná čiara značí sklon potenciálu a modrá šípka predstavuje ionizáciu elektrónu.

Pohyb ionizovaného elektrónu mimo atómu popíšeme pohybovou rovnicou v jednej dimenzii s Lorentzovou silou na pravej strane, pričom Coulombickú silu sme zanedbali, podobne ako v [2] alebo [3]:

$$m_e \ddot{x}(t) = -eE_0 f(t) \cos(\omega_L t + \phi_0), \quad (1.17)$$

kde sme zaviedli hmotnosť elektrónu  $m_e$  a okamžitú polohu elektrónu  $x(t)$ . Integráciou rovnice (1.17) dostaneme okamžitú rýchlosť elektrónu (predpokladáme, že elektrón bol v momente ionizácie v pokoji):

$$v(t) = -\frac{eE_0}{m_e \omega_L} [f(t) \sin(\omega_L t + \phi_0) - f(0) \sin \phi_0]. \quad (1.18)$$

Pohyb elektrónu tak na základe rovnice (1.18) môžeme rozdeliť na osciláciu okolo materského jadra (prvý člen) a posuvný pohyb od jadra (druhý člen), ktorý je daný počiatočnou fázou  $\phi_0$ . Ďalšou integráciou, kedy predpokladáme, že materské jadro je v počiatku súradnej sústavy, dostaneme okamžitú polohu elektrónu voči jadru:

$$x(t) = \frac{eE_0}{m_e \omega_L^2} [f(t) \cos(\omega_L t + \phi_0) - f(0) \cos \phi_0] + \frac{eE_0}{m_e \omega_L} t f(0) \sin \phi_0. \quad (1.19)$$

Člen v zátvorke predstavuje osciláciu elektrónu od a k jadru a posledný člen predošlého výrazu zjavne rastie lineárne s časom, elektrón sa teda pre nenulovú

počiatocnú fázu od jadra postupne vzdaluje. Amplitúda oscilácii  $eE_0/m_e\omega_L^2$  sa zvykne nazývať ponderomotívny polomer a pre typické hodnoty intenzity žiarenia pri takýchto experimentoch dosahuje rádovo nanometre. Elektrón sa preto od jadra vzdaluje na vzdialenosti omnoho väčšie ako je polomer atómu. Predpoklad, že elektrón nie je ovplyvnený polom jadra, je preto oprávnený.

Vo vzťahu (1.15) sme zaviedli veličinu ponderomotívny potenciál  $U_p$ , ktorý sme definovali ako strednú kinetickú energiu  $\varepsilon_k$  ionizovaného elektrónu. Na základe vzťahu (1.18) preto môžeme spočítať strednú hodnotu cez jednu periódu  $T$  ako:

$$U_p(t) = \langle \varepsilon_k(t) \rangle_T = \frac{1}{2} m_e \langle v^2(t) \rangle_T = \frac{e^2 E_0^2 f^2(t)}{4m_e \omega_L^2}. \quad (1.20)$$

V závislosti na počiatocnej fáze pôsobiaceho laserového poľa tak môže dôjsť k jednému alebo viacerým zrážkam elektrónu s materským jadrom (počiatocná fáza je malá, vo vzťahu (1.19) prevláda člen v zátvorke), alebo k zrážke nedôjde vôbec a elektrón sa postupne vzdaluje od jadra (počiatocná fáza je veľká, prevláda posledný, v čase lineárny člen). Na počiatocnej fáze závisí tiež rýchlosť, s ktorou sa elektrón s jadrom zráža, a teda aj výsledná kinetická energia elektrónu v momente zrážky. Celková energia elektrónu v momente návratu k jadru  $\varepsilon_f$  je tak funkciou počiatocnej fázy optického poľa:

$$\varepsilon_f(\phi_0) = \varepsilon_k(\phi_0) + I_p. \quad (1.21)$$

Numerickým riešením rovnice  $x(t) = 0$  a následným výpočtom odpovedajúcej kinetickej energie dostávame maximálnu energiu elektrónu v momente zrážky pre počiatocnú fázu  $\phi_0 = 18^\circ$  v hodnote [3]:

$$\varepsilon_{f,max} = 3,17U_p + I_p. \quad (1.22)$$

Táto hodnota fázy je v blízkosti maxima poľa (1.16), kde je pravdepodobnosť tunelovej ionizácie najvyššia (potenciál sa najviac „nakláňa“). Veľká časť ionizovaných elektrónov má preto energie v blízkosti (1.22). Hodnotu  $\varepsilon_{f,max}$  je možné ešte ďalej zvýšiť, a to napríklad použitím chirpovaných laserových pulzov o pár optických cykloch, ako je ukázané v [11].

V momente zrážky elektrónu s materským jadrom môže dôjsť k jednej z nasledujúcich možností:

- elastický rozptyl elektrónu na materskom jadre, kedy takéto elektróny dosahujú vysokých kinetických energií,
- rekombinácia elektrónu do jeho základného stavu za vyžiarenia prebytočnej energie v podobe fotónu vysokej harmonickej frekvencie (angl. *high harmonic generation*, HHG),
- neelastický rozptyl - ionizácia sekundárneho elektrónu (angl. *non-sequential double ionization*, NSDI),
- neelastický rozptyl - excitácia viazaného elektrónu do vyššieho energetického stavu v obale.

Jednotlivé možnosti sú bližšie rozpísané v článku [12]. Jeden z prvých použití tohto trojstupňového semiklasického modelu zloženého z ionizácie elektrónu, jeho pohybu mimo atóm a následnej zrážky s materským jadrom nájdeme v [13] a [14] a je podrobnejšie popísaný v [15] alebo v [16]. V tejto práci sa podrobne venujeme experimentálnemu pozorovaniu a kontrole druhého popisovaného javu, teda generácii koherentných vysokoenergetických fotónov vo forme vysokých harmonických frekvencií.

### 1.3 Generácia vysokých harmonických frekvencií v súbore atómov

Pri späťnej zrážke ionizovaného elektrónu s materským jadrom môže dôjsť k jeho rekombinácii, pričom sa prebytočná kinetická energia elektrónu urýchleného v laserovom poli vyžiari v podobe fotónu o energii danej vzťahom (1.21). To znamená, že energia vyžiareného fotónu môže dosiahnuť maximálne hodnoty (1.22), rovnako ako energia elektrónu. K efektívnej generácii žiarenia však dochádza len počas prvej zrážky elektrónu s atómom, čo je spôsobené rozťahovaním elektrónového vlnového balíka mimo atómový obal kvôli disperzii [12].

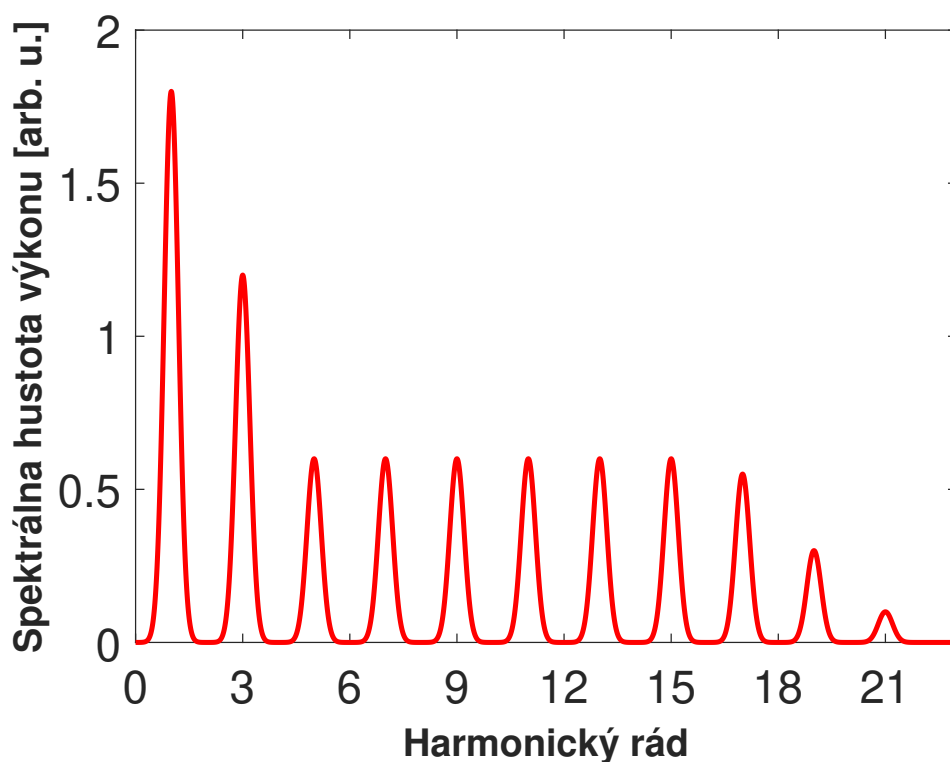
Vzhľadom na kosínusový priebeh nami zvoleného laserového poľa (1.16) sa proces popísaný v predošlej podkapitole opakuje každú polperiódu  $T/2 = \pi/\omega_L$ . Časový priebeh emitovaného svetla má tak podobu diskretných pulzov vzdialených o túto polperiódu. Spektrum žiarenia získané Fourierovou transformáciou bude mať preto taktiež diskretný charakter harmonických frekvencií vzdialených  $2\omega_L$ , ako je znázornené na obrázku 1.2. Vplyvom toho, že izolovaný atóm má stred symetrie, vzniká pri interakcii lineárne polarizovaného svetla s atómom inverzná symetria. To má za následok vznik iba nepárnych rádov vysokých harmonických frekvencií v pozorovanom spektre  $q\hbar\omega_L$ , kde  $q \in \mathbb{N}$  je nepárne prirodzené číslo a  $\hbar$  je redukovaná Planckova konštanta. Pre necentrosymetrické systémy však bude dochádzať k porušeniu časovej symetrie generovaných pulzov, čo povedie k nenulovým amplitúdam párných rádov harmonických frekvencií.

V experimentoch sa pozoruje podobná efektivita jednotlivých rádov vysokých harmonických frekvencií, z čoho je možné usúdiť, že sa určite nejedná o jav popísateľný v poruchovom režime, kde efektivita procesov s ich rádom klesá (pozri obrázok 1.2). Taktiež sa pozoruje silný pokles efektivity generácie od určitého harmonického rádu  $q_{max}$ , podobne ako vo vzťahu (1.22). Jeden z prvých prípadov pozorovania generácie vysokých harmonických frekvencií bol na vzorkách vzácnych plynov [17]. Harmonické frekvencie je možné generovať do veľmi vysokých rádov, napríklad až  $q = 221$  [18].

Generácia vysokých harmonických frekvencií je výborným príkladom kvantového charakteru interakcie súboru nezávislých atómov so silným optickým poľom. Výsledné diskretné spektrum je dôsledkom interakcie častice so sebou samou. Elektrónové vlnové balíky uvoľnené v okolí dvoch po sebe idúcich maximách optického poľa zo svojho základného stavu vo valenčnom páse materského atómu a šíriace sa rovnakým smerom spolu budú interferovať, čo bude mať za následok vznik diskretného elektrónového spektra, kedy jednotlivé hladiny budú od seba ekvidistantne vzdialené o energiu fotónu laserového poľa. Tento jav sa nazýva nadprahová ionizácia (angl. *above-threshold ionization*, ATI). Analogicky fotó-

nové vlnové balíky uvoľňované týmito elektrónmi pri zrážke s materským jadrom každú polperiódu spolu budú interferovať, čo vedie na vznik diskrétneho spektra vysokých harmonických frekvencií. Diskrétna nadprahová ionizácia a generácia vysokých harmonických frekvencií sú tak dôsledkom jednoelektrónovej interferencie a časovej koherencie laserového poľa [12].

Ku generácii vysokých harmonických frekvencií sa zvyknú používať femtosekundové laserové pulzy v infračervenej oblasti, ktoré dosahujú potrebných špičkových intenzít. Keďže k účinnej ionizácii elektrónov dochádza len v určitej časti optického cyklu laserového poľa, výsledné pulzy budú kratšie ako tie generujúce. Takýmto spôsobom je možné získať pulzy o dĺžke desiatok attosekúnd ( $\sim 10^{-17}$  s), čím je možné dosiahnuť vysokého časového rozlíšenia v spektroskopii. Takéto pulzy sa frekvenčne pohybujú od ultrafialovej ( $q \sim 10^1$ ) až k mäkkej röntgenovej ( $q \sim 10^2$ ) spektrálnej oblasti [12]. Bližší popis a rôzne metódy generácie attosekundových pulzov môžeme nájsť v [19].



Obr. 1.2: Typický priebeh spektra vysokých harmonických frekvencií pri interakcii súboru nezávislých atómov a silného optického poľa podľa [2], [11] a [16]. Prvý a tretí rád odpovedajú poruchovému režimu, kedy efektivita generácie klesá, vyššie rády potom vytvárajú plató, čo je prejavom režimu silného poľa. Pre vysoké rády efektivita generácie klesá, kedy elektróny rekombinujú s maximálnou možnou energiou. Spektrum je len ilustračné.

## 1.4 Generácia vysokých harmonických frekvencií v pevných látkach

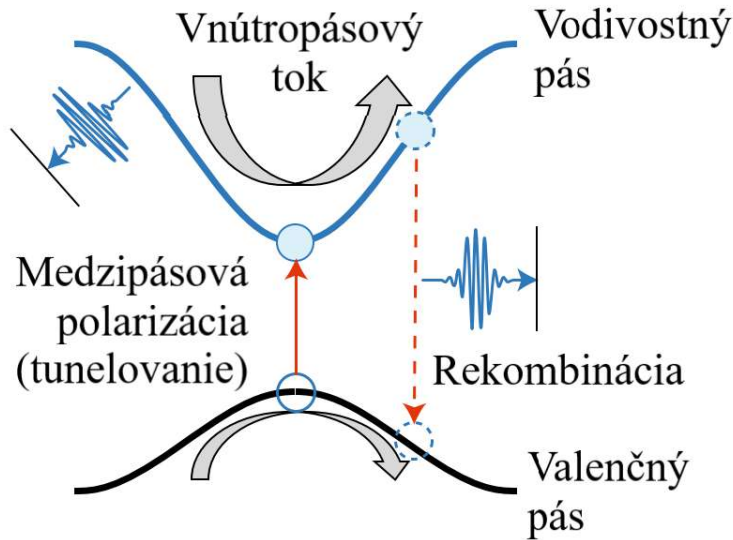
Doteraz sme uvažovali interakciu silného optického poľa so súborom nezávislých atómov (napr. plyn). Generácia vysokých harmonických frekvencií ale bola pozorovaná aj pri interakcii s pevnými kryštalickými materiálmi [20], [21], [22]. Výsledné spektrum generovaného žiarenia presahuje energiu zakázaného pásu materiálu a pozoruje sa plató vysokých harmonických frekvencií zakončené prudkým poklesom efektivity generácie, rovnako ako pri plynach. Rozdiel je ale pozorovaný pri potrebnej energii v generujúcom laserovom pulze, kedy pri interakcii s kryštalickým materiálom dochádza ku generácii vysokých harmonických frekvencií už od nižších energií, než pri plynach, čo vysvetľuje vzťah (1.3). Taktiež maximálny rád harmonických frekvencií rastie v modeli nezávislých atómov s elektrickou intenzitou poľa kvadraticky podľa (1.20) a (1.22), u interakcie silného optického poľa s kryštalickým materiálom sa ale pozoruje lineárna závislosť. K popisu tohto javu tak bude nutné zvolit iný prístup než doteraz, kedy úlohu bude hrať Coulombické pole husto usporiadaných atómov v mriežke.

V pevných kryštalických látkach dochádza vplyvom hustého usporiadania atómov v kryštalickej mriežke k prekryvu orbitálov susedných atómov. Namiesto diskretných elektrónových hladín, aké sme mali v modeli nezávislých atómov, tak dostávame spojitú pásovú štruktúru. Elektróny a diery budú pri zanedbaní ich rozptylu vo svojich pásoch periodicky urýchľované vplyvom pôsobenia optického poľa, kedy pre dostatočne silné pole dochádza k ich difrakcii na hraniciach Brillouinovej zóny, nazývanej Blochove oscilácie. V reálnom priestore to odpovedá rozptylu elektrónu od periodického Coulombického potenciálu jadier v kryštalickej mriežke, pričom pozorujeme kolektívnu odozvu atómov. Proces nastáva každú polperiódu optického poľa s maximálnou rýchlosťou opakovania danou Blochovou frekvenciou:

$$\omega_B = \frac{eE_0}{\hbar d}, \quad (1.23)$$

kde sme zaviedli mriežkovú konštantu v smere polarizácie poľa  $d$ . Vodivostný elektrón sa tak kvôli tesnému usporiadaniu jadier vždy nachádza v ich blízkosti, dôsledkom čoho už nemôžeme zanedbať vplyv poľa jadier na pohyb elektrónu. Disperzia tak už nie je parabolická ako u voľnej častice, čo vedie na závislosť grúpovej rýchlosti a efektívnej hmotnosti elektrónu na jeho hybnosti. Vplyvom anharmonicity v pásoch tak pri vnútropásovom toku elektrónov a dier pri Blochových osciláciách dochádza k vyžarovaniu vysokoenergetických fotónov odpovedajúcich energii získanej pri urýchľovaní častíc laserovým poľom. Maximálna možná vyžiarená energia je tak úmerná Blochovej frekvencii (1.23), a teda lineárne závislá na amplitúde optického poľa.

Zvyšovaním elektrickej intenzity dopadajúceho optického poľa dochádza k nárastu pravdepodobnosti medzipásového prechodu elektrónu z valenčného do vodivostného pásu. S nárastom okamžitého energetického rozdielu medzi pásmi táto pravdepodobnosť exponenciálne klesá. Pri urýchľovaní elektrónu vo valenčnom páse optickým poľom tak môže dôjsť k jeho prechodu do vodivostného pásu za vzniku diery. Medzi vodivostným a valenčným pásom týmto vzniká medzipásová polarizácia, kedy pri následnej rekombinácii dôjde k vyžiareniu fotónov vysokých harmonických frekvencií.



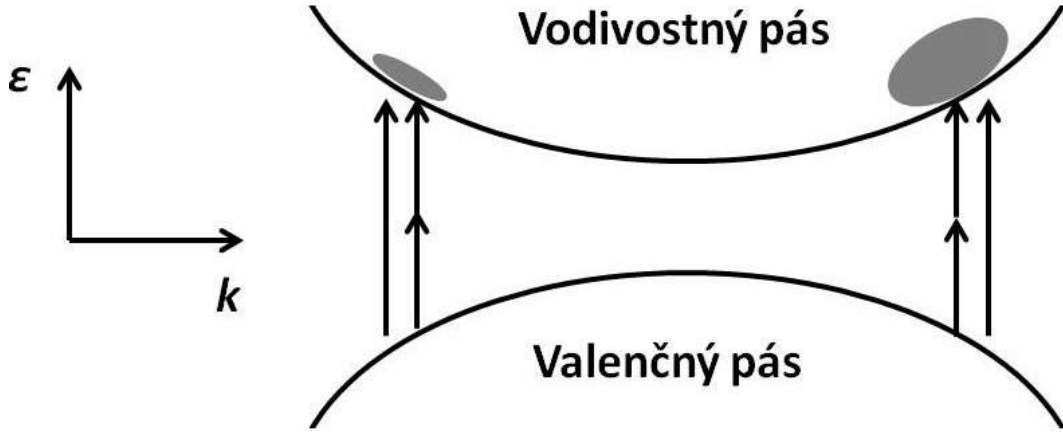
Obr. 1.3: Schéma generácie vysokých harmonických frekvencií v pevných látkach. Hrubou šípkou je znázornený vnútropásový tok, tenkou šípkou medzipásová polarizácia. Prevzaté z [20].

Ku generácií vysokých harmonických frekvencií z kryštalických látok teda môže dôjsť dvoma spôsobmi (pozri obrázok 1.3). Buď dochádza k vyžarovaniu vplyvom nelineárneho vnútropásového toku elektrónov a dier, alebo pri rekombinácii elektrónu z vodivostného pásu vplyvom medzipásovej polarizácie. Pri nie príliš vysokých intenzitách sa ukazuje ako dominantný proces medzipásová polarizácia medzi valenčným a prvým vodivostným pásom. S rastúcou intenzitou generujúceho žiarenia však dochádza k zapojeniu vyšších vodivostných pásov a k Blochovým osciláciám, kedy je elektrón za polperiódu poľa urýchlený až ku kraju Brillouinovej zóny. Uvedené má za následok tvorbu viacerých platô v spektre harmonických frekvencií s príslušnými maximálnymi energiami. Ukazuje sa tiež, že vnútropásový a medzipásový kanál sa líši v časovo-frekvenčnom profile vysokých harmonických frekvencií. Detailnejší numerický výpočet pomocou Blochovej a Houstonovej báze vlnových funkcií nájdeme v [20] a [23]. Bližší popis medzipásového kanálu pomocou analýzy sedlových bodov môžeme nájsť v [24].

## 1.5 Kvantová koherentná kontrola

Pri generácii polí vysokých harmonických frekvencií v polovodičoch dochádza k prechodu elektrónov z valenčného do vodivostného pásu za vzniku elektrón-dierového páru. Pár je následne laserovým poľom v pásoch urýchľovaný cez značnú časť Brillouinovej zóny a rekombinuje za vyžarovania fotónu o energii odpovedajúcej šírke zakázaného pásu v danom mieste, čo vedie na generáciu poľa vysokých harmonických frekvencií. V reálnom priestore dochádza k urýchľovaniu elektrónu a diery v opačnom smere pozdĺž polarizácie laserového poľa s rýchlosťou danou tvarom pásu, v ktorom sa daná častica pohybuje. Pri následnom otočení orientácie poľa a opätovnom strete dochádza k ich rekombinácii. Zo symetrie interakcie tak v spektre pozorujeme nepárne rády harmonických frekvencií, ako sme diskutovali v predošlých podkapitolách.



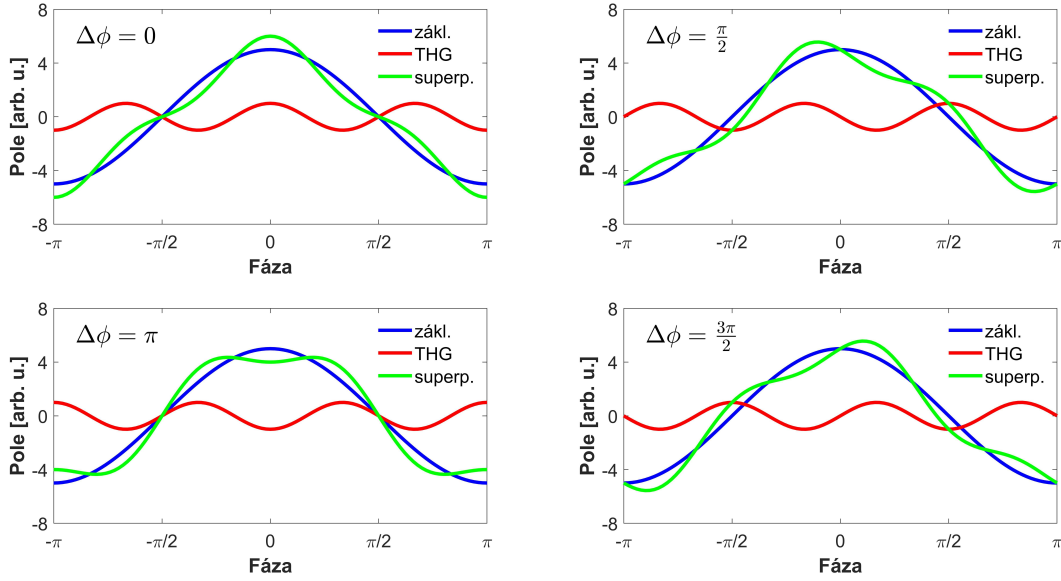


Obr. 1.4: Pásový diagram priameho polovodiča pri súčasnej jedno- a dvojfotónovej absorpcii (znázornené jednou a dvomi šípkami) v poruchovom režime. Kvantová koherentná kontrola sa prejavuje v asymetrickom rozdelení hustoty elektrónov vo vodivostnom páse (znázornené sivou oblasťou).

Pri porušení tejto symetrie však môže dôjsť k modulácii signálu vysokých harmonických frekvencií. V poruchovom režime nelineárnej optiky budeme uvažovať súčasnú dvoj- a jednofotónovú absorpciu od dvoch koherentných laserových zväzkov na základnej  $\omega$  a druhej harmonickej frekvencii  $2\omega$ , ktorá bola v minulosti vyvinutá pre kontrolu prúdu v polovodičoch [25]. Predpokladáme platnosť  $\hbar\omega < \varepsilon_g < 2\hbar\omega$ , kde  $\varepsilon_g$  je šírka zakázaného pásu polovodiča. Amplitúdy viacfotónových prechodov sú popísané Fermiho zlatým pravidlom, prípadne iným vyšším rádom poruchovej teórie. Dochádza tak k dvom prechodom medzi rovnakou dvojicou stavov vo valenčnom a vodivostnom páse. Amplitúdy jedno- a dvojfotónového prechodu spolu budú interferovať a následkom opačnej parity týchto procesov dôjde k vzniku asymetrického rozdelenia elektrónov vo vodivostnom páse. Takéto nehomogénne rozdelenie elektrónov vo vodivostnom páse následne závisí na relatívnej fáze poľa základnej a druhej harmonickej frekvencie. Tento princíp sa zvykne nazývať kontrola kvantovej interferencie alebo kvantová koherentná kontrola. Proces kontroly kvantovej interferencie je schematicky znázornený na obrázku 1.4, kedy počet šípkov medzi valenčným a vodivostným pásom odpovedá počtu absorbovaných fotónov a sivá oblasť vo vodivostnom páse vyjadruje asymetrickú hustotu elektrónov.

Dobrou analógiou tomuto problému je Youngov dvojštrbinový experiment. Svetlo tu prechádza z východiskového do finálneho bodu po dvoch rôznych dráhach, podobne ako elektrón prechádza zo svojho východiskového do finálneho stavu cez dva rôzne kanály. Následne koherentné svetlo z týchto dvoch rôznych dráh spolu interferuje, v dôsledku čoho pozorujeme na tienitku moduláciu intenzity žiarenia. Podobne spolu interferujú elektrónové vlnové balíky v dvoch kanáloch a vo výsledku pozorujeme moduláciu rozdelenia elektrónov vo vodivostnom páse [25].

Pri zvyšovaní intenzity generujúceho zväzku sa dostávame do režimu silného poľa nelineárnej optiky. V tomto režime predpokladáme  $\varepsilon_g \gg \hbar\omega$ , k viacfotónovej absorpcii tak nedochádza. Princíp koherentnej kontroly je v tomto prípade založený na Zenerovom jave [26], kedy dochádza k ohybu energetických pásov



Obr. 1.5: Priebek polí na základnej (modrá krivka) a tretej harmonickej (červená krivka) frekvencii a priebek pola ich superpozície (zelená krivka) pre rôzne fázové posuny  $\Delta\phi = 0, \frac{\pi}{2}, \pi, \frac{3\pi}{2}$  medzi základným polom a polom tretej harmonickej frekvencie. Závislosť sme pre lepšiu viditeľnosť zmien superponovaného pola so zmenou relatívneho fázového posunu vykreslili pre pomer amplitúd pola tretej harmonickej ku základnej frekvencii odpovedajúcej 20 %.

vplyvom pôsobenia silného optického pola a k tunelovaniu elektrónov z valenčného do vodivostného pásu. Ohyb pásov je v podstate pevnolátkovou analógiou ohybu Coulombického potenciálu jadra z kapitoly 1.2, znázorneného na obrázku 1.1. Taktiež predpokladáme adiabatickú aproximáciu, kedy odozva látky, a teda aj energetických pásov na silné optické pole, je okamžitá. V našich experimentoch sme namiesto pola druhej harmonickej frekvencie použili pole tretej harmonickej, ktoré naopak paritu zachováva a v spektre, ako uvidíme, vznikajú iba nepárne rády harmonických frekvencií. Vzájomným časovým posunom oboch polí, teda zmenou relatívnej fázy  $\Delta\phi$ , medzi polom základnej a tretej harmonickej frekvencie tak meníme priebek výsledného generujúceho pola daného ich superpozíciou:

$$E_{tot}(t) = E_{\omega}e^{i\omega t} + E_{3\omega}e^{i(3\omega t + \Delta\phi)} + c.c., \quad (1.24)$$

kde  $E_{\omega}$  a  $E_{3\omega}$  sú amplitúdy pola na základnej a tretej harmonickej frekvencii. Výsledný priebek superponovaného generujúceho pola pre rôznu relatívnu fázu medzi polami na základnej a tretej harmonickej frekvencii je znázornený v grafoch na obrázku 1.5.

Zmenou relatívnej fázy medzi polami dochádza k posunu hlavného maxima radiaceho pola  $E_{tot}$ , okolo ktorého je pravdepodobnosť tunelovania elektrónov najvyššia a zároveň sa teda posúva aj časové okno, v ktorom dochádza k Zenerovmu tunelovaniu. Takýto posun časového okna tunelovania so zmenou relatívnej fázy generujúcich polí je hlavným princípom javu koherentnej kontroly v režime silného pola. Ku generácii vysokých harmonických frekvencií však efektívne prispievajú len elektróny, pre ktoré došlo k tunelovaniu až za hlavným maximom generujúceho pola. Je to dôsledkom toho, že elektróny, ktoré tunelovali pred hlav-

ným maximom poľa, majú príliš dlhé trajektórie po ionizácii z materského iónu a po otočení orientácie poľa nedochádza k ich návratu a zrážke s iónom, čím neprispievajú ku generácii vysokých harmonických frekvencií [12]. Postupným zvyšovaním fázového posunu medzi poľami na základnej a tretej harmonickej frekvencii dochádza k posunu hlavného maxima superponovaného poľa k nižším časom oproti maximu poľa na základnej frekvencii. Rozširuje sa tak oblasť, v ktorej riadiace pole za týmto maximom klesá k nulovej hodnote. V dôsledku toho sa rozširuje aj časové okno, v rámci ktorého tunelujú elektróny efektívne prispievajúce ku generácii vysokých harmonických frekvencií. Zároveň však s posunom výška hlavného maxima postupne klesá (pozri obrázok 1.5 pre  $\Delta\phi = 0$  a  $\Delta\phi = \frac{\pi}{2}$ ), čím klesá aj pravdepodobnosť tunelovania týchto elektrónov. Pravdepodobnosť tunelovania je najnižšia pre  $\Delta\phi = \pi$ , kedy ak  $9E_{3\omega} > E_{\omega}$ , tak okolo pôvodného maxima poľa na základnej frekvencii vznikajú dve hlavné maximá superponovaného poľa, alebo ak  $9E_{3\omega} \leq E_{\omega}$ , potom vzniká jedno hlavné maximum na mieste pôvodného maxima základného poľa. Pri ďalšom zvyšovaní fázového posunu vzniká hlavné maximum riadiaceho poľa až za pôvodným maximom fundamentálneho poľa. Za hlavným maximom tentoraz pole rýchlo klesá k nulovej hodnote, čím dostávame úzke časové okno tunelovania efektívne prispievajúcich elektrónov (pozri obrázok 1.5 pre  $\Delta\phi = \frac{3\pi}{2}$ ). Ďalším zvyšovaním fázového posunu hlavné maximum znova rastie, čím rastie aj pravdepodobnosť tunelovania elektrónov. Od určitého relatívneho fázového posunu medzi generujúcimi poľami sa opäť rozširuje časové okno, v rámci ktorého tunelujú efektívne prispievajúce elektróny. Týmto spôsobom tak vo výsledku ladíme rozdelenie efektívne prispievajúcich elektrónov vo vodivostnom páse.

Relatívnym fázovým posunom ale taktiež dochádza k zmene tvaru generujúcej vlny, ktorá riadi pohyb elektrónov vo vodivostnom páse po tunelovaní. Táto zmena je o to väčšia, čím je väčší pomer medzi amplitúdami poľa tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_{\omega}$ . Zmenou tejto dynamiky elektrón-dierového páru medzi momentmi tunelovania a rekombinácie dostávame rôzne trajektórie týchto častíc, čím sa mení aj populácia jednotlivých finálnych stavov elektrónov vo vodivostnom páse tesne pred ich rekombináciou. Meníme tak príspevky rekombinácií k jednotlivým harmonickým rádom, v dôsledku čoho sa menia amplitúdy harmonických frekvencií. Vo výsledku tak bude v určitých počiatkových fázach laserového poľa prispievať menej (resp. viac) elektrónov ako v iných, určité trajektórie budú menej (resp. viac) populované, tým pádom aj následná rekombinácia bude pomalšia (resp. rýchlejšia), čo povedie k zoslabeniu (resp. zosíleniu) amplitúd odpovedajúcich vysokých harmonických frekvencií. Jednotlivé rády harmonických frekvencií sú potom najintenzívnejšie pre hodnotu relatívnej fázy, kedy dochádza k ideálnej kombinácii veľkosti pravdepodobnosti tunelovania efektívne prispievajúcich elektrónov, šírky časového okna, počas ktorého tieto elektróny tunelujú a tvaru trajektórie, na ktorom závisí finálny stav elektrónu, a teda aj energia vyžiareného fotónu pri rekombinácii.

Koherentná kontrola bola využitá napríklad k skúmaniu fotoprúdu generovaného v štruktúre kov-polovodič-kov pri súčasnej jedno- a dvojfotónovej absorpcii od dvoch koherentných laserových zväzkov v závislosti na ich relatívnej fáze [25]. Ďalším využitím je možnosť rekonštrukcie pásovej štruktúry polovodiča zo závislosti relatívnej fázy generujúcich polí, pri ktorej je daný rád harmonickej frekvencie najintenzívnejší na danom harmonickom ráde [27]. Kontrola kvantovej

interferencie pri generácii vysokých harmonických frekvencií sa využíva aj v ďalších prácach [28] a [29]. Avšak, v tejto práci po prvýkrát kombinujeme pole na základnej frekvencii s polom na tretej harmonickej frekvencii namiesto zvyčajnej kombinácie s druhou harmonickou frekvenciou, čím dosahujeme generáciu a moduláciu len nepárnych harmonických rádov.

## 2. Experimentálne usporiadanie

V nasledujúcej kapitole popíšeme experimentálne usporiadanie pre dva typy experimentov, pomocou ktorých sme študovali generáciu vysokých harmonických frekvencií v pevných kryštalických látkach. Jednotlivé optické prvky a súčiastky použité pri meraniach budeme pre ľahšie rozlíšenie v ďalšom texte označovať v zátvorkách pomocou skratiek použitých v schémach na obrázkoch 2.1 a 2.2.

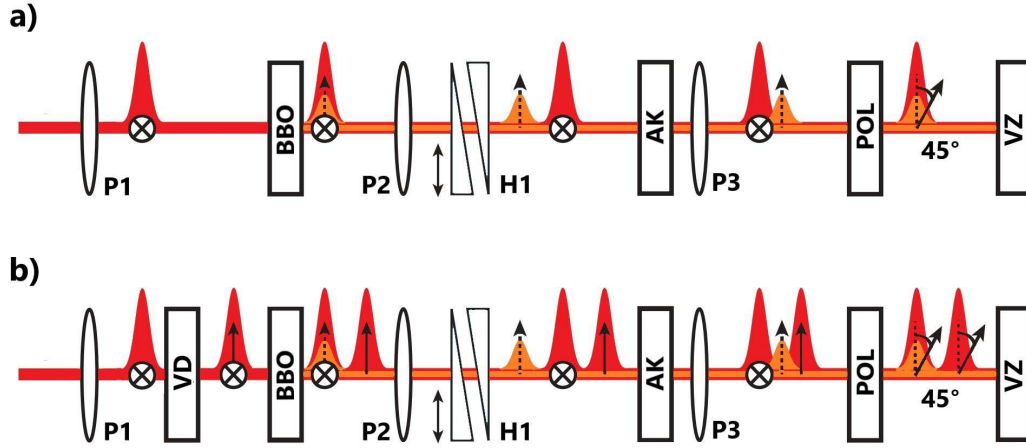
### 2.1 Experimentálne usporiadanie pre generáciu a moduláciu poľa vysokých harmonických frekvencií generovaného v kryštalickom kremíka

Pri prvom type experimentu sme modulovali signál vysokých harmonických frekvencií pomocou koherentnej kontroly pri superpozícii poľa na základnej a tretej harmonickej frekvencii. Na začiatku sme generovali horizontálne polarizované laserové pulzy o strednej vlnovej dĺžke  $\lambda_{fund} = 2 \mu\text{m}$  (krátkovlnná infračervená oblasť) a dĺžke pulzu  $\tau_\omega = 35 \text{ fs}$  z laserového setupu (Laser) popísaného v článku [30] s opakovacou frekvenciou  $\nu_{rep} = 16\,666 \text{ Hz}$ . Setup funguje na princípe neko-lineárneho optického parametrického zosilnenia a generácie rozdielovej frekvencie, pričom ako čerpací je použitý yterbiom dopovaný pevnolátkový laser Pharos.

Zväzok sme ďalej fokusovali pomocou strieborného parabolického zrkadla (P1) o ohniskovej vzdialenosti  $f_{P1} = 150 \text{ mm}$  do BBO kryštálu (BBO). Jedná sa o záporný dvojlomný materiál s hrúbkou  $h_{BBO} = 0,5 \text{ mm}$ , vyrezaný pod uhlami voči optickej osi  $\theta_{BBO} = 23,4^\circ$  a  $\varphi_{BBO} = 90^\circ$ . V BBO kryštáli sme chceli z pulzu na fundamentálnej frekvencii generovať pulz na tretej harmonickej frekvencii, teda s vlnovou dĺžkou  $\lambda_{THG} = 666,7 \text{ nm}$  (viditeľná oblasť). V ďalšom texte budeme pre jednoduchosť používať značenie, kedy sa index  $\omega$ , resp.  $3\omega$ , viaže k veličinám spojeným s polom na základnej, resp. tretej harmonickej frekvencii.

K sfázovaniu typu I (sfázovanie ooo-e) v BBO kryštáli dochádzalo podľa vzťahov (1.11) a (1.12) pod uhlom  $\theta \doteq 27,4^\circ$ . Použili sme hodnoty ordinárneho a extraordinárneho indexu lomu (značíme dolným indexom  $o$ , resp.  $e$ ) BBO kryštálu  $n_{o,\omega}^{BBO} = 1,6385$ ,  $n_{o,3\omega}^{BBO} = 1,6654$  a  $n_{e,3\omega}^{BBO} = 1,5487$  [31]. Vo výsledku sme tak pre správne sfázovanie nastavili uhol dopadu fundamentálneho zväzku na BBO kryštál  $\theta_i = 4^\circ$ . Vzhľadom k typu sfázovania sme generovali vertikálne polarizovaný pulz na tretej harmonickej frekvencii, ktorý bol s pulzom na základnej frekvencii približne prekrytý v čase. Priebeh prekryvu pulzov a ich polarizácie v čase je znázornený na obrázku 2.1 a). Na rozdiel od pulzu na základnej frekvencii malo pole na tretej harmonickej frekvencii štruktúru dvojpulzu s postranným maximom v čase, ktoré obsahovalo približne 45 % výkonu hlavného maxima a obe mali približne rovnakú dĺžku  $\tau_{3\omega} = 28 \text{ fs}$ .

Kryštál BBO bol ďalej upevnený na posuvnej dráhe. Jeho posúvaním pozdĺž osi zväzku okolo ohniska parabolického zrkadla (P1) sme ladili intenzitu dopadajúceho žiarenia na základnej frekvencii, a tak aj energiu v generovanom pulze tretej harmonickej frekvencie. Zmena výkonu zväzku na základnej frekvencii vply-



Obr. 2.1: Časový a polarizačný priebeh pulzov: a) Modulácia poľa vysokých harmonických frekvencií, b) Spektrálna interferencia dvoch fázovo a časovo posunutých polí vysokých harmonických frekvencií. Červená - zväzok na základnej frekvencii, oranžová - zväzok na tretej harmonickkej frekvencii, P1–3 - parabolické zrkadlá, VD - vlnová doštička, BBO - BBO kryštál, H1 - dvojica hranolov, AK - anizotropný kryštál, POL - polarizátor, VZ - vzorka. Pohľad z boku, krížikom tak označujeme horizontálnu polarizáciu, vertikálnou šípku vertikálnu polarizáciu, naklonená šípka je polarizácia pod  $45^\circ$ . Plná šípka sa viaže k pulzu na základnej frekvencii, prerušovaná k pulzu na tretej harmonickkej frekvencii.

vom generácie poľa tretej harmonickkej frekvencie je zanedbateľná, keďže efektívnosť generácie tretej harmonickkej frekvencie bola pomerne malá.

Pod uhlom  $\theta \doteq 21,8^\circ$  dochádza v BBO kryštáli k sfázovaniu pre pole druhej harmonickkej frekvencie (angl. *second harmonic generation*, SHG), a teda k jeho účinnej generácii. Pri našom natočení BBO kryštálu tak dochádzalo k slabej generácii druhej harmonickkej frekvencie, čo ovplyvňovalo výsledný detekovaný signál. Za kryštál BBO sme preto umiestnili filter Schott BG50, Edmund Optics, ktorý túto spektrálnu oblasť účinne potláča, kedy priepustnosť vlnovej dĺžky druhej harmonickkej frekvencie odpovedá približne  $T_{2\omega} = 0,98\%$ . Ďalej preto efektívne prechádzali len pulzy na základnej a tretej harmonickkej frekvencii, pričom priepustnosť optického filtra pre tieto vlnové dĺžky odpovedá  $T_\omega = 80,86\%$  a  $T_{3\omega} = 24,49\%$ . Príklad meraní pri použití optického filtra a bez neho je uvedený v prílohe A.1.

Oba zväzky boli následne kolimované pomocou strieborného parabolického zrkadla (P2) o ohniskovej vzdialenosti  $f_{P2} = 152,4$  mm. Za zrkadlom bolo umiestnené ešte odnímateľné rovinné zrkadlo (OZ), ktoré oba pulzy posielalo cez šošovku (Š1) s ohniskovou vzdialenosťou  $f_{\text{Š1}} = 50$  mm do vlnovodu a následne do spektrometra (SM) s kremíkovou fotodiódou. Jedná sa o spektrometer The Ocean Optics USB4000, pri ktorom sme používali software Ocean Optics SpectraSuite. Šírka nepriameho zakázaného pásu kremíka je pri izbovej teplote  $\varepsilon_{g,indirect}^{Si} = 1,12$  eV [32]. Energia fotónu na základnej frekvencii podľa vzťahu  $\varepsilon[\text{eV}] \approx \frac{1,24}{\lambda[\mu\text{m}]}$  odpovedá hodnote  $\varepsilon_\omega = 0,62$  eV a na tretej harmonickkej frekvencii hodnote  $\varepsilon_{3\omega} = 1,86$  eV. V dôsledku toho sme tak v spektrometri detekovali len fotóny na tretej harmonickkej frekvencii, pričom fotóny na základnej frekvencii absorbované neboli. Pulzy sa ešte zároveň rozťahovali vo vlnovode, čím bolo spektrum základnej frekvencie

ešte viac potlačené. Taktiež výrobca uvádza citlivosť spektrometra v spektrálnej oblasti 200–1100 nm. Z detekovaného spektra poľa tretej harmonickej frekvencie sme ďalej určili odpovedajúci stredný výkon v pulze a následne pomer amplitúd poľa tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_{\omega}$ , čo v tomto experimente predstavovalo nezávislú premennú, ktorú sme ladili zmenou polohy BBO kryštálu na posuvnej dráhe.

Odobraním odnímateľného zrkadla (OZ) prechádzala ďalej dvojica pulzov dvomi opačne otočenými optickými hranolmi (H1). Hranoly sú z kremenného skla s lámavým uhlom  $\beta_{H1} = 4^\circ$  a rozmermi  $50 \times 25 \times 2$  mm (v strede). Oba pulzy dopadali na hranoly tak, aby dochádzalo k minimálnej deviácii a zväzky sa za hranolmi šírili v rovnakom smere ako pred nimi. Prvý hranol bol umiestnený na posuvnej dráhe kontrolovanej softwarom Femtík X 6.0.0, ktorá hranol posúvala v horizontálnom smere kolmom na smer zväzku, čím sme menili šírku kremenného skla, ktorou pulzy prechádzali. Druhý optický hranol bol v priestore fixný. Pulz na základnej frekvencii sa materiálom šírili s indexom lomu  $n_{\omega}^{SiO_2} = 1,4381$  a na tretej harmonickej frekvencii s indexom lomu  $n_{3\omega}^{SiO_2} = 1,4561$  [33]. To odpovedá fázovým rýchlostiam  $v_{p, SiO_2}^{\omega} \doteq 2,08 \times 10^8$  m s<sup>-1</sup> a  $v_{p, SiO_2}^{3\omega} \doteq 2,06 \times 10^8$  m s<sup>-1</sup>. Prechodom cez materiál tak dochádzalo k fázovému posunu medzi poľami na základnej a tretej harmonickej frekvencii. Fázový posun, ktorý bol v tomto experimente druhou nezávislou premennou, sme ladili zmenou šírky materiálu kremenného skla, teda posunom prvého optického hranola po posuvnej dráhe.

Prechodom cez optické hranoly (H1) však dochádzalo aj k relatívnemu posunu pulzov v čase. To sa dialo vplyvom rozdielnych grupových rýchlostí definovaných vzťahom [5]:

$$v_g = \frac{c}{n} \left( 1 + \frac{\lambda}{n} \frac{dn}{d\lambda} \right), \quad (2.1)$$

kde  $c$  je rýchlosť svetla vo vákuu,  $n$  je príslušný index lomu,  $\lambda$  je použitá vlnová dĺžka a  $\frac{dn}{d\lambda}$  označuje disperziu. Výsledné grupové rýchlosti pulzov na základnej a tretej harmonickej frekvencii v optických hranoloch pri disperzii  $\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{\omega} = -14,620$  mm<sup>-1</sup> a  $\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{3\omega} = -25,536$  mm<sup>-1</sup> [33] sú tak rovné  $v_{g, SiO_2}^{\omega} \doteq 20,42 \times 10^7$  m s<sup>-1</sup> a  $v_{g, SiO_2}^{3\omega} \doteq 20,35 \times 10^7$  m s<sup>-1</sup>. K zlepšeniu ich časového prekryvu sme tak ďalej umiestnili ďalší anizotropný kryštál BBO (AK) s hrúbkou  $h_{AK} = 0,5$  mm a s optickou osou vyrezanou pod uhlami  $\theta_{AK} = 50^\circ$  a  $\varphi_{AK} = 90^\circ$ , ktorý tentoraz slúžil na kompenzáciu relatívneho časového posunu pulzov pomocou dvoj-lomu. Horizontálne polarizovaný pulz na základnej frekvencii sa tadiaľ šírili ako riadny (pomalší) a pulz na tretej harmonickej frekvencii ako mimoriadny (rýchlejší). Sklon kryštálu bol voči smeru zväzkov natočený tak, aby sme vo výsledku pozorovali čo najväčšiu amplitúdu zmeny intenzity generovaných vysokých harmonických frekvencií v závislosti na vzájomnom fázovom posune dvoch pulzov, teda čo najviditeľnejšiu moduláciu signálu.

Pulzy ďalej prechádzali sústavou dvoch strieborných rovinných zrkadiel Thor-Labs (Z1, Z2), medzi ktorými bola umiestnená clonka (C1), slúžiaca na prípadné dodatočné priestorové obmedzenie oboch zväzkov. Týmto spôsobom sme ďalej regulovali ich stredný výkon a radiálny profil, ktorý by mal byť ideálne gaussovský. Výrobca uvádza odrazivosť použitých strieborných rovinných zrkadiel pri uhle dopadu  $45^\circ$  pre p-polarizovaný základný pulz  $R_Z^{\omega, p} = 98,25$  % a pre s-polarizovaný pulz na tretej harmonickej frekvencii  $R_Z^{3\omega, s} = 96,81$  %, kedy tieto polarizácie uva-

žujeme pri rovine dopadu na zrkadlá rovnobežnej s rovinou setupu. Zväzky sme ďalej poslali cez periskop (PER), ktorý bol zložený z ďalšej dvojice strieborných rovinných zrkadiel, pričom tieto boli rovnaké ako zrkadlá (Z1) a (Z2). Rovina dopadu zväzkov bola tentoraz vo vertikálnom smere, odrazivosti zrkadiel sa tak líšili. Pri uhle dopadu  $45^\circ$  pre s-polarizovaný základný pulz výrobca uvádza odrazivosť  $R_Z^{\omega,s} = 98,82\%$  a pre p-polarizovaný pulz na tretej harmonicknej frekvencii  $R_Z^{3\omega,p} = 94,51\%$ .

Z periskopu sme poslali oba zväzky do strieborného parabolického zrkadla (P3) o ohniskovej vzdialenosti  $f_{P3} = 33$  mm, ktoré ich cez polarizátor (POL) fokusovalo do vzorky kryštalického kremíka (VZ). Vo vzorke kremíka následne pri odraze zväzkov dochádzalo ku generácii poľa vysokých harmonických frekvencií a jeho koherentnej kontrole vplyvom ladenia relatívneho fázového posunu medzi generujúcimi poľami. Index lomu a odrazivosť kremíka pre základnú a tretiu harmonickú frekvenciu odpovedá  $n_\omega^{Si} = 3,4699$ ,  $R_\omega^{Si} = 30,53\%$  [34] a  $n_{3\omega}^{Si} = 3,8271$ ,  $R_{3\omega}^{Si} = 34,30\%$  [35]. Šírka priameho zakázaného pásu kremíka v režime silného poľa je pri izbovej teplote  $\varepsilon_{g,direct}^{Si} = 3,2$  eV [36], máme teda splnenú podmienku koherentnej kontroly v režime silného poľa  $\varepsilon_g \gg \hbar\omega$  a dochádza k Zenerovmu javu. Pri prechode elektrónu cez nepriamy zakázaný pás o šírke  $\varepsilon_{g,indirect}^{Si} = 1,12$  eV sa vyžaduje popri fotóne aj účasť fonónu, čím sa prechod stáva málo pravdepodobným a príspevok týchto prechodov je preto zanedbateľný. Vzorka kremíka predstavuje objemový kryštál s rozhraním kolmým na kryštalografický smer [001] a s hranami v smeroch [110] a ekvivalentných. Jedná sa o nedopovaný kryštál s merným odporom cez  $1000 \Omega$  cm, pričom presnú hodnotu však výrobca nedáva.

Polarizátor pred vzorkou je vytvorený z pozdĺžnych nanočastíc v sklenenej matici z kremičitanu sodného o hrúbke  $h_{POL} = 250$   $\mu$ m a oblasťou priepustnosti 1000–3000 nm. Polarizátor bol natočený tak, aby dochádzalo k zmene horizontálnej polarizácie fundamentálneho zväzku a vertikálnej polarizácie zväzku na tretej harmonicknej frekvencii na lineárnu polarizáciu pod  $45^\circ$ . Oba pulzy tak dopadali na vzorku s rovnakou polarizáciou, ako predpokladáme pri koherentnej kontrole v kapitole 1.5. Meranie bez zaradenia polarizátora (POL) je znázornené a diskutované v prílohe A.2. Taktiež natočenie vzorky v priestore bolo optimalizované na najlepší pozorovaný signál vysokých harmonických frekvencií, keďže ich generácia závisí od relatívneho uhla medzi kryštalografickými osami kremíka a polarizáciou dopadajúceho žiarenia [21].

Za vzorkou bola umiestnená ďalšia šošovka (Š2) s ohniskovou vzdialenosťou  $f_{\text{Š2}} = 100$  mm, ktorá tentoraz už všetky tri zväzky (fundamentálna, THG a HHG) kolimovala do rovinného zrkadla (Z3). Zväzky ďalej prechádzali clonkou (C2), ktorá obmedzovala množstvo svetla na tretej harmonicknej frekvencii. To vstupuje do spektrometra (DET) a spôsobuje zvýšenie šumu v dôsledku nekoherentného rozptylu na jeho difrakčnej mriežke a ďalších elementoch vo vnútri spektrometra. Veľkosť stopy zväzkov na vysokých harmonických frekvenciách totiž v ďalekom poli klesá s ich rádom, preto clonka prepúšťala všetko svetlo od pozorovaných nepárnych rádov vysokých harmonických, ale naopak čiastočne zakrývala zväzok na tretej harmonicknej frekvencii.

Následne pulzy prechádzali ďalšou dvojicou optických hranolov (H2), pričom oba hranoly boli v tomto prípade fixné v priestore. Hranoly majú lámavý uhol  $\beta_{H2} = 67^\circ$ , sú vyrobené z kremenného skla a majú dĺžku hrany 25 mm. Uhol



dopadu zväzkov na optický hranol bol nastavený, aby dochádzalo k minimálnej deviácii a smer ich šírenia sa teda nemenil. Zároveň boli hranoly umiestnené tak, že v dôsledku disperzie v prvom hranole, fundamentálny zväzok akurát míňal druhý hranol. Týmto spôsobom bol fundamentálny zväzok priestorovo oddelený a do detektora pokračoval len zväzok na tretej harmonickej frekvencii a na vysokých harmonických frekvenciách.

Za hranolmi bola umiestnená šošovka (Š3) s ohniskovou vzdialenosťou  $f_{\text{Š3}} = 75$  mm, prechodom cez ktorú dochádzalo k fokusácii zväzkov do spektrografu Andor Shamrock 163 (DET) s mriežkou s 600 vrypami/mm blazeovanou na vlnovú dĺžku 300 nm a so CCD kamerou Andor iDus 420 ovládanou softwarom Andor Solis. Usporiadanie bolo nastavené tak, že do vertikálnej štrbiny detektora dopadali zväzky na vysokých harmonických frekvenciách, ale zväzok na tretej harmonickej frekvencii dopadal vplyvom disperzie tesne mimo a k jeho detekcii tak nedochádzalo. V šošovke tiež vplyvom prechodu rôznych vlnových dĺžok dochádzalo k chromatickej aberácii. Bolo preto potrebné nastaviť optimálnu relatívnu polohu detektora a šošovky, kedy sme detekovali všetky vysoké harmonické rády dostatočne intenzívne. Meranie výslednej spektrálnej hustoty výkonu však nebolo kalibrované pomocou spektrálnej lampy. Tento fakt však nijak neovplyvnil výsledky experimentu, kedy sme porovnávali len relatívne zmeny amplitúdy a fázy jednotlivých harmonických frekvencií.

Celkovo sme tak v experimentálnom usporiadaní zasúvaním a vysúvaním prvého hranola (H1) menili relatívnu fázu medzi polom základnej a tretej harmonickej frekvencie. V dôsledku toho pri dopade oboch zväzkov na vzorku kremíka dochádzalo ku zmene rozdelenia hustoty elektrónov vo vodivostnom páse. So zmenou relatívnej fázy sa tak menila aj intenzita jednotlivých rádov harmonických frekvencií ako je popísané v kapitole 1.5. Zmenou stredného výkonu v pulze tretej harmonickej frekvencie posunom BBO kryštálu (BBO) pri fixnom výkone základnej frekvencie zároveň dochádzalo k zmene efektivity koherentnej kontroly, kedy sme s rastúcim pomerom amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie pozorovali nárast amplitúdy modulácie vysokých harmonických frekvencií a naopak pri príliš nízkom výkone modulácia zanikala.

## 2.2 Experimentálne usporiadanie pre spektrálnu interferenciu dvoch fázovo a časovo posunutých polí vysokých harmonických frekvencií

Pri nasledujúcom experimente sme medzi parabolické zrkadlo (P1) a BBO kryštál (BBO) zaradili achromatickú polvlnnú doštičku ThorLabs nultého rádu (VD) zhotovenú z kryštalického  $\text{SiO}_2$  a  $\text{MgF}_2$  s antireflexným povrchom v spektrálnej oblasti 1100–2000 nm. Správnym natočením doštičky sme dostali z horizontálne polarizovaného pulzu na základnej frekvencii lineárnu polarizáciu pod  $45^\circ$ . Uhol dopadu zväzku na základnej frekvencii na BBO kryštál ani natočenie kryštálu sme nemenili, bol preto stále sfázovaný na generáciu vertikálne polarizovaného zväzku na tretej harmonickej frekvencii z horizontálne polarizovaného zväzku na základnej frekvencii tak, ako v predošlom experimente. Ku generácii

tak prispela len horizontálna zložka polarizácie základného zväzku, ktorá sa materiálom šírila ako riadna, pričom vertikálna zložka materiálom iba prešla a šírila sa ako mimoriadna.

Obe zložky sa oddelili v čase vplyvom rozdielnej grupovej rýchlosti v kryštáli BBO, teda v dôsledku odlišného indexu lomu. Index lomu BBO kryštálu odpovedá pre riadny zväzok na fundamentálnej frekvencii hodnote  $n_{o,\omega}^{BBO} = 1,6385$  a odpovedajúca disperzia je daná hodnotou  $\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{o,\omega}^{BBO} = -19,345 \text{ mm}^{-1}$ . Pre mimoriadny zväzok na fundamentálnej frekvencii odpovedá hlavná hodnota mimoriadneho indexu lomu  $n_{e,\omega}^{BBO} = 1,5370$  a disperzia je daná hodnotou  $\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{e,\omega}^{BBO} = -4,229 \text{ mm}^{-1}$  [31]. Index lomu pre extraordinárny zväzok pri použitom uhle sfázovania preto vo výsledku odpovedá podľa vzťahu (1.11) hodnote  $n_{e,\omega}^{BBO}(\theta = 27,4^\circ) = 1,6153$ . Disperziu môžeme spočítať z derivácie vzťahu (1.11) v tvare:

$$\frac{dn_e(\theta)}{d\lambda} = \frac{n_o^3 \frac{dn_o}{d\lambda} \sin^2 \theta + n_e^3 \frac{dn_e}{d\lambda} \cos^2 \theta}{(n_e^2 \cos^2 \theta + n_o^2 \sin^2 \theta)^{\frac{3}{2}}}. \quad (2.2)$$

Výsledná hodnota disperzie extraordinárneho zväzku preto pre použitý uhol sfázovania odpovedá  $\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{e,\omega}^{BBO}(\theta = 27,4^\circ) = -15,698 \text{ mm}^{-1}$ . Výsledné grupové rýchlosti pre horizontálne a vertikálne polarizovanú zložku poľa základnej frekvencie v kryštáli BBO potom odpovedajú  $v_{g,\omega}^{o,BBO} = 17,87 \times 10^7 \text{ m s}^{-1}$  a  $v_{g,\omega}^{e,BBO} = 18,21 \times 10^7 \text{ m s}^{-1}$ . Vzhľadom na hrúbku kryštálu  $h_{BBO} = 0,5 \text{ mm}$  vznikol medzi zložkami polarizácie časový posun  $\Delta\tau = 52,24 \text{ fs}$ . Za BBO kryštálom sme následne dostali samostatný vertikálne polarizovaný pulz na základnej frekvencii nasledovaný oneskorenou v čase prekrytou dvojicou horizontálne polarizovaného pulzu na základnej a vertikálne polarizovaného pulzu na tretej harmonickej frekvencii podobne ako v prvom experimente.

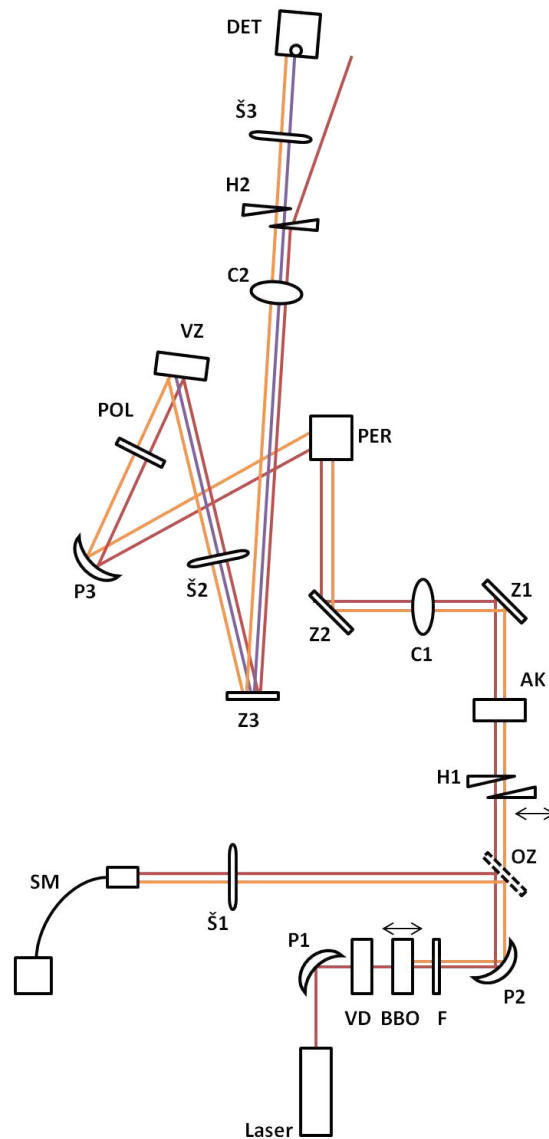
Ďalej všetky tri pulzy pokračovali analogicky predošlému meraniu. V dvojici optických hranolov (H1) dochádzalo k fázovému posunu poľa tretej harmonickej frekvencie voči obom zložkám poľa základnej frekvencie, pričom tieto sa voči sebe neposúvali, keďže hranoly sú izotropné a ich indexy lomu, a teda aj grupové rýchlosti, sú pre obe zložky polarizácie základného zväzku rovnaké. Natočením ďalšieho BBO kryštálu (AK) sme znovu ladili časový prekryv jednotlivých pulzov. Vzhľadom na to, že horizontálne polarizovaný zväzok na základnej frekvencii sa tadiaľ opäť šírila ako riadna, tak jeho grupová rýchlosť odpovedala rovnakej hodnote ako v prvom BBO kryštáli (BBO). Vertikálne polarizovaný zväzok sa opäť šírila ako mimoriadna, tentoraz však pod iným uhlom  $\theta$  voči optickej osi. Presnú hodnotu tohto uhla však nepoznáme, keďže sklon anizotropného kryštálu (AK) bol optimalizovaný iba kvalitatívne, na čo najvýraznejšiu pozorovanú moduláciu signálu vysokých harmonickej frekvencií, nepoznáme preto ani odpovedajúcu hodnotu grupovej rýchlosti. Avšak vzhľadom na to, že horizontálne polarizovaný zväzok sa šírila ako riadna (pomalší) a vertikálne polarizovaný ako mimoriadna (rýchlejší), dochádzalo k ešte väčšiemu omeškaniu horizontálne polarizovaného pulzu voči vertikálnemu, pričom presnú hodnotu tohto dodatočného časového posunu tentoraz nepoznáme. Časový priebeh pulzov a ich polarizácie je znázornený na obrázku 2.1 b).

Vďaka polarizátoru (POL) dopadajú vo výsledku na vzorku kremíka tri pulzy lineárne polarizované pod uhlom  $45^\circ$ . Dvojica v čase prekrytých pulzov na základnej a tretej harmonickej frekvencii sprostredkováva koherentne kontrolovanú

generáciu vysokých harmonických frekvencií tak, ako v predošlom meraní. Samostatný pulz na základnej frekvencii generuje naopak nemodulované pole vysokých harmonických frekvencií. Za vzorkou preto vznikajú dva v čase posunuté pulzy na vysokých harmonických frekvenciách, prvý nemodulovaný nasledovaný druhým časovo omeškaným modulovaným pulzom závislým na zmene fázového posunu medzi generujúcimi poľami.

Vo výsledku sme zmenou relatívnej fázy medzi poľom tretej harmonickej a základnej frekvencie menili tiež priebeh výsledného superponovaného poľa (pozri obrázok 1.5), pri ktorom dochádzalo ku generácii modulovaného poľa vysokých harmonických frekvencií, čím sme menili jeho fázu. Týmto spôsobom sme voči sebe fázovo posúvali vygenerované modulované a nemodulované pole vysokých harmonických frekvencií za vzorkou. V dôsledku časového posunu medzi vygenerovanými pulzmi následne medzi modulovaným a nemodulovaným poľom dochádzalo k spektrálnej interferencii, čím sa spektrálne píky jednotlivých harmonických frekvencií rozpadli na sériu interferenčných maxím. Fázový posun medzi generujúcimi poľami sa potom prejavil fázovým posunom modulovaného poľa vysokých harmonických frekvencií, a teda zmenou relatívnej fázy medzi modulovaným a nemodulovaným poľom za vzorkou. To viedlo na posun interferenčných maxím v detekovanom spektre, z ktorého sme vo výsledku mohli určiť relatívny fázový posun medzi poľami vysokých harmonických frekvencií. Z periódy interferenčnej modulácie sme tiež boli schopní určiť celkový časový posun medzi modulovaným a nemodulovaným pulzom vysokých harmonických frekvencií. Zmenou stredného výkonu tretej harmonickej frekvencie pri fixnom výkone základnej frekvencie sme zároveň menili efektívnosť koherentnej kontroly.

## 2.3 Schéma usporiadania



Obr. 2.2: Schéma usporiadania experimentu: červená - zväzok na základnej frekvencii, oranžová - zväzok na tretej harmonickej frekvencii, fialová - zväzok vysokých harmonickej frekvencii, Laser - laserový setup, P1–3 - parabolické zrkadlá, VD - vlnová doštička, BBO - BBO kryštál, F - filter druhej harmonickej, OZ - odnímateľné zrkadlo, Š1–3 - šošovky, SM - spektrometer, H1–2 - dvojice optických hranolov, AK - anizotropný kryštál, Z1–3 rovinné zrkadlá, C1–2 - clonky, PER - periskop, POL - polarizátor, VZ - vzorka, DET - detektor.

# 3. Výsledky meraní

## 3.1 Radiálny profil zväzkov

Profily zväzkov sme skúmali pomocou kremíkovej CMOS kamery ThorLabs umiestnenej do miesta vzorky (VZ). Kamerou sme boli schopní, na rozdiel od spektrometra (SM), detekovať aj fotóny na základnej frekvencii, vďaka ich dvojfotónovej absorpcii, ktorá je prítomná v dôsledku vysokej špičkovej intenzity dopadajúcich pulzov na základnej frekvencii. Nedochádza tu totiž k natiahnutiu pulzov kvôli šíreniu vláknom, ktoré zabraňuje dvojfotónovej absorpcii na detektore spektrometra (SM). Optimalizáciou usporiadania sme sa snažili, aby oba zväzky dopadali do rovnakého miesta na vzorke. Zároveň sme chceli pozorovať kruhový radiálny profil zväzkov, čo odpovedá len základnému gaussovskému módu bez príspevkov módov vyšších rádov. Na vzorke sme chceli tiež dosiahnuť čo najmenšiu stopu oboch zväzkov, teda čo najväčšiu možnú intenzitu dopadajúceho žiarenia.

Po najustovaní sústavy sme premerali profily oboch zväzkov, kedy sme najprv pomocou optických filtrov potlačili jeden zväzok, premerali profil druhého a následne opačne. Profily  $I(x,y)$  sme potom v programe Origin fitovali dvojrozmernými gaussovými funkciami:

$$I(x,y) = I_0 \exp \left[ -4 \ln 2 \frac{(x-x_0)^2}{w_x^2} \right] \exp \left[ -4 \ln 2 \frac{(y-y_0)^2}{w_y^2} \right], \quad (3.1)$$

kde  $I_0$  je špičková intenzita detekovaná na kamere,  $x_0$  a  $y_0$  sú súradnice stredu gaussovej funkcie,  $w_x$  a  $w_y$  sú pološírky gaussovej funkcie. U zväzkov na základnej frekvencii boli dáta získané pomocou dvojfotónovej absorpcie, závisia teda na kvadráte intenzity dopadajúceho žiarenia a pred fitovaním ich bolo nutné ešte odmocniť. Chyby výsledných hodnôt sme počítali pomocou metódy prenosu chýb [37]. Výsledné šírky stôp základnej a tretej harmonickej frekvencie sú potom:

$$\begin{aligned} w_x^\omega &= (14,506 \pm 0,061) \mu\text{m}, & w_y^\omega &= (15,880 \pm 0,066) \mu\text{m}, \\ w_x^{3\omega} &= (7,452 \pm 0,018) \mu\text{m}, & w_y^{3\omega} &= (9,282 \pm 0,025) \mu\text{m}, \end{aligned}$$

kde dolný index označuje šírku  $x$  a výšku  $y$  stopy a horný index zväzkov základnej  $\omega$ , resp. tretej harmonickej frekvencie  $3\omega$ . Výsledné šírky a výšky sa pre jednotlivé stopy príliš nelíšia, profily preto môžeme s dostatočnou presnosťou považovať za gaussovské. Pri meraní so zväzkom na základnej frekvencii sme taktiež previedli zvlášť meranie pre horizontálne a zvlášť pre vertikálne polarizovanú vlnu. Pološírky stopy základnej frekvencie sú však pri oboch polarizáciách v rámci chyby rovnaké, nebudeme ich preto ďalej rozlišovať.

Veľkosť stopy dopadajúcej na vzorku preto môžeme spočítať pomocou priemernej hodnoty jej rozmerov  $\bar{w} = \frac{1}{2}(w_x + w_y)$  ako  $S = \pi\bar{w}^2$ . Výsledné veľkosti stôp sú potom:

$$\begin{aligned} S_\omega &= (725,1 \pm 4,3) \mu\text{m}^2, \\ S_{3\omega} &= (219,94 \pm 0,81) \mu\text{m}^2. \end{aligned}$$

Vidíme, že zväzok tretej harmonickej frekvencie je na vzorke fokusovaný do výrazne menšej stopy ako zväzok na základnej frekvencii. V režime silného poľa však pre vzorku kremíka platí, že intenzita generovaných harmonických frekvencií odpovedá kubickej závislosti na intenzite poľa základnej frekvencie, teda  $I_{HHG} \sim (I_\omega)^3$  [38], [39]. Tretia mocnina gaussovej funkcie však odpovedá znova gaussovej funkcii o pološírkach  $w_x^{HHG} = w_x^\omega/\sqrt{3}$  a  $w_y^{HHG} = w_y^\omega/\sqrt{3}$ . Výsledná efektívna plocha  $S_{HHG}$ , z ktorej sa generovali vysoké harmonické frekvencie, tak odpovedá približne tretine stopy na základnej frekvencii, teda približne stope tretej harmonickej frekvencie. Ku efektívnej generácii a kvantovej koherentnej kontrole vysokých harmonických frekvencií vo výsledku dochádzalo na ploche, na ktorej boli oba generujúce zväzky dostatočne intenzívne.

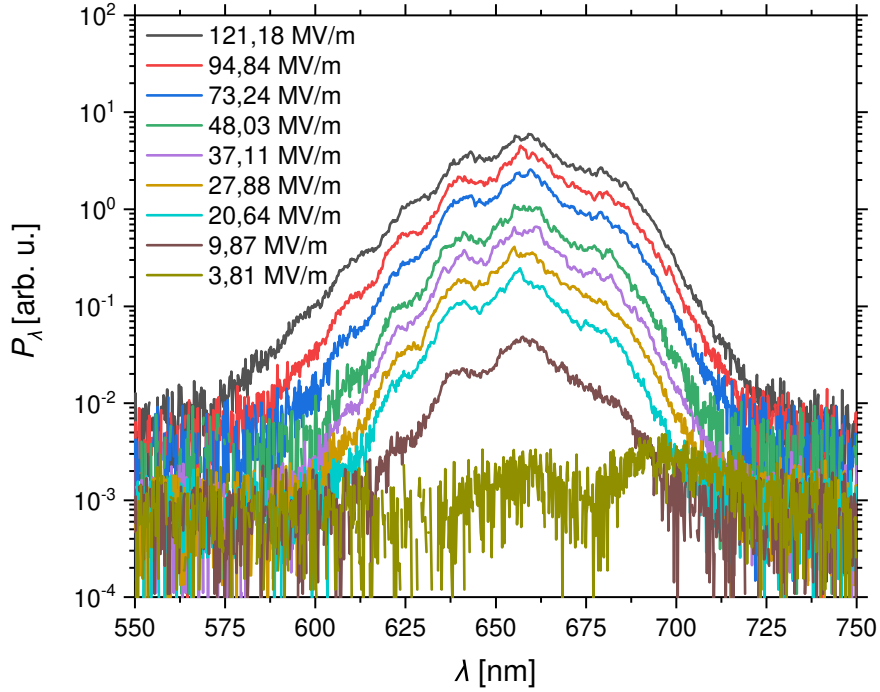
Rovnaké merania pomocou kamery sme previedli s polarizátorom (POL) pred kamerou a bez neho. Z pomeru amplitúd gaussových funkcií získaných fitovaním sme tak dokázali určiť transmitancie polarizátora pre jednotlivé zväzky. Pri profile základného zväzku sme detekovali žiarenie so zaradenou polvlnnou doštičkou, ako je popísané v kapitole 2.2. Na polarizátor sme preto najprv svietili pulzmi základnej frekvencie s vertikálnou aj horizontálnou zložkou polarizácie, čím sme dostali priepustnosť  $T_\omega^{hor,vert}$ . Následne sme detekciu previedli pre obe polarizácie zvlášť, z čoho sme následne dopočítali transmitancie  $T_\omega^{hor}$  a  $T_\omega^{vert}$ . Výsledné transmitancie polarizátora sú tak:

$$\begin{aligned} T_\omega^{hor,vert} &= (37,47 \pm 0,48) \%, \\ T_\omega^{hor} &= (41,54 \pm 0,48) \%, \\ T_\omega^{vert} &= (58,46 \pm 0,55) \%, \\ T_{3\omega} &= (24,99 \pm 0,10) \%. \end{aligned}$$

Pozorujeme trochu vyššiu priepustnosť polarizátora pre vertikálne polarizovaný pulz základnej frekvencie. Priepustnosť pre zväzok na tretej harmonickej frekvencii je ale výrazne nižšia, čo je zapríčinené oblasťou priepustnosti polarizátora 1–3  $\mu\text{m}$ . Zväzok tretej harmonickej bol tak prepúšťaný slabšie, čo vo výsledku zníži pomer amplitúd tretej harmonickej ku základnej frekvencii v mieste dopadu na vzorku, a teda aj efektívnosť koherentnej kontroly.

## 3.2 Generácia a charakterizácia poľa tretej harmonickej frekvencie

Po vygenerovaní poľa tretej harmonickej frekvencie z BBO kryštálu sme skúmali jeho spektrum v spektrometri (SM). Justovaním setupu sme sa snažili dosiahnuť čo najoptimálnejší tvar spektra, teda čo najužšie spektrum pri čo najintenzívnejšom poli tretej harmonickej frekvencie. Po najustovaní sme previedli kalibráciu, kedy sme integrálu príslušného spektra priradili odpovedajúci stredný výkon  $P_{str}$ . Zväzok na základnej a tretej harmonickej frekvencii sme najprv priestorovo oddelili pomocou optického hranola z materiálu  $\text{BaF}_2$  s lámavým uhlom  $\beta_{\text{BaF}_2} = 66^\circ$ . Uhol dopadu zväzkov odpovedal uhlu minimálnej deviácie pre zväzok tretej harmonickej frekvencie, ktorý je pre index lomu  $n_{\text{BaF}_2}^{3\omega} = 1,4726$  [40] rovný  $\theta_i = 53,32^\circ$ . Následne sme premerali stredný výkon oboch zväzkov zvlášť pomocou powermetru ThorLabs S401C. Do detekovaného stredného výkonu bolo

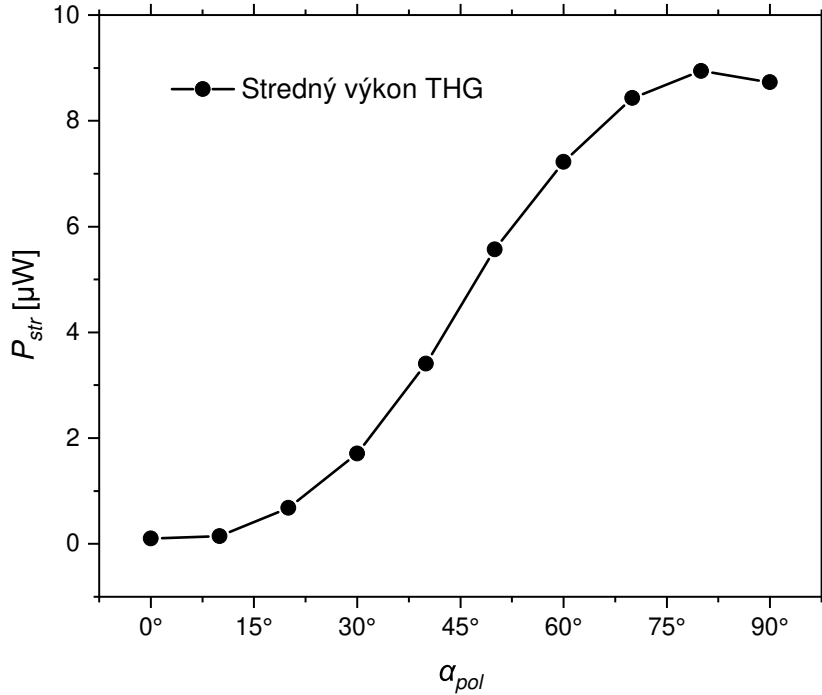


Obr. 3.1: Spektrá poľa tretej harmonickkej frekvencie pri rôznych amplitúdach poľa. Amplitúda poľa dopadajúceho pulzu na základnej frekvencii odpovedá hodnote  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ . Spektrálna hustota výkonu je uvedená v logaritmickej škále.

potrebné započítať ešte priepustnosť optického hranola vplyvom dvoch Fresnelových odrazov na rozhraní vzduch-BaF<sub>2</sub>. Priepustnosť hranola pri danom uhle dopadu pre p-polarizovaný zväzok na základnej frekvencii odpovedá  $T_{\text{BaF}_2}^\omega \doteq 100\%$  a pre s-polarizovaný zväzok na tretej harmonickkej frekvencii  $T_{\text{BaF}_2}^{3\omega} \doteq 77,24\%$ . Na powermetri sme tak detekovali menšiu hodnotu ako je skutočná hodnota stredného výkonu tretej harmonickkej frekvencie. Výsledná kalibrácia stredného výkonu tretej harmonickkej frekvencie je uvedená v prílohe A.3.

Pohybom BBO kryštálu okolo ohniska parabolického zrkadla (P1) sme následne menili intenzitu dopadajúceho zväzku na základnej frekvencii, a tak aj stredný generovaný výkon v pulzoch na tretej harmonickkej frekvencii. Príklad takéhoto spektra pre rôzne amplitúdy poľa tretej harmonickkej frekvencie je uvedený na obrázku 3.1 ako závislosť spektrálnej hustoty výkonu  $P_\lambda$  na vlnovej dĺžke  $\lambda$  generovaného žiarenia. V tvare spektra zjavne pozorujeme spektrálnu interferenciu, ktorá typicky vzniká v prípade sekvencie dvoch pulzov oddelených v čase. Tvar spektra tretej harmonickkej frekvencie je tak ovplyvnený jednak tvarom spektra a časovým profilom pulzu na základnej frekvencii, dvojpulzovým charakterom časového profilu poľa tretej harmonickkej frekvencie, ako aj faktom, že pri generácii sa oba pulzy šírili v BBO kryštáli s mierne odlišnými grupovými rýchlosťami, a to  $v_{g,BBO}^\omega = 1,79 \times 10^8 \text{ m s}^{-1}$  a  $v_{g,BBO}^{3\omega} = 1,91 \times 10^8 \text{ m s}^{-1}$ .

V ďalšom meraní sme medzi BBO kryštál (BBO) a parabolické zrkadlo (P2) umiestnili otočný polarizátor. Postupným otáčaním polarizátora okolo osi do-



Obr. 3.2: Polarizačná závislosť stredného výkonu pulzu tretej harmonickej frekvencie. Závislosť je premeraná od  $0^\circ$  (horizontálna polarizácia) po  $90^\circ$  (vertikálna polarizácia).

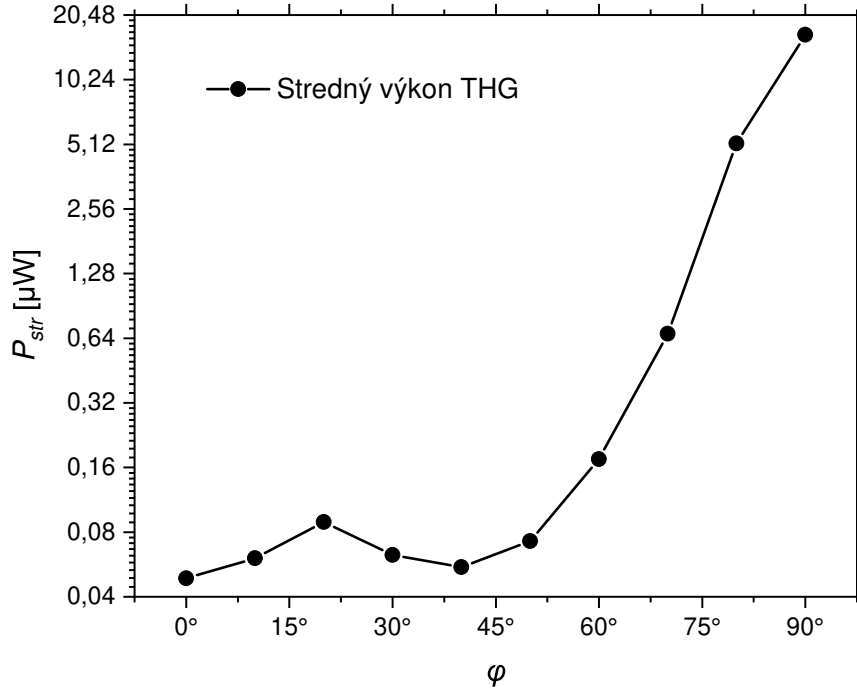
padajúceho zväzku a detekciou spektra tretej harmonickej frekvencie sme boli schopní overiť, že zväzok tretej harmonickej frekvencie je lineárne polarizovaný vo vertikálnom smere, čo potvrdzuje, že máme správne sfázovaný proces generácie v BBO kryštáli. Závislosť stredného výkonu tretej harmonickej frekvencie pri lineárnej polarizácii pod uhlom  $\alpha_{pol}$  je uvedená na obrázku 3.2. Závislosť dosahuje zjavne svojho maxima v okolí  $\alpha_{pol} = 90^\circ$ , čo odpovedá vertikálnej polarizácii, ktorú v meraniach požadujeme.

Pri generácii tretej harmonickej frekvencie nás taktiež zaujíma správne natočenie BBO kryštálu v rovine kolmej na smer zväzku základnej frekvencie. Kryštál sme preto postupne otáčali vo svojom držiaku o uhol  $\varphi$  a pozorovali sme zmenu stredného výkonu tretej harmonickej frekvencie. Uhol sme tak nastavili na najvyšší možný pozorovaný výkon. Nameraná závislosť je znázornená na obrázku 3.3. Maximum výkonu sme generovali pri zvislom natočení optickej osi kryštálu, teda keď sa zväzok na základnej frekvencii šírila ako riadny a na tretej harmonickej frekvencii ako mimoriadny. Dochádzalo tak k sfázovaniu typu I, ako sme chceli. Nárast stredného výkonu sme ale pozorovali aj pri uhle  $\varphi = 20^\circ$ . Pri tomto uhle teda dochádzalo k čiastočnému sfázovaniu a generácii tretej harmonickej frekvencie, pričom jej efektívnosť bola ale slabá.

Pri šírení gaussovského zväzku dochádza okolo jeho ohniska k fázovému posunu, ktorý je na osi zväzku daný vzťahom:

$$\phi_{gauss} = kz - \zeta(z), \quad (3.2)$$





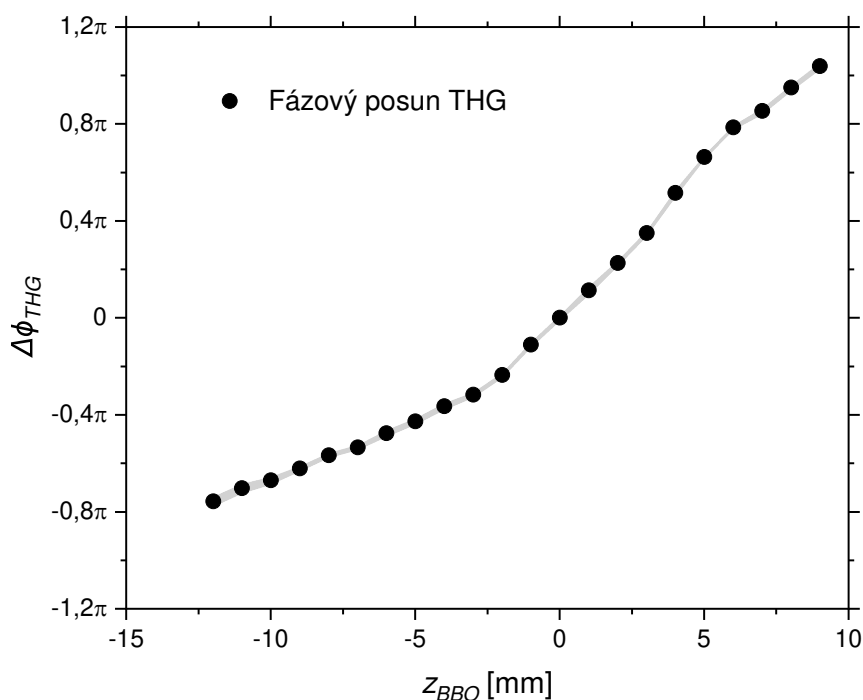
Obr. 3.3: Závislosť stredného výkonu pulzu tretej harmonickej frekvencie na natočení BBO kryštálu v rovine kolmej na smer zväzku základnej frekvencie. Uhol  $\varphi = 0^\circ$  predstavuje horizontálne natočenie optickej osi kryštálu a uhol  $\varphi = 90^\circ$  vertikálne natočenie. Stredný výkon je uvedený v logaritmickej škále.

kde  $k$  je príslušný vlnovek,  $z$  je súradnica rovnobežná s osou zväzku s počiatkom v ohnisku zväzku a smerom orientovaným v smere šírenia zväzku a  $\zeta(z)$  sa nazýva Guoyova fáza. Prvý člen zjavne predstavuje fázu rovinatej vlny. Druhý člen je tak potom fázová odchýlka od rovinatej vlny daná gaussovským profilom zväzku. Guoyova fáza je následne definovaná pomocou vzťahu:

$$\zeta(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right), \quad (3.3)$$

kde  $z_R$  sa nazýva Rayleighova vzdialenosť a určuje vzdialenosť medzi ohniskom zväzku a miestom, kde má zväzok dvojnásobnú veľkosť stopy ako v ohnisku. Guoyova fáza nadobúda hodnoty od  $-\pi/2$  v  $z = -\infty$  po  $\pi/2$  v  $z = \infty$ . Prechodom gaussovského zväzku cez ohnisko, teda z ďalekého poľa na jednej strane ohniska do ďalekého poľa na druhej strane ohniska, tak dostávame fázový posun poľa voči obálke o  $\pi$ . Tento jav sa nazýva Guoyov efekt [1].

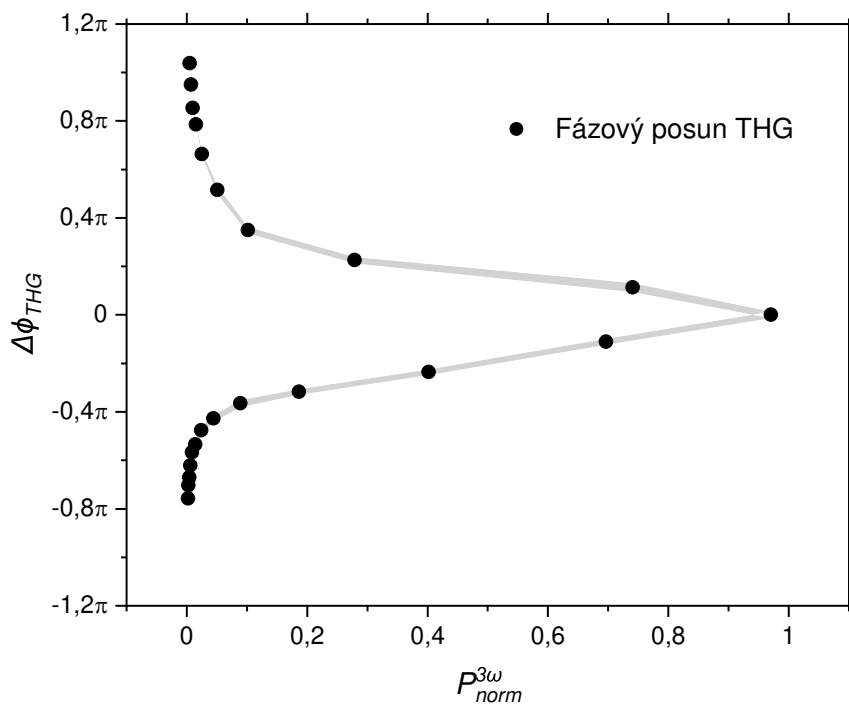
Aby sme charakterizovali absolútny fázový posun, ktorý vznikol v dôsledku posúvania BBO kryštálu pri ladení výkonu tretej harmonickej frekvencie, zmerali sme nakoniec závislosť fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie  $\Delta\phi_{THG}$  na jeho strednom výkone. Stredný výkon tretej harmonickej frekvencie sme ladili zmenou polohy BBO kryštálu  $z_{BBO}$  okolo ohniska parabolického zrkadla (P1). Posunom kryštálu ale zároveň dochádzalo k zmene fázy základnej frekvencie, pri ktorej sa tretia harmonická generuje. Obe preto boli voči sebe fázovo posunuté v závislosti na posune kryštálu BBO.



Obr. 3.4: Závislosť fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie na polohe BBO kryštálu voči ohnisku parabolického zrkadla. Počiatok horizontálnej osi je umiestnený do ohniska parabolického zrkadla. Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblasťami medzi experimentálnymi bodmi.

Meranie sme previedli tak, že sme na svoje miesto umiestnili doteraz nepoužitú polvlnnú doštičku (VD) podľa schémy 2.2, ktorá nám zabezpečila horizontálne aj vertikálne polarizovanú zložku poľa na základnej frekvencii. V BBO kryštáli dochádzalo ku generácii vertikálne polarizovaného poľa tretej harmonickej frekvencie, ako sme popísali v kapitole 2.1. Všetky pulzy sme ďalej nechali šíriť usporiadaním, pričom ale za rovinné zrkadlo (Z1) sme umiestnili ďalšie odnímateľné zrkadlo. To pulzy poslalo do parabolického zrkadla, ktoré ich sfokovalo do ďalšieho BBO kryštálu, ktorý mal ale tentoraz optickú os v horizontálnom smere. K sfázovaniu tak dochádzalo pre vertikálnu zložku základnej frekvencie, ktorá tu generovala tretiu harmonickú frekvenciu s horizontálnou polarizáciou. Za BBO kryštál sme umiestnili ešte polarizátor, ktorý vertikálnu aj horizontálnu polarizáciu pulzov tretej harmonickej frekvencie previedol na lineárnu polarizáciu pod  $45^\circ$ . V spektrometri nakoniec dochádzalo len ku detekcii polí tretej harmonickej frekvencie, základnú frekvenciu sme preto ďalej neuvažovali, pričom medzi rovnako polarizovanými pulzmi tretej harmonickej frekvencie tu dochádzalo k interferencii. V spektre sme tak vo výsledku pozorovali interferenčné maximá a minimá.

Posunom prvého BBO kryštálu okolo ohniska sme zároveň menili relatívnu fázu medzi týmito dvoma poľami. Druhý BBO kryštál ostával v priestore fixný, počiatočná fáza horizontálne polarizovaného poľa tretej harmonickej frekvencie sa preto nemenila. Z modulácie spektra sme ďalej boli schopní určiť počiatočný fázový posun vertikálne polarizovanej zložky tretej harmonickej frekvencie, teda



Obr. 3.5: Závislosť fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie na normovanom strednom výkone pri BBO kryštáli zaradenom v ohnisku základného zväzku. Spodná vetva závislosti predstavuje posun BBO pred ohniskom základného zväzku (bližšie k P1) a horná vetva predstavuje posun za ohniskom (bližšie k P2). Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblasťami medzi experimentálnymi bodmi.

tej, s ktorou sme pracovali v ďalších experimentoch. Na spektrum sme najprv aplikovali FFT filter s dolnou priepustou, čím sme odstránili nežiaduce modulačné na vyšších frekvenciách. Následne sme vybrali interval spektra s približne konštantnou strednou hodnotou cez periódu a konštantnou amplitúdou, ktorý sme následne fitovali kosínusom, čím sme získali hodnotu fázového posunu interferenčných maxím, a teda aj pulzov tretej harmonickej frekvencie voči sebe navzájom. Namerané interferenčné spektrá sú uvedené v prílohe A.4. Posúvaním prvého BBO kryštálu sme tak premerali závislosť fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie s vertikálnou polarizáciou na polohe BBO kryštálu voči ohnisku pre celý rozsah posuvnej dráhy, na ktorej bol kryštál upevnený. Výsledná závislosť je uvedená na obrázku 3.4. Interpoláciou tejto závislosti sme schopní určiť počiatočnú fázu pri ľubovoľnej polohe BBO kryštálu.

Vplyvom Guoyovho efektu prechodom fundamentálneho gaussovského zväzku z ďalekého poľa na jednej strane ohniska do ďalekého poľa na druhej strane ohniska dochádza k zmene fázy poľa voči obálke o  $\pi$ . Zmena fázy poľa tretej harmonickej frekvencie voči obálke preto odpovedá hodnote  $3\pi$ , na obrázku 3.4 však pozorujeme zmenu fázy len o približne  $2\pi$ . To je spôsobené obmedzeným rozsahom posuvnej dráhy, na ktorej bol kryštál upevnený.

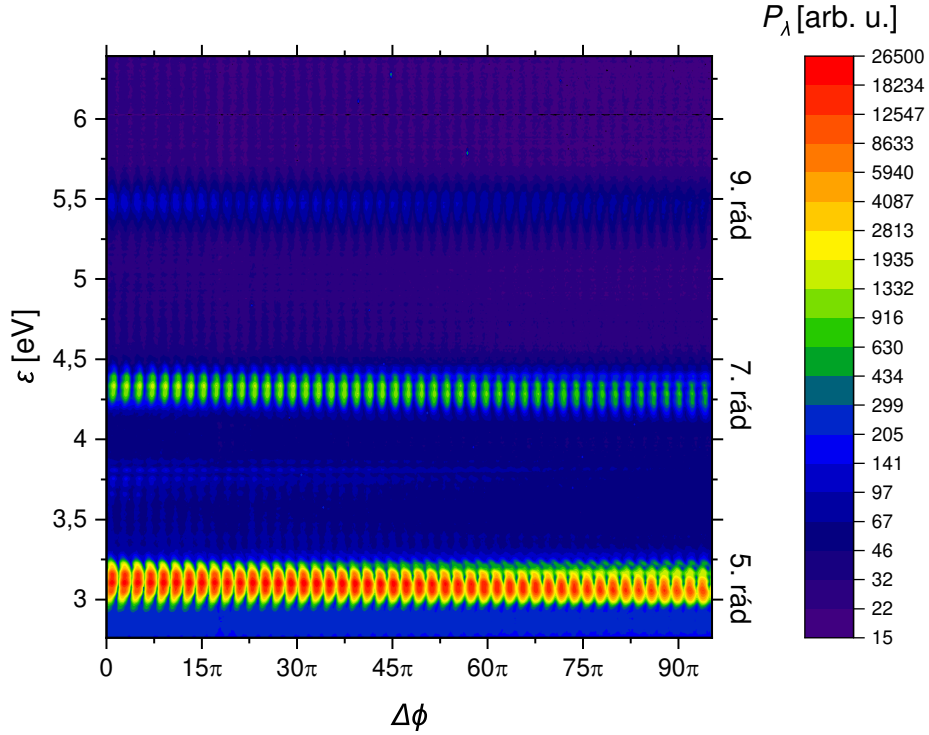
Výhodou použitého usporiadania interferometra, v ktorom sme kombinovali

pole základnej a tretej harmonickej frekvencie, kedy boli všetky prvky umiestnené v jednom zväzku a oba pulzy sa šírili kolineárne, je vysoké časové rozlíšenie pri meraní fázových posunov. Jednoduchšou alternatívou k tomuto setupu by mohol byť dvojfarebný interferometer, kedy by sme zväzky priestorovo rozdelili, každým manipulovali zvlášť a následne ich znova zvedli dokopy, pričom by následne interferovali na spektrometri. Problémom takéhoto usporiadania by však bola vzájomná fázová stabilita zväzkov po ich priestorovom rozdelení. Interferometer by preto musel byť aktívne stabilizovaný, a aj napriek tomu by sme vo výsledku nedosiahli takého časového rozlíšenia ako s použitým usporiadaním.

Ďalej sme premerali závislosť stredného výkonu tretej harmonickej frekvencie na polohe BBO kryštálu. Dosadením výsledkov do predošlej závislosti sme tak dostali závislosť fázového posunu poľa tretej harmonickej na jeho strednom výkone. Stredný výkon sme nakoniec ešte normalizovali maximálnym možným dosiahnuteľným stredným výkonom tretej harmonickej, teda pri BBO kryštáli umiestnenom v ohnisku fundamentálneho zväzku. Uvedenú závislosť takto môžeme použiť pri ľubovoľnom výkone pulzu základnej frekvencie, kedy stačí preškálovať normovaný stredný výkon na stredný výkon tretej harmonickej pri BBO kryštáli umiestnenom v ohnisku parabolického zrkadla (P1), ktorý odpovedá danému výkonu fundamentálneho poľa. Závislosť fázového posunu poľa tretej harmonickej vplyvom posunu BBO kryštálu na normalizovanom strednom výkone je uvedená na obrázku 3.5. Pomocou interpolácie tejto závislosti tak môžeme vo výsledku vypočítať absolútny fázový posun poľa tretej harmonickej frekvencie pre jeho ľubovoľný stredný výkon pri danom výkone poľa základnej frekvencie.

### 3.3 Generácia a modulácia poľa vysokých harmonických frekvencií pomocou koherentnej kontroly

Zmenou relatívnej fázy polí základnej a tretej harmonickej frekvencie posunom prvého z dvojice optických hranolov (H1) v horizontálnom smere kolmom na smer šírenia zväzkov, sme pomocou kvantovej koherentnej kontroly modulovali intenzitu vysokých harmonických frekvencií generovaných zo vzorky kremíka. V spektrografe s CCD kamerou následne dochádzalo k detekcii spektra vysokých harmonických frekvencií. V detekovanom spektre pozorujeme piaty ( $\varepsilon_{5\text{HHG}} = 3,10 \text{ eV}$ ), siedmy ( $\varepsilon_{7\text{HHG}} = 4,34 \text{ eV}$ ) a deviaty ( $\varepsilon_{9\text{HHG}} = 5,58 \text{ eV}$ ) rád harmonických frekvencií. S posunom hranola sme voči sebe, vďaka rôznym fázovým rýchlostiam polí, fázovo posúvali polia tretej harmonickej a základnej frekvencie a sledovali periodickú moduláciu intenzity jednotlivých rádov. Následne sme premerali spektrum vysokých harmonických frekvencií v závislosti na fázovom posune polí základnej a tretej harmonickej frekvencie pre celý rozsah posuvnej dráhy, na ktorej bol optický hranol upevnený. Výsledná závislosť je uvedená na obrázku 3.6. Amplitúda modulácie intenzity zjavne klesá s rastúcim fázovým posunom, teda s rastúcou šírkou optického hranola, ktorou zväzky prechádzali. To je spôsobené zhoršením časového prekryvu pulzov na základnej a tretej harmonickej frekvencii, a to kvôli rôznym grupovým rýchlostiam v materiáli hranola. Na zlepšenie časového prekryvu sme za hranoly zaradili anizotropný kryštál (AK) ako je popísané v predošlých kapitolách.



Obr. 3.6: Spektrum vysokých harmonických frekvencií v závislosti na fázovom posune medzi základnou a tretou harmonickou frekvenciou. Meranie bolo prevedené cez celý rozsah posuvnej dráhy s optickým hranolom. Spektrálna hustota výkonu je uvedená v logaritmickej škále.

Celkové meranie sme previedli zvlášť pre dva rôzne detekované stredné výkony základnej frekvencie, kedy v prvom prípade malo generujúce pole na základnej frekvencii stredný výkon  $P_{str}^{\omega} = 8 \text{ mW}$  a v druhom prípade stredný výkon  $P_{str}^{\omega} = 12 \text{ mW}$ . Posunom BBO kryštálu sme ladili stredný výkon pulzu tretej harmonickkej frekvencie  $P_{str}^{3\omega}$ , ktorý sme následne vypočítali zo spektra detekovaného spektrometrom (SM) pomocou kalibrácie uvedenej v kapitole 3.2. Namerané spektrá pre stredný výkon základnej frekvencie  $P_{str}^{\omega} = 8 \text{ mW}$  sú uvedené na obrázku 3.1 a pre stredný výkon  $P_{str}^{\omega} = 12 \text{ mW}$  na obrázku 3.7.

Energiu v pulze  $\varepsilon_{pulz}^{\omega,3\omega}$  na oboch frekvenciách sme následne spočítali pomocou vzťahu:

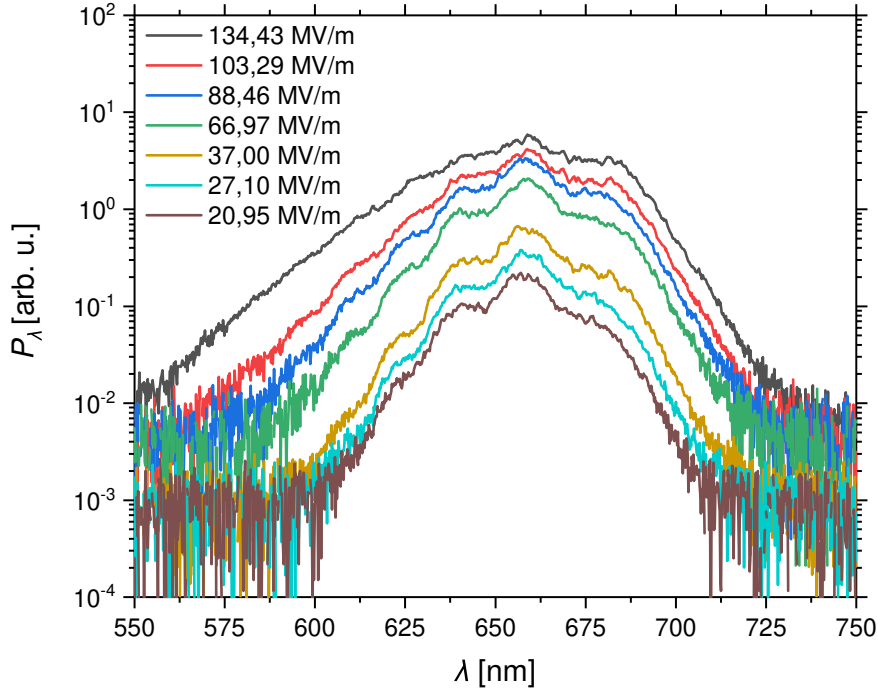
$$\varepsilon_{pulz}^{\omega,3\omega} = \frac{P_{str}^{\omega,3\omega}}{\nu_{rep}}, \quad (3.4)$$

kedy špičková intenzita  $I_0^{\omega,3\omega}$  oboch pulzov je potom daná výrazom:

$$I_0^{\omega} = 4\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{\varepsilon_{pulz}^{\omega}}{\tau_{\omega} S_{\omega}}, \quad (3.5)$$

$$I_0^{3\omega} = 4\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{\varepsilon_{pulz}^{3\omega}}{(1 + 0,45)\tau_{3\omega} S_{3\omega}}, \quad (3.6)$$

kde prefaktor  $2\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}}$  pochádza od integrácie časového profilu pulzu a prefaktor 2 od integrácie radiálneho profilu, pričom oba profily majú gaussovský charakter.



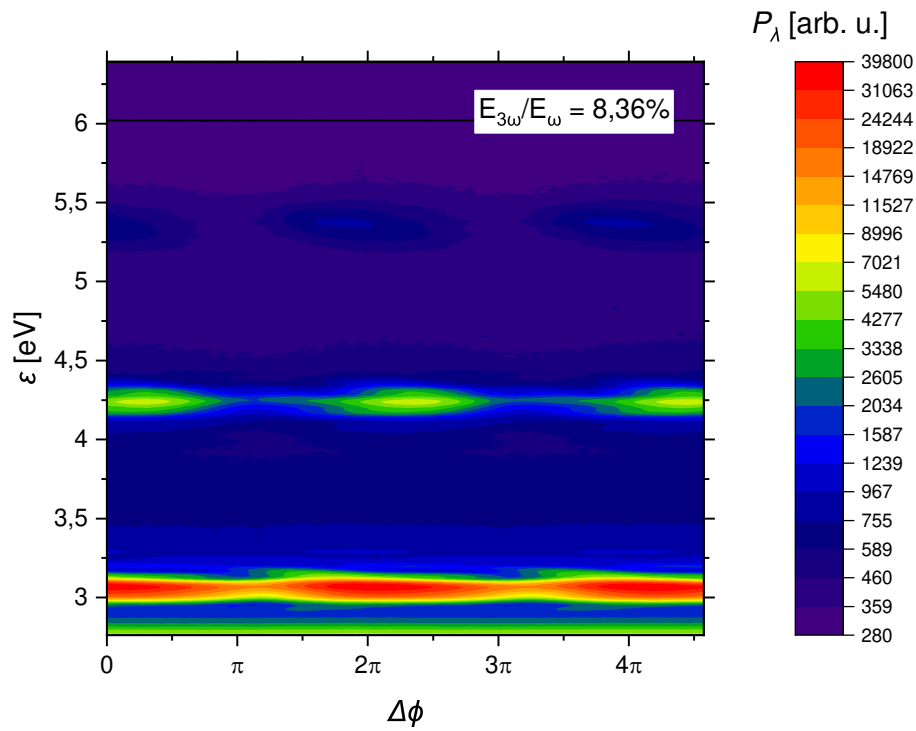
Obr. 3.7: Spektrá poľa tretej harmonickej frekvencie pri rôznych amplitúdach poľa. Amplitúda poľa dopadajúceho pulzu na základnej frekvencii odpovedá hodnote  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ . Spektrálna hustota výkonu je uvedená v logaritmickej škále.

Tvar menovateľa vo vzťahu 3.6 je dôsledkom dvojpulzového charakteru poľa tretej harmonickej frekvencie. Do výslednej hodnoty bolo ešte nutné započítať priepustnosť polarizátora (POL) pre základnú frekvenciu s horizontálnou polarizáciou a tretiu harmonickú frekvenciu (pozri kapitolu 3.1), ako aj odrazivosti použitých strieborných zrkadiel (pozri kapitolu 2.1). Do úvahy bolo nutné tiež vziať, že časť dopadajúcej intenzity sa od povrchu vzorky kremíka odrazila a ku generácii vysokých harmonických frekvencií teda neprispieva (pozri kapitolu 2.1). Amplitúdy poľí  $E_{\omega,3\omega}$  jednotlivých pulzov sme následne spočítali podľa vzťahu:

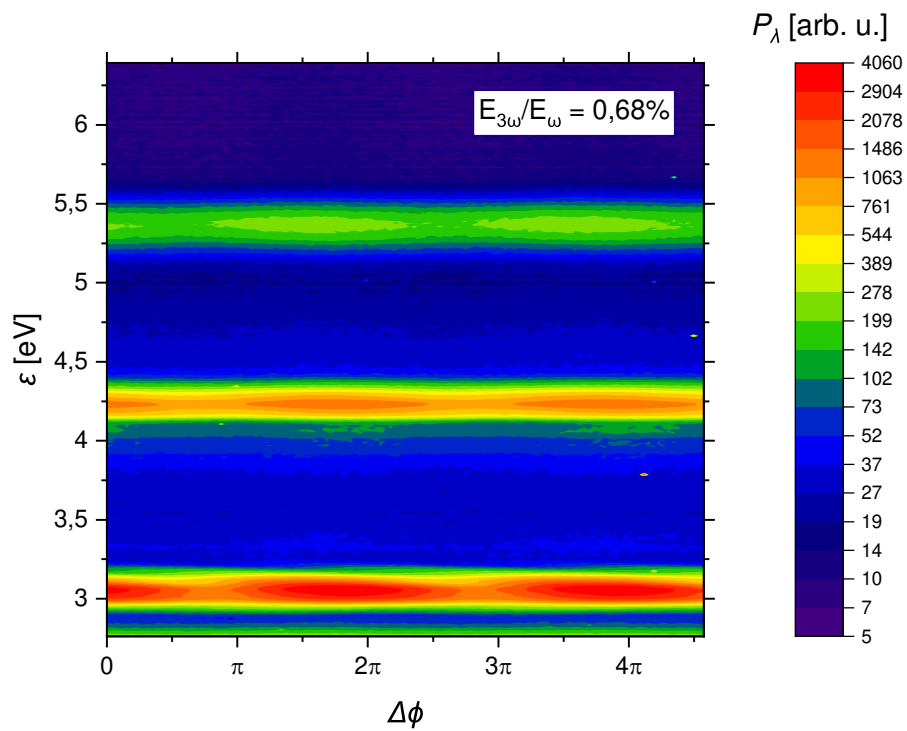
$$E_{\omega,3\omega} = \sqrt{\frac{2I_0^{\omega,3\omega}}{c\epsilon_0 n_{Si}^{\omega,3\omega}}}. \quad (3.7)$$

Detekované stredné výkony potom vo výsledku odpovedajú amplitúdam poľa na základnej frekvencii  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  a  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ .

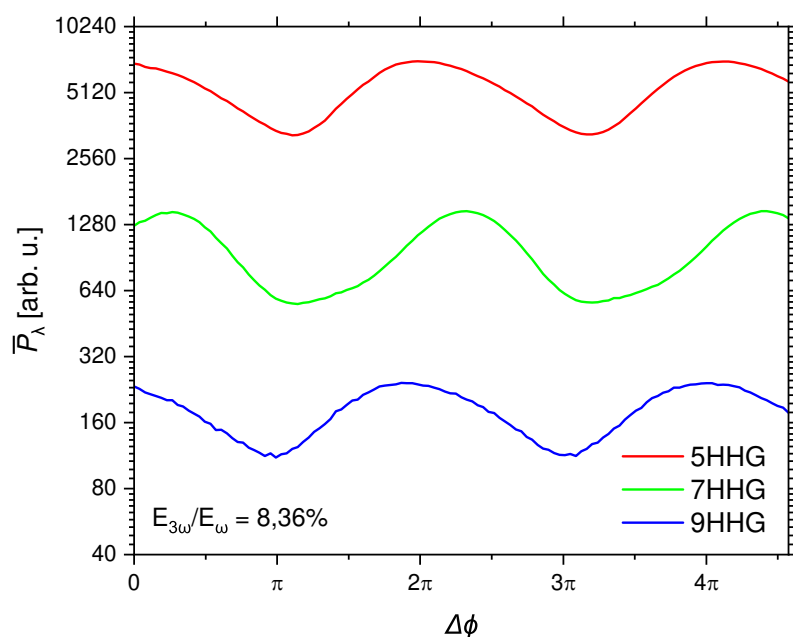
Pri ďalších meraniach sme následne zvolili oblasť zahrňujúcu niekoľko períod modulácie, v ktorej sme pozorovali najväčšiu amplitúdu modulácie signálu vysokých harmonických frekvencií. Túto oblasť sme následne premerali detailnejšie pre menší krok posunu dráhy, na ktorej bol optický hranol upevnený, pre rôzne pomery amplitúd tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$ . Výsledná závislosť pre prípad amplitúdy poľa na základnej frekvencii odpovedajúcej hodnote  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  je pre vysoký pomer amplitúd generujúcich poľí uvedená na obrázku 3.8 a pre nízky pomer amplitúd na obrázku 3.9.



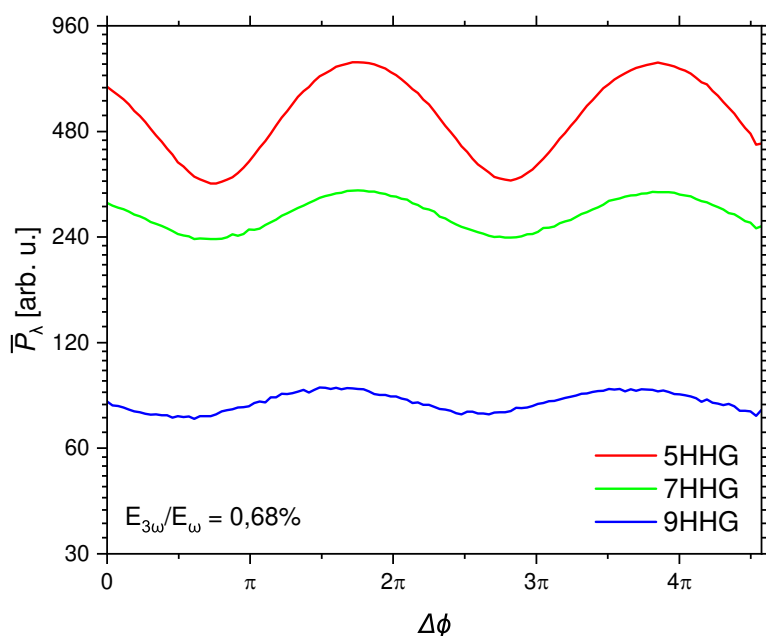
Obr. 3.8: Modulácia intenzity vysokých harmonických frekvencií pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 8,36\%$ . Spektrálna hustota výkonu je v logaritmickej škále.



Obr. 3.9: Modulácia intenzity vysokých harmonických frekvencií pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 0,68\%$ . Spektrálna hustota výkonu je v logaritmickej škále.



Obr. 3.10: Modulácia signálu vysokých harmonických frekvencií 5. (červená), 7. (zelená) a 9. (modrá) rádu stredovaná cez energiu fotónu pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_\omega = 8,36\%$  po odčítaní pozadia. Stredná spektrálna hustota výkonu je v logaritmickkej škále.



Obr. 3.11: Modulácia signálu vysokých harmonických frekvencií 5. (červená), 7. (zelená) a 9. (modrá) rádu stredovaná cez energiu fotónu pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_\omega = 0,68\%$  po odčítaní pozadia. Stredná spektrálna hustota výkonu je v logaritmickkej škále.



S klesajúcim pomerom amplitúd zjavne klesá aj amplitúda modulácie intenzity vysokých harmonických frekvencií, kedy pre vysoký pomer amplitúd je periodická modulácia dobre pozorovateľná, pričom ale pri znižovaní pomeru modulácia postupne zaniká. To sa deje v dôsledku znižovania efektivity kvantovej koherentnej kontroly. Pre jednotlivé rády vysokých harmonických frekvencií tiež pozorujeme maximum signálu pre odlišné relatívne fázové posuny medzi generujúcimi polami. Polohy týchto maxím sa taktiež zároveň menia so zmenou pomeru amplitúd medzi polom základnej a tretej harmonickej frekvencie.

Spektrálnu hustotu výkonu jednotlivých rádov vysokých harmonických frekvencií sme následne vystredovali cez energiu fotónu v spektrálnom intervale v okolí strednej energie fotónu daného harmonického rádu. Spektrálny interval sme zvolili tak, aby obsahoval práve celý spektrálny pík jednej z detekovaných vysokých harmonických frekvencií. Stredovanie spektrálnej hustoty výkonu sme následne previedli aj cez interval mimo spektrálnych píkov jednotlivých vysokých harmonických frekvencií, čím sme získali priebeh strednej spektrálnej hustoty výkonu pozadia. Výsledné hodnoty pozadia sme následne odčítali od strednej spektrálnej hustoty výkonu jednotlivých harmonických rádov. Výsledné závislosti strednej spektrálnej hustoty výkonu  $\bar{P}_\lambda$  na relatívnom fázovom posune polí základnej a tretej harmonickej frekvencie  $\Delta\phi$  vystredované cez energiu fotónu pre prípad  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ , získané stredovaním z detekovaných spektier na obrázkoch 3.8 a 3.9, sú uvedené pre vysoký pomer amplitúd polí na obrázku 3.10 a pre nízky pomer amplitúd polí na obrázku 3.11.

Vidíme, že amplitúda modulácie skutočne s poklesom pomeru amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie klesá, čo je zapríčinené klesajúcou efektivitou kvantovej koherentnej kontroly. Taktiež jednotlivé rády vysokých harmonických frekvencií nadobúdajú maximálnej intenzity pri rôznom relatívnom fázovom posune generujúcich polí. To je spôsobené nehomogénnym rozdelením elektrónov vo vodivostnom páse vzorky pri interakcii s generujúcim optickým žiarením, kedy sa mení populácia elektrónov a dier na jednotlivých trajektóriách, a tým pádom aj intenzita jednotlivých rádov vysokých harmonických frekvencií. Jednotlivé rády tak dosahujú maxima intenzity pri relatívnom fázovom posune, kedy sú trajektórie elektrón-dierových párov prispievajúcich do daného harmonického rádu najviac populované. Trajektória závisí aj od tvaru generujúcej vlny, ktorý sa mení so zmenou pomeru amplitúd polí základnej a tretej harmonickej frekvencie. V dôsledku toho sa mení príspevok trajektórie k jednotlivým rádom vysokých harmonických frekvencií, keďže zmenou dynamiky elektrón-dierového páru sa mení aj finálny stav v Brillouinovej zóne, z ktorého dochádza k jeho následnej rekombinácii.

Na začiatok sme tak premerali závislosť strednej spektrálnej hustoty výkonu na posune optického hranola pre dvanásť rôznych pomerov amplitúd generujúcich polí a ich následným fitovaním kosínusom sme obdržali hodnoty periódy modulácie signálu vysokých harmonických frekvencií. Priemerovaním týchto hodnôt sme následne získali strednú hodnotu periódy modulácie  $\bar{p} = (524,65 \pm 0,28) \mu\text{m}$  v zmysle posunu optického hranola, ktorá odpovedá relatívnemu fázovému posunu polí o  $2\pi$ . V grafoch preto uvádzame rovno závislosť na relatívnom fázovom posune polí namiesto závislosti na posune optického hranola. Túto hodnotu sme následne pri fitovaní ďalších závislostí fixovali, čím sme dosiahli vyššej presnosti fitu.

$E_{3\omega}/E_\omega$ [%]	$\Delta\phi_0$ [ $10^{-2}\pi$ ]	$V$ [%]
8,36	$2,56 \pm 0,38$	$55,72 \pm 0,71$
6,55	$9,13 \pm 0,56$	$35,4 \pm 0,63$
5,06	$9,04 \pm 0,44$	$46,19 \pm 0,67$
3,32	$-0,19 \pm 0,43$	$74,6 \pm 1,1$
2,56	$-5,39 \pm 0,32$	$76,44 \pm 0,84$
1,92	$-12,36 \pm 0,37$	$69,39 \pm 0,91$
1,42	$-15,12 \pm 0,55$	$57,0 \pm 1,1$
0,68	$-21,41 \pm 0,54$	$36,41 \pm 0,66$
0,26	$-150,3 \pm 1,1$	$5,43 \pm 0,19$

Tab. 3.1: Hodnoty fázového posunu modulácie  $\Delta\phi_0$  a viditeľnosti modulácie  $V$  piateho rádu vysokej harmonickej frekvencie pre jednotlivé pomery amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$  pri  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ .

$E_{3\omega}/E_\omega$ [%]	$\Delta\phi_0$ [ $10^{-2}\pi$ ]	$V$ [%]
8,36	$10,06 \pm 0,53$	$54,85 \pm 0,97$
6,55	$29,70 \pm 0,88$	$48,2 \pm 1,3$
5,06	$21,27 \pm 0,67$	$54,5 \pm 1,2$
3,32	$3,65 \pm 0,49$	$52,03 \pm 0,85$
2,56	$-2,97 \pm 0,39$	$44,82 \pm 0,56$
1,92	$-10,95 \pm 0,42$	$35,06 \pm 0,48$
1,42	$-14,47 \pm 0,60$	$25,06 \pm 0,49$
0,68	$-21,71 \pm 0,59$	$14,94 \pm 0,29$
0,26	$-129,2 \pm 1,2$	$2,84 \pm 0,11$

Tab. 3.2: Hodnoty fázového posunu modulácie  $\Delta\phi_0$  a viditeľnosti modulácie  $V$  siedmeho rádu vysokej harmonickej frekvencie pre jednotlivé pomery amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$  pri  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ .

$E_{3\omega}/E_\omega$ [%]	$\Delta\phi_0$ [ $10^{-2}\pi$ ]	$V$ [%]
8,36	$-12,99 \pm 0,46$	$35,99 \pm 0,55$
6,55	$-3,28 \pm 0,57$	$34,51 \pm 0,64$
5,06	$-5,14 \pm 0,48$	$42,67 \pm 0,67$
3,32	$-15,92 \pm 0,48$	$31,73 \pm 0,50$
2,56	$-22,15 \pm 0,43$	$26,65 \pm 0,38$
1,92	$-30,07 \pm 0,43$	$19,86 \pm 0,28$
1,42	$-32,79 \pm 0,78$	$14,45 \pm 0,37$
0,68	$-40,14 \pm 0,80$	$8,52 \pm 0,22$
0,26	$-139 \pm 20$	$0,53 \pm 0,33$

Tab. 3.3: Hodnoty fázového posunu modulácie  $\Delta\phi_0$  a viditeľnosti modulácie  $V$  deviateho rádu vysokej harmonickej frekvencie pre jednotlivé pomery amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$  pri  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ .

$E_{3\omega}/E_\omega$ [%]	$\Delta\phi_0$ [ $10^{-2}\pi$ ]	V [%]
7,58	$74,03 \pm 0,52$	$52,25 \pm 0,95$
5,82	$65,89 \pm 0,59$	$64,4 \pm 1,4$
4,99	$66,50 \pm 0,48$	$69,9 \pm 1,2$
3,77	$55,19 \pm 0,44$	$79,7 \pm 1,3$
2,09	$44,81 \pm 0,50$	$76,2 \pm 1,3$
1,53	$42,10 \pm 0,38$	$63,77 \pm 0,81$
1,18	$35,75 \pm 0,38$	$43,06 \pm 0,51$

Tab. 3.4: Hodnoty fázového posunu modulácie  $\Delta\phi_0$  a viditeľnosti modulácie V piateho rádu vysokej harmonickej frekvencie pre jednotlivé pomery amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$  pri  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ .

$E_{3\omega}/E_\omega$ [%]	$\Delta\phi_0$ [ $10^{-2}\pi$ ]	V [%]
7,58	$97,59 \pm 0,89$	$85,9 \pm 2,9$
5,82	$80,41 \pm 0,80$	$80,1 \pm 2,4$
4,99	$78,87 \pm 0,71$	$75,9 \pm 2,0$
3,77	$68,51 \pm 0,57$	$66,2 \pm 1,3$
2,09	$54,65 \pm 0,54$	$39,06 \pm 0,69$
1,53	$51,62 \pm 0,45$	$29,11 \pm 0,42$
1,18	$45,36 \pm 0,46$	$18,30 \pm 0,26$

Tab. 3.5: Hodnoty fázového posunu modulácie  $\Delta\phi_0$  a viditeľnosti modulácie V siedmeho rádu vysokej harmonickej frekvencie pre jednotlivé pomery amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$  pri  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ .

$E_{3\omega}/E_\omega$ [%]	$\Delta\phi_0$ [ $10^{-2}\pi$ ]	V [%]
7,58	$86,50 \pm 0,93$	$49,3 \pm 1,6$
5,82	$71,66 \pm 0,69$	$47,3 \pm 1,1$
4,99	$70,68 \pm 0,62$	$44,23 \pm 0,94$
3,77	$60,59 \pm 0,53$	$36,89 \pm 0,65$
2,09	$46,14 \pm 0,55$	$22,03 \pm 0,37$
1,53	$41,98 \pm 0,55$	$16,31 \pm 0,27$
1,18	$35,87 \pm 0,56$	$9,83 \pm 0,17$

Tab. 3.6: Hodnoty fázového posunu modulácie  $\Delta\phi_0$  a viditeľnosti modulácie V deviateho rádu vysokej harmonickej frekvencie pre jednotlivé pomery amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$  pri  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ .

Pri zafixovanej perióde modulácie  $\bar{p}$  v dĺžkových jednotkách, sme potom ďalšie závislosti strednej spektrálnej hustoty výkonu  $\bar{P}_\lambda(x)$  na posune optického hranola  $x$  fitovali periodickou funkciou:

$$\bar{P}_\lambda(x) = A_{mod} \cos\left(2\pi \frac{x - x_c}{\bar{p}}\right) + \bar{P}_{\lambda,0}, \quad (3.8)$$

kde  $A_{mod}$  je amplitúda modulácie,  $x_c$  je posun kosínusovej modulácie v zmysle posunu optického hranola a  $\bar{P}_{\lambda,0}$  je stredná hodnota modulácie cez jednu periódu. Posun modulácie intenzity vysokých harmonickej frekvencií v dĺžkových jednotkách sme následne prepočítali na relatívny fázový posun  $\Delta\phi_0$  polí základnej

a tretej harmonickej frekvencie v radiánoch:

$$\Delta\phi_0 = x_c \frac{2\pi}{\bar{p}}. \quad (3.9)$$

Následne sme spočítali viditeľnosť modulácie podľa vzťahu:

$$V = \frac{(A_{mod} + \bar{P}_{\lambda,0}) - (A_{mod} - \bar{P}_{\lambda,0})}{(A_{mod} + \bar{P}_{\lambda,0}) + (A_{mod} - \bar{P}_{\lambda,0})}. \quad (3.10)$$

Výsledné hodnoty relatívneho fázového posunu a viditeľnosti modulácie sú v prípade  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  pre jednotlivé rády vysokých harmonických frekvencií uvedené v tabuľkách 3.1, 3.2 a 3.3. Pre prípad amplitúdy základného poľa  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$  sú výsledky uvedené v tabuľkách 3.4, 3.5 a 3.6.

### 3.3.1 Fázový posun modulácie poľa vysokých harmonických frekvencií

Nameraná závislosť fázového posunu modulácie na pomere amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie je uvedená na obrázku 3.12 a) pre  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  a na obrázku 3.12 b) pre  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ . Tieto dáta sú uvedené bez korekcie fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie na posun BBO kryštálu, ktorá bola diskutovaná v kapitole 3.2 a je uvedená na obrázku 3.5. Táto korekcia odpovedá fázovému posunu poľa tretej harmonickej frekvencie vplyvom posunu generujúceho BBO kryštálu po osi zväzku. Vo výsledku tak fázový posun poľa tretej harmonickej frekvencie dôsledkom posunu generujúceho BBO kryštálu vedie na zmenu relatívneho fázového posunu medzi poľom základnej a tretej harmonickej frekvencie. Závislosti po prevedení korekcie na príspevok fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie od posunu generujúceho kryštálu sú uvedené pre prípad  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  na obrázku 3.13 a) a pre prípad  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$  na obrázku 3.13 b).

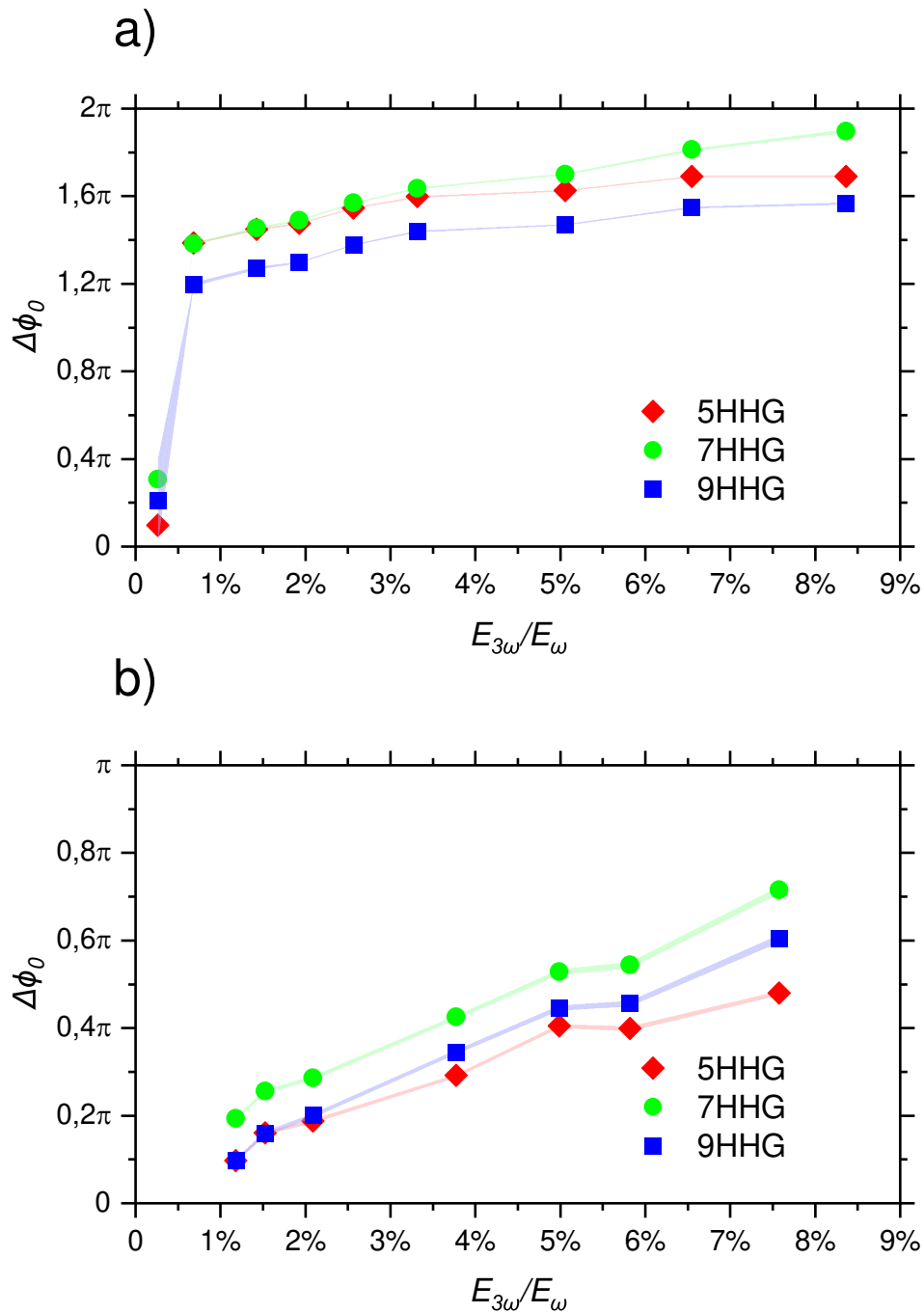
Relatívne fázové posuny medzi moduláciami jednotlivých harmonických rádov sme však pre daný pomer amplitúd poľa tretej harmonickej a základnej frekvencie, teda pre fixnú polohu BBO kryštálu voči ohnisku fundamentálneho zväzku, schopní určiť aj bez prevedenia tejto korekcie. To je dôsledkom konštantného fázového príspevku od posunu generujúceho kryštálu ku všetkým harmonickým rádom, ich relatívny fázový posun to preto neovplyvňuje. Taktiež, z prevedených meraní sme schopní určiť len relatívny fázový posun generujúcich polí medzi dvoma experimentálnymi bodmi, pričom absolútny fázový posun nepoznáme. To nám dáva určitú voľnosť a v grafoch, pre lepší prehľad závislostí, preto volíme počiatok horizontálnej osi odpovedajúci nulovému fázovému posunu.

V prípade amplitúdy fundamentálneho poľa  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  uvedeného na obrázku 3.13 a) pozorujeme v oblasti nízkych pomerov amplitúd generujúcich polí s nárastom tohto pomeru rýchlu zmenu fázového posunu modulácie. Hlavnou príčinou tejto prudkej zmeny fázového rozdielu pre nízky pomer amplitúd bola pravdepodobne nepresnosť merania pri interferencii dvoch polí tretej harmonickej frekvencie, pomocou ktorého sme určovali v kapitole 3.2 korekciu fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie na posun generujúceho BBO kryštálu. V prípade nízkeho pomeru generujúcich polí, bol jeden z použitých zväzkov tretej harmonickej frekvencie výrazne slabší ako druhý, čo viedlo na zníženú presnosť

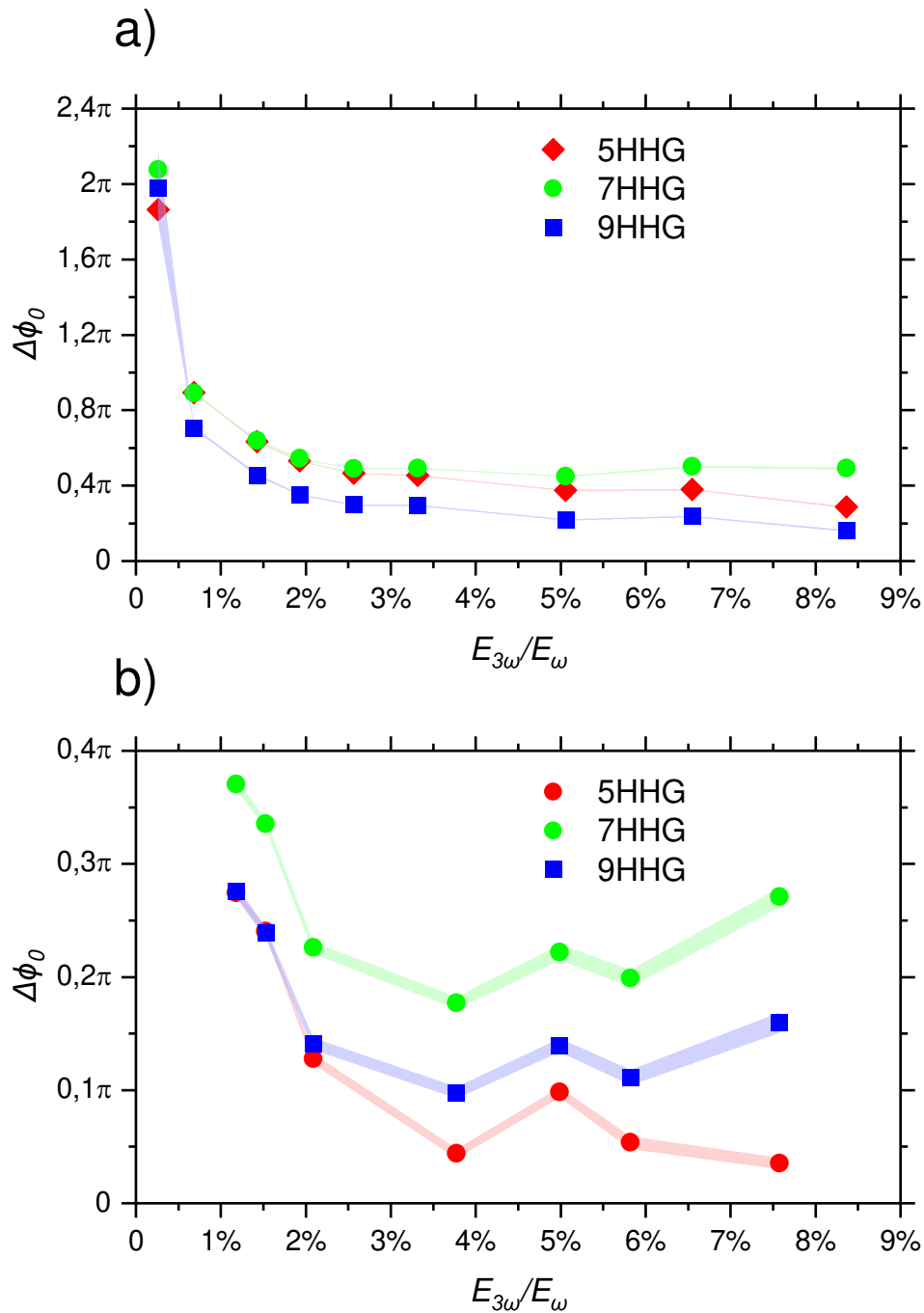
merania korekcie fázového posunu. S postupným zvyšovaním pomeru amplitúd generujúcich polí sa pokles závislosti už spomaľuje a približne od pomeru amplitúd  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 5\%$  sa fázový posun takmer nemení a v závislosti pozorujeme plató. Daný harmonický rád tak následne nadobúda maxima pre približne konštantný relatívny fázový posun medzi poľom na základnej a tretej harmonickej frekvencii bez ohľadu na pomer ich amplitúd.

Pre prípad amplitúdy fundamentálneho poľa  $E_{\omega} = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$  uvedeného na obrázku 3.13 b), má závislosť podobný charakter, ako v predošlom prípade. Na rozdiel od predchádzajúceho prípadu nižšej amplitúdy fundamentálneho poľa však nepozorujeme pre nízke pomery amplitúd tak prudkú zmenu vo fázovom posune. Pre vyššie pomery amplitúd sa ale experimentálne body pre rôzne pomery líšia viac, ako v prípade slabšieho fundamentálneho poľa. Dochádza tiež k zmene relatívneho fázového posunu modulácie medzi jednotlivými harmonickými rádmi. V prípade nižšej amplitúdy fundamentálneho poľa pozorujeme v oblasti nízkych pomerov v rámci chyby prekryv závislostí piateho a siedmeho harmonického rádu, pričom modulácia deviateho rádu je posunutá do nižších hodnôt fázy. Pre prípad vyššej amplitúdy generujúceho poľa naopak pozorujeme v oblasti nízkych pomerov amplitúd v rámci chyby prekryv závislostí piateho a deviateho harmonického rádu, pričom závislosť siedmeho rádu je posunutá k vyšším hodnotám fázy. Vplyvom silnej nelinearity procesu koherentnej kontroly a generácie vysokých harmonických frekvencií sa tak s nárastom amplitúdy fundamentálneho poľa mení aj celá dynamika, teda časové okno tunelovania elektrónov z valenčného do vodivostného pásu, ako aj následná trajektória a finálny stav elektrón-dierového páru v Brillouinovej zóne pred rekombináciou.

Fázový posun modulácie  $\Delta\phi_0$  odpovedá hodnote relatívneho fázového posunu polí základnej a tretej harmonickej frekvencie pri danom pomere ich amplitúd, pri ktorej nadobúda príslušný rád vysokej harmonickej frekvencie maximálnej intenzity. Superponované pole dané vzťahom (1.24) má teda v prípade maximálnej intenzity jedného z pozorovaných rádov tvar, vďaka ktorému sa elektróny šíria po takej trajektórii, pri ktorej dochádza ku konštruktívnej interferencii dvoch po sebe idúcich elektrónových vlnových balíkov. Tieto vlnové balíky sa šíria rovnakým smerom a tunelovali do vodivostného pásu pri maxime superponovaného poľa v dvoch po sebe idúcich optických cykloch. V dôsledku toho, elektrón akoby interferuje so sebou samým tak, že akurát konštruktívne prispieva do daného rádu vysokej harmonickej frekvencie. Zároveň tento fázový rozdiel odpovedá pri danom pomere amplitúd generujúcich polí vysokej populácii elektrónov na tejto trajektórii, teda vysokej pravdepodobnosti tunelovania z valenčného do vodivostného pásu a širokému časovému oknu, kedy tieto elektróny tunelujú.



Obr. 3.12: Závislosť fázového posunu periodickej modulácie intenzity 5. (červené body), 7. (zelené body) a 9. (modré body) rádu vysokých harmonických frekvencií na pomere amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie bez korekcie na posun BBO kryštálu pre amplitúdu fundamentálneho poľa a)  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ , b)  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ . Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblasťami medzi experimentálnymi bodmi. Počiatok vertikálnej osi je posunutý tak, aby odpovedal nulovému fázovému posunu.



Obr. 3.13: Závislosť fázového posunu periodickej modulácie intenzity 5. (červené body), 7. (zelené body) a 9. (modré body) rádu vysokých harmonických frekvencií na pomere amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie po prevedení korekcie na posun BBO kryštálu pre amplitúdu fundamentálneho poľa a)  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ , b)  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ . Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblasťami medzi experimentálnymi bodmi. Počiatok vertikálnej osi je posunutý tak, aby odpovedal nulovému fázovému posunu.

### 3.3.2 Viditeľnosť modulácie poľa vysokých harmonických frekvencií

Závislosť viditeľnosti modulácie na pomere amplitúd generujúcich polí je ďalej uvedená na obrázku 3.14 a) pre amplitúdu základného poľa  $E_\omega = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  a na obrázku 3.14 b) pre  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ . Pre všetky tri pozorované rády vysokých harmonických frekvencií pozorujeme s nárastom amplitúdy poľa základnej frekvencie aj nárast maximálnej hodnoty viditeľnosti modulácie. Narastá taktiež pomer amplitúd generujúcich polí, pre ktoré závislosť viditeľnosti tieto maximá dosahuje (pozri tiež tabuľky 3.1–3.6). Najvyšší nárast maximálnej viditeľnosti pozorujeme pre siedmy rád harmonickej frekvencie, ktorá v prípade amplitúdy  $E_\omega = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$  dokonca prevyšuje maximálnu viditeľnosť piatej harmonickej frekvencie. Pre piaty rád zjavne postačuje k dosiahnutiu maximálnej modulácie pomerne slabé pole tretej harmonickej frekvencie voči poľu na základnej frekvencii. U siedmeho a deviateho rádu však musí byť pomer amplitúd už vyšší, čo je spôsobené hlavne príspevkom nelineárnej interakcie tretieho rádu, kedy dochádza k miešaniu jedného fotónu na tretej harmonickej a dvoch fotónov na základnej frekvencii. Pre vyššie harmonické frekvencie sa ale jedná už o nelinearity vyšších rádov, ich príspevok je preto výrazne nižší.

Viditeľnosť modulácie môžeme tiež vyjadriť pomocou vzťahu:

$$V = \frac{P_{rekomb,max} - P_{rekomb,min}}{P_{rekomb,max} + P_{rekomb,min}}, \quad (3.11)$$

kde  $P_{rekomb,max}$  a  $P_{rekomb,min}$  je maximálna a minimálna hodnota pravdepodobnosti koherentnej rekombinácie elektrónu s dierou  $P_{rekomb}$ , ktorá vedie k emisii fotónu vysokej harmonickej frekvencie. Tá je daná jednak pravdepodobnosťou kvantového tunelovania elektrónu z valenčného do vodivostného pásu, ako aj trajektóriou elektrónu a diery po tunelovej excitácii.

Hrubý odhad priebehu závislosti viditeľnosti modulácie na pomere amplitúd polí môžeme uskutočniť pomocou poruchovej teórie, v ktorej namiesto kvantového tunelovania elektrónu z valenčného do vodivostného pásu predpokladáme excitáciu elektrónu pomocou viacfotónovej absorpcie. Ku generácii piatej harmonickej frekvencie by tak dochádzalo za excitácie elektrónu, a to buď cez absorpciu jedného fotónu na tretej harmonickej frekvencii a dvoch fotónov na základnej frekvencii, alebo cez absorpciu piatich fotónov na základnej frekvencii. Nech priebehy polí na základnej a tretej harmonickej frekvencii majú tvar:

$$E_{fund} = E_\omega e^{i(\omega t + \Delta\phi_\omega)}, \quad (3.12)$$

$$E_{THG} = E_{3\omega} e^{i(3\omega t + \Delta\phi_{3\omega})}. \quad (3.13)$$

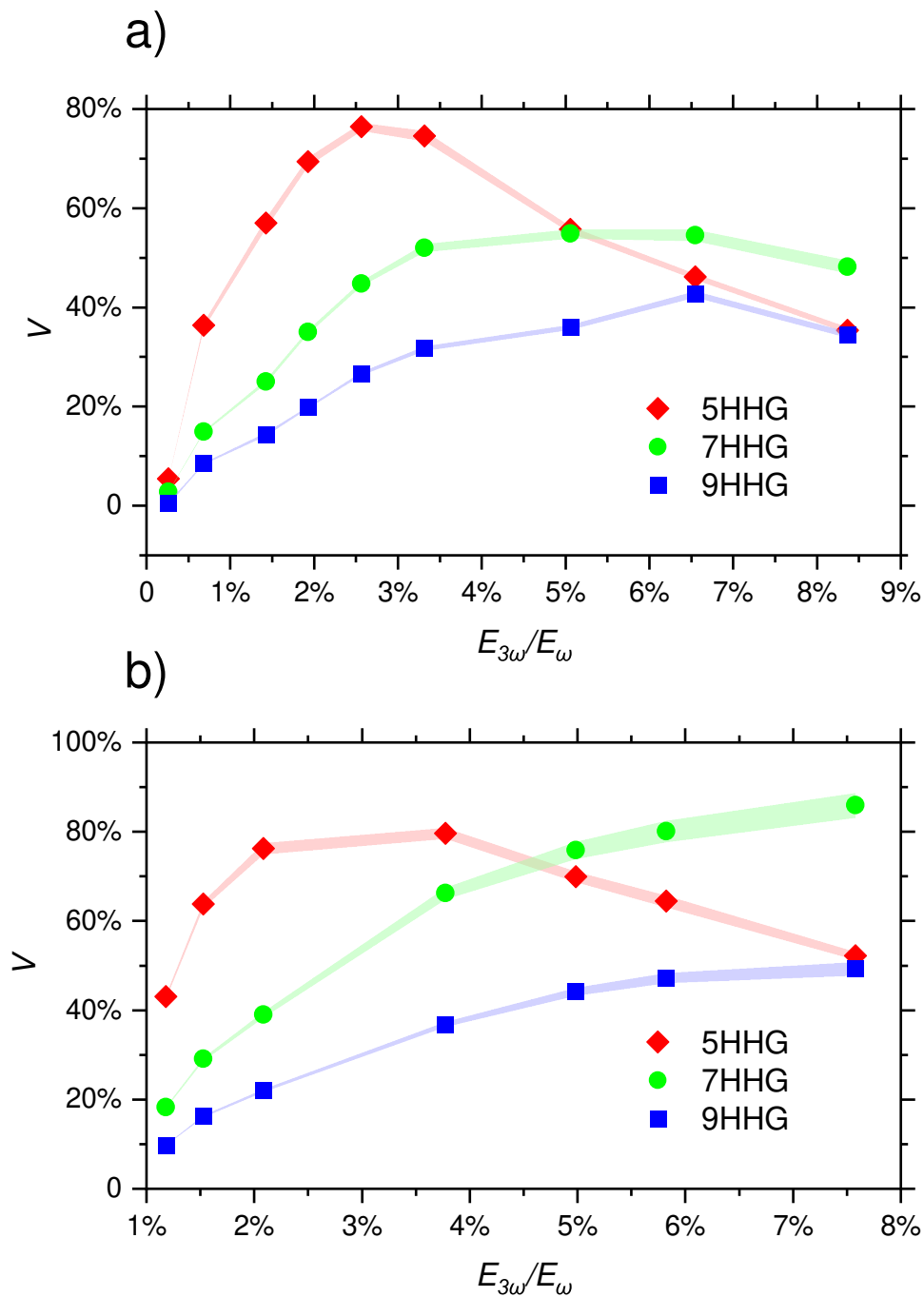
Amplitúdy pravdepodobnosti generácie piatej harmonickej frekvencie pomocou trojfotónovej alebo päťfotónovej absorpcie majú potom tvar:

$$A_{3\omega,\omega,\omega} = \alpha E_{THG} E_{fund}^2 = \alpha E_{3\omega} E_\omega^2 e^{i(5\omega + \Delta\phi_{3\omega} + 2\Delta\phi_\omega)}, \quad (3.14)$$

$$A_{\omega,\omega,\omega,\omega,\omega} = \beta E_{fund}^5 = \beta E_\omega^5 e^{i(5\omega + 5\Delta\phi_\omega)}, \quad (3.15)$$

kde  $\alpha$  a  $\beta$  sú konštanty úmernosti troj- a päťfotónovej absorpcie. Pravdepodobnosť generácie fotónu piatej harmonickej frekvencie môžeme potom vyjadriť





Obr. 3.14: Nameraná závislosť viditeľnosti modulácie intenzity 5. (červené body), 7. (zelené body) a 9. (modré body) rádu vysokých harmonických frekvencií po odčítaní pozadia na pomere amplitúd polí tretej harmonickkej a základnej frekvencie pre amplitúdu fundamentálneho pola a)  $E_{\omega} = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$ , b)  $E_{\omega} = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$ . Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblastami medzi experimentálnymi bodmi.

v tvare:

$$P_{emis}^{5HHG} = \gamma |A_{3\omega, \omega, \omega} + A_{\omega, \omega, \omega, \omega}|^2 = \gamma [\alpha^2 E_{3\omega}^2 E_{\omega}^4 + \beta^2 E_{\omega}^{10} + 2\alpha\beta E_{3\omega} E_{\omega}^7 \cos(\Delta\phi_{3\omega} - 3\Delta\phi_{\omega})], \quad (3.16)$$

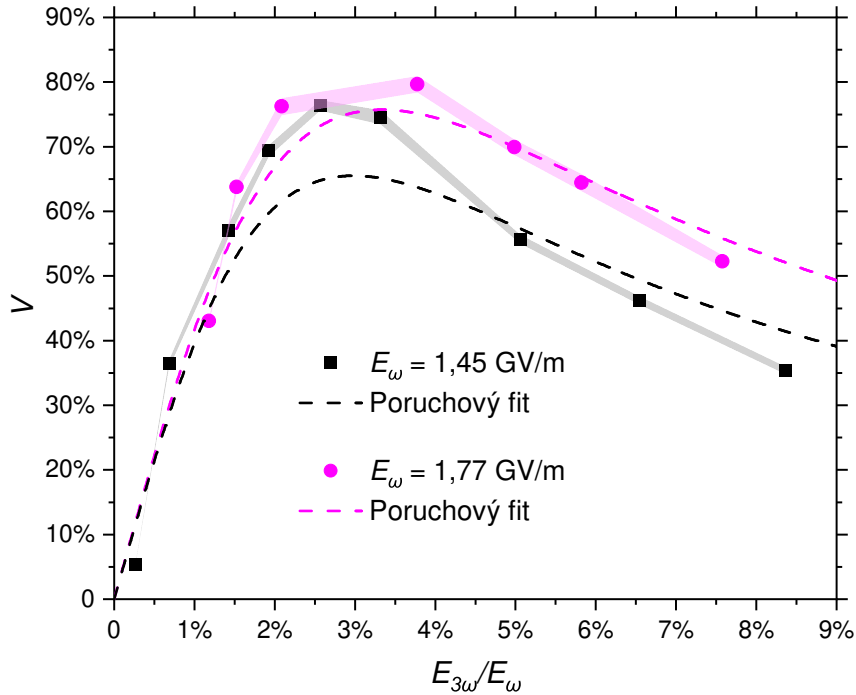
kde  $\gamma$  je konštanta úmernosti ktorá, ako uvidíme, nebude hrať rolu. Prvý člen predošlého vzťahu tak predstavuje pravdepodobnosť emisie fotónu piatej harmonickej frekvencie pomocou absorpcie jedného fotónu tretej harmonickej a dvoch fotónov základnej frekvencie. Druhý člen zas predstavuje pravdepodobnosť emisie za absorpcie piatich fotónov na základnej frekvencii. Pre viditeľnosť modulácie však bude najpodstatnejší posledný člen predstavujúci interferenciu predošlých dvoch príspevkov.

Maximálna a minimálna hodnota pravdepodobnosti emisie fotónu piatej harmonickej frekvencie tak má tvar:

$$P_{emis,max}^{5HHG} = \gamma [\alpha^2 E_{3\omega}^2 E_{\omega}^4 + \beta^2 E_{\omega}^{10} + 2\alpha\beta E_{3\omega} E_{\omega}^7], \quad (3.17)$$

$$P_{emis,max}^{5HHG} = \gamma [\alpha^2 E_{3\omega}^2 E_{\omega}^4 + \beta^2 E_{\omega}^{10} - 2\alpha\beta E_{3\omega} E_{\omega}^7]. \quad (3.18)$$

Výsledná závislosť viditeľnosti modulácie  $V$  na pomere amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie po dosadení predošlých vzťahov do vzťahu 3.11



Obr. 3.15: Porovnanie experimentálnych dát viditeľnosti modulácie piatej harmonickej frekvencie po odčítaní pozadia (body) s fitom pomocou viditeľnosti modulácie danej poruchovým počtom (prerušované čiary). Porovnanie sme previedli pre amplitúdu základného poľa  $E_{\omega} = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  (čierna) a  $E_{\omega} = 1,77 \text{ GV m}^{-1}$  (magenta). Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblasťami medzi experimentálnymi bodmi.

má tvar:

$$V_{5HHG} = 2V_{5HHG}^{max} \frac{\delta \left( \frac{E_{3\omega}}{E_\omega} \right)}{\left( \frac{E_{3\omega}}{E_\omega} \right)^2 + \delta^2}, \quad (3.19)$$

kde sme zaviedli parameter  $\delta = \frac{\beta}{\alpha} E_\omega^2$ , ktorý odpovedá pomeru amplitúd polí základnej a tretej harmonickej frekvencie, pre ktorý pozorujeme maximum viditeľnosti modulácie piatej harmonickej frekvencie  $V_{5HHG}^{max}$ . Pre danú amplitúdu poľa základnej frekvencie je parameter  $\delta$  konštantný.

Na obrázku 3.15 porovnávame nami namerané hodnoty viditeľnosti modulácie piatej harmonickej frekvencie z obrázku 3.14 s fitmi pomocou závislosti 3.19 pre poruchovú viditeľnosť modulácie piatej harmonickej frekvencie. Krivky sa aj napriek snahe značne odlišujú, kedy nami namerané experimentálne dáta dosahujú pre obe amplitúdy základnej frekvencie v maxime vyššej hodnoty a následne prudšieho poklesu viditeľnosti, než dosahuje poruchový fit. Prístup pomocou poruchovej teórie je tu preto zjavne nesprávny, pričom pre vyššie rády harmonických frekvencií by bola odchýlka ešte väčšia.

### 3.3.3 Teoretická závislosť modulácie polí vysokých harmonických frekvencií

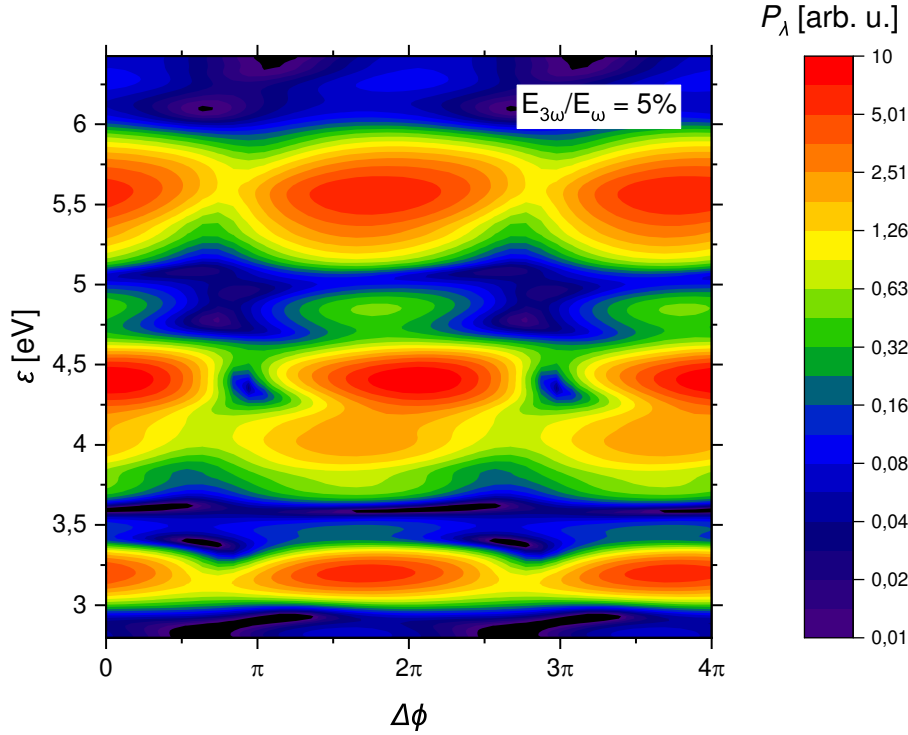
Experimentálne získané dáta porovnáme s teoretickou závislosťou uvedenou na obrázku 3.16. Dáta vypočítal a poskytol Dr. Thibault J.-Y. Derrien z výskumného centra HiLASE. Teoretický priebeh modulácie bol získaný numerickým výpočtom metódou time-dependent density functional theory (TDDFT) [41]. Pri výpočte bola použitá amplitúda poľa na základnej frekvencii  $E_\omega = 1,4 \text{ GV m}^{-1}$  a na tretej harmonickej frekvencii  $E_{3\omega} = 0,07 \text{ GV m}^{-1}$ . Vo výsledku tak pozorujeme moduláciu pri pomere amplitúd  $E_{3\omega}/E_\omega = 5\%$ . Dĺžka pulzov na oboch frekvenciách je  $\tau = 25 \text{ fs}$ .

Výsledkom numerických simulácií bol časový priebeh elektrického prúdu  $j(t)$  vplyvom interakcie vzorky so silným generujúcim poľom pre elektrón v určitej ohraničenej cele vo vzorke kremíka v efektívnom potenciáli okolitých jadier a elektrónov. Elektrický prúd je vo výsledku úmerný okamžitej rýchlosti urýchlených elektrónov. Amplitúda zrýchlenia elektrónov na frekvencii  $\omega$  tak odpovedá súčinu tejto frekvencie s elektrickým prúdom  $\omega j(t)$ . Keďže žiarenie emitované urýchleným nábojom je úmerné veľkosti zrýchlenia náboja, výsledné spektrum emitovaných vysokoenergetických fotónov bolo vypočítané pomocou kvadrátu Fourierovej transformácie podľa vzťahu:

$$S(\omega) = \omega^2 |\mathcal{F}\{j(t)\}|^2. \quad (3.20)$$

Výsledné spektrum na obrázku 3.16 skutočne približne odpovedá nami zmeraným spektrám na obrázkoch 3.8 a 3.9. V tomto prípade ale pozorujeme výrazne širšie spektrálne píky jednotlivých harmonických frekvencií. Taktiež, maximálne spektrálne hustoty výkonu jednotlivých rádov sú medzi sebou porovnateľné, na rozdiel od výsledkov experimentu, kedy maximálna spektrálna hustota výkonu s rádom značne klesá.

Spektrum sme následne spracovali analogicky ako pri experimentálnych hodnotách. V okolí každej harmonickej frekvencie sme zvolili spektrálny interval, cez

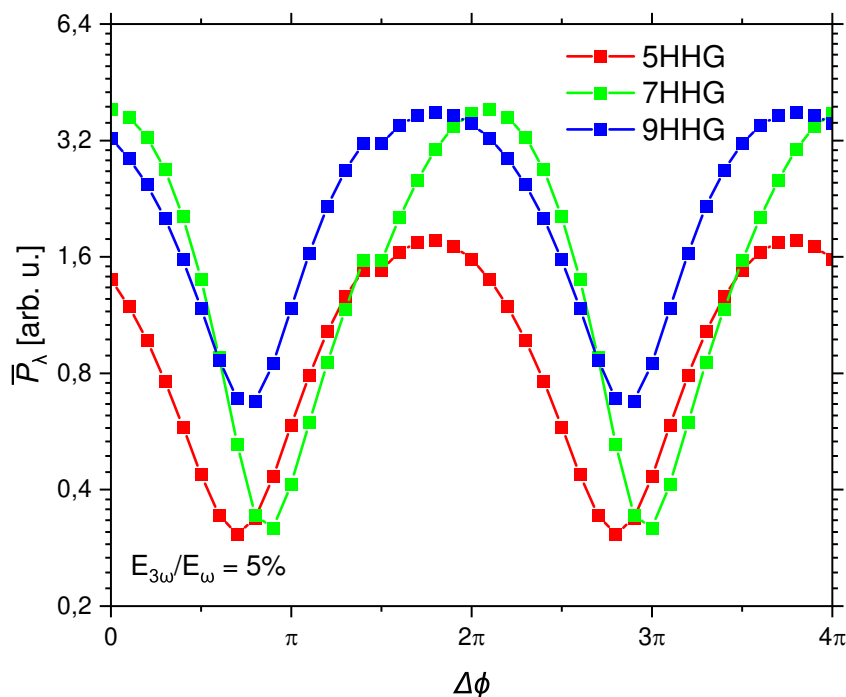


Obr. 3.16: Modulácia intenzity vysokých harmonických frekvencií pri zmene fázového posunu medzi polom základnej a tretej harmonickej frekvencie pre pomer amplitúd  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 5\%$ . Dáta boli získané numerickým výpočtom metódou TDDFT. Spektrálna hustota výkonu je uvedená v logaritmickej škále. Výpočet previedol Dr. Thibault J.-Y. Derrien z výskumného centra HiLASE.

ktorý sme potom stredovali spektrálnu hustotu výkonu. Výsledné závislosti strednej spektrálnej hustoty výkonu na fázovom posune medzi generujúcimi polami pre jednotlivé harmonické rády sú uvedené na obrázku 3.17. Jednotlivé krivky sme neskôr fitovali vzťahom 3.8. Výsledné hodnoty viditeľnosti modulácie a fázového posunu modulácie pre jednotlivé krivky sú:

$$\begin{aligned}
 V_{5HHG} &= (70,7 \pm 2,0) \%, & \Delta\phi_{0,5HHG} &= (1,7444 \pm 0,0082) \pi, \\
 V_{7HHG} &= (89,7 \pm 3,8) \%, & \Delta\phi_{0,7HHG} &= (2,009 \pm 0,011) \pi, \\
 V_{9HHG} &= (67,4 \pm 1,9) \%, & \Delta\phi_{0,9HHG} &= (1,7864 \pm 0,0083) \pi.
 \end{aligned}$$

Teoretickým výsledkom by mali byť najbližšie výsledky experimentov pre amplitúdu fundamentálneho poľa  $E_{\omega} = 1,45 \text{ GV m}^{-1}$  v tabulkách 3.1, 3.2 a 3.3 pre pomer amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 5,06\%$ . Pri porovnaní však pozorujeme značné rozdiely medzi výsledkami. Všetky hodnoty pre viditeľnosť modulácie sú pre výsledky získané numerickým výpočtom vyššie, ako sme namerali pri experimentoch. Taktiež, viditeľnosti modulácie piateho a siedmeho harmonického rádu sú podľa experimentálnych výsledkov pre tento pomer amplitúd porovnateľné, v prípade teoretického výsledku je však viditeľnosť siedmeho harmonického rádu výrazne vyššia ako piateho. Fázový posun modulácie medzi jednotlivými harmonickými rádmi sa taktiež líši, kedy v experimente pozorujeme s rastúcim fázovým posunom medzi generujúcimi polami postupne maximum modulácie deviateho,



Obr. 3.17: Modulácia signálu vysokých harmonických frekvencií 5. (červená), 7. (zelená) a 9. (modrá) rádu stredovaná cez energiu fotónu pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_\omega = 5\%$ . Stredná spektrálna hustota výkonu je v logaritmickvej škále. Dáta boli získané numerickým výpočtom metódou TDDFT.

piateho a nakoniec siedmeho harmonického rádu ako môžeme vidieť na obrázku 3.13 a). V hodnotách získaných numerickým výpočtom naopak pozorujeme postupne maximum modulácie piateho, deviateho a nakoniec siedmeho harmonického rádu.

Tieto odlišnosti v hodnotách viditeľnosti a fázového posunu modulácie polí vysokých harmonických frekvencií sú spôsobené predovšetkým odchýlkami medzi experimentom a jeho teoretickým modelom. Pri experimente boli dĺžky pulzov väčšie, pričom priebeh polí v čase nebol ideálne gaussovský, kedy pole tretej harmonickej frekvencie malo charakter dvojpulzu. Rovnako sa aj použité amplitúdy polí základnej a tretej harmonickej frekvencie pre experiment a numerický výpočet trochu líšia, čo ale z dôvodu silne nelineárnej povahy pozorovaných javov, môže viesť na značné rozdiely vo výsledkoch.

### 3.4 Spektrálna interferencia dvoch fázovo a časovo posunutých polí vysokých harmonických frekvencií

Zaradením polvlnnej doštičky (VD) medzi parabolické zrkadlo (P1) a BBO kryštál, v ktorom sme generovali pole tretej harmonickej frekvencie z horizontálne polarizovaného zväzku základnej frekvencie, sme dostali z pôvodne horizontálne polarizovaného fundamentálneho zväzku, zväzok s lineárnou polarizáciou pod  $45^\circ$ . Horizontálna časť tejto polarizácie tak generovala v BBO kryštáli vertikálne polarizované pole tretej harmonickej frekvencie a vertikálna časť kryštálom len prešla, pričom vplyvom anizotropie kryštálu došlo k časovému omeškaniu horizontálnej zložky polarizácie voči vertikálnej. Na vzorku kremíka dopadal samostatný pulz na základnej frekvencii a časovo omeškaná dvojica v čase prekrytých pulzov na základnej a tretej harmonickej frekvencii tak, ako v predošlom experimente (pozri kapitolu 2.2). Časovo omeškaná dvojica v čase prekrytých pulzov generovala modulované pole vysokých harmonických frekvencií  $E_{mod}^{HHG}(t)$ , kde modulácia závisela na relatívnom fázovom posune generujúcich polí. Samostatný pulz na základnej frekvencii však naopak generoval nemodulované pole vysokých harmonických frekvencií  $E_{nemod}^{HHG}(t)$ . Modulovaný pulz vysokých harmonických frekvencií bol tak voči nemodulovanému vo výsledku omeškaný v čase o hodnotu  $\tau$ . Výsledné pole malo potom časový priebeh:

$$E_{tot}^{HHG}(t) = E_{mod}^{HHG}(t) + E_{nemod}^{HHG}(t - \tau). \quad (3.21)$$

Časový posun  $\tau$  medzi pulzmi sa vo výslednom spektre prejavuje podľa posunovacieho teorému Fourierovej transformácie [42]:

$$\mathcal{F}\{E_{nemod}^{HHG}(t - \tau)\} = E_{nemod}^{HHG}(\omega) e^{-i\omega\tau}, \quad (3.22)$$

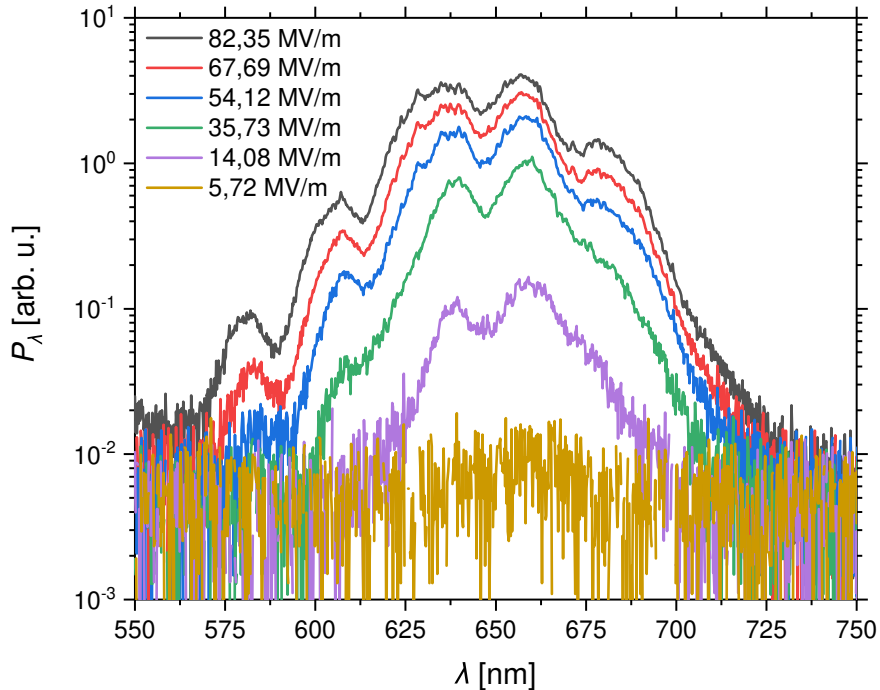
kde  $E_{nemod}^{HHG}(\omega)$  je Fourierova transformácia v čase neposunutého nemodulovaného poľa vysokých harmonických frekvencií  $E_{nemod}^{HHG}(t)$ . Analogicky budeme značiť Fourierovu transformáciu k modulovanému poľu vysokých harmonických frekvencií ako  $E_{mod}^{HHG}(\omega)$ . Výsledné spektrum tak má tvar:

$$\begin{aligned} S_{tot}^{HHG}(\omega) &= |\mathcal{F}\{E_{tot}^{HHG}(t)\}|^2 = |E_{mod}^{HHG}(\omega) + E_{nemod}^{HHG}(\omega) e^{-i\omega\tau}|^2 = \\ &= S_{mod}^{HHG}(\omega) + S_{nemod}^{HHG}(\omega) + 2\sqrt{S_{mod}^{HHG}(\omega) S_{nemod}^{HHG}(\omega)} \times \\ &\times \cos[\Delta\phi_{HHG}(\omega) + \omega\tau], \end{aligned} \quad (3.23)$$

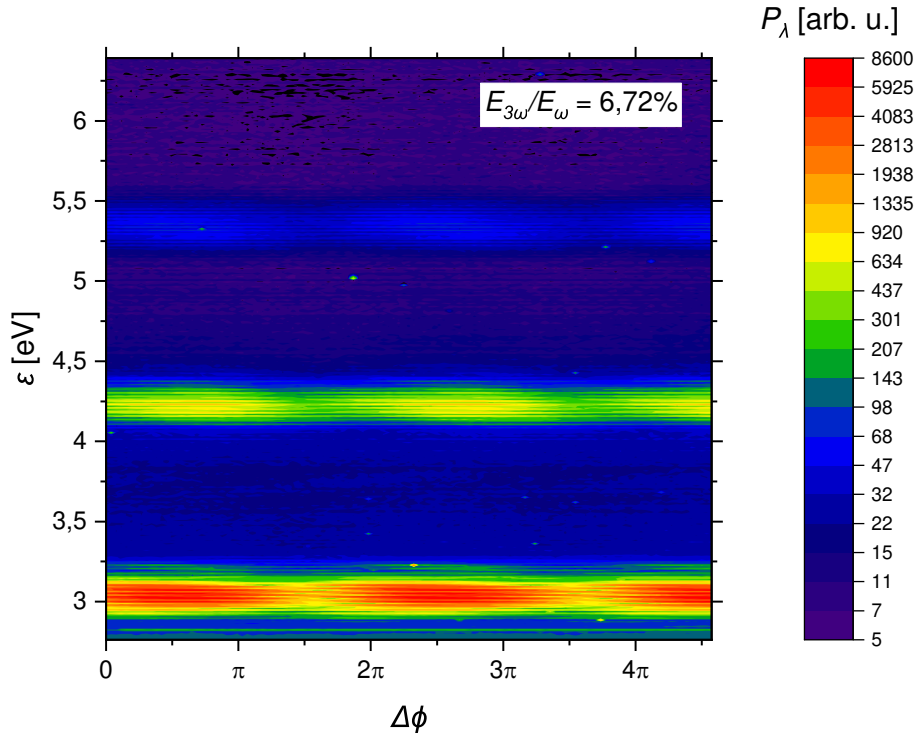
kde sme označili  $S_{mod}^{HHG}(\omega)$ , resp.  $S_{nemod}^{HHG}(\omega)$  kvadrát absolútnej hodnoty Fourierovej transformácie modulovaného, resp. nemodulovaného poľa vysokých harmonických frekvencií, teda spektrálnu intenzitu týchto polí. Ďalej,  $\Delta\phi_{HHG}(\omega)$  je rozdiel spektrálnych fáz modulovaného a nemodulovaného poľa vysokých harmonických frekvencií, pričom predpokladáme, že tento rozdiel je pre daný harmonický rád a pre fixnú polohu optického hranola (H1) a generujúceho kryštálu BBO (BBO) konštantný. V našom experimente sme menili relatívnu fázu medzi poľom základnej a tretej harmonickej frekvencie, čo sa prejavilo fázovým posunom generovaného poľa vysokých harmonických frekvencií. Konštantná zmena rozdielu

časových fáz nemodulovaného a modulovaného poľa vysokých harmonických frekvencií  $\Delta\phi_{HHG}(t)$  sa z definície Fourierovej transformácie prejaví rovnakou zmenou v rozdiel spekrálnych fáz. Ďalej nás preto bude zaujímať iba relatívna fázová zmena  $\Delta\phi_{HHG}$  pri zmene relatívnej fázy  $\Delta\phi$  medzi generujúcimi poľami.

Zo vzťahu (3.23) vidíme, že výsledné spektrum poľa vysokých harmonických frekvencií je dané súčtom spektier modulovanej a nemodulovanej časti poľa vyjadrených prvými dvoma členmi a oscilujúcim interferenčným členom závislom na fázovom a časovom posune medzi týmito poľami. Časový posun  $\tau$  tak viedol na spektrálnu interferenciu medzi týmito poľami a v detekovaných spektrách sme pozorovali v jednotlivých spektrálnych pásoch harmonických frekvencií ešte navyše interferenčné maximá a minimá. Fázový posun, ktorý je vo frekvencii konštantný, následne viedol na posun týchto interferenčných maxím a miním. Vzhľadom na fixnú hrúbku a orientáciu BBO kryštálu, v ktorom sme generovali tretiu harmonickú frekvenciu (BBO) a BBO kryštálu, v ktorom sme kompenzovali rôzne grupové rýchlosti poľa na základnej a tretej harmonickej frekvencii (AK), bol časový posun medzi horizontálnou a vertikálnou zložkou poľa na základnej frekvencii konštantný. Konštantný teda bol aj časový rozdiel medzi poľami jednotlivých vysokých harmonických frekvencií a vo výsledku bola konštantná aj perióda interferenčnej modulácie pre jednotlivé harmonické rády, ktorá je nepriamo úmerná tomuto časovému posunu. Polohy interferenčných maxím a miním sa preto menili iba v závislosti na zmene relatívnej fázy modulovaného a nemo-



Obr. 3.18: Spektrá poľa tretej harmonickej frekvencie pri rôznych amplitúdach poľa. Amplitúda poľa dopadajúceho pulzu na základnej frekvencii s horizontálnou polarizáciou je  $E_\omega = 1,23 \text{ GV m}^{-1}$ . Spektrálna hustota výkonu je uvedená v logaritmickú škále.

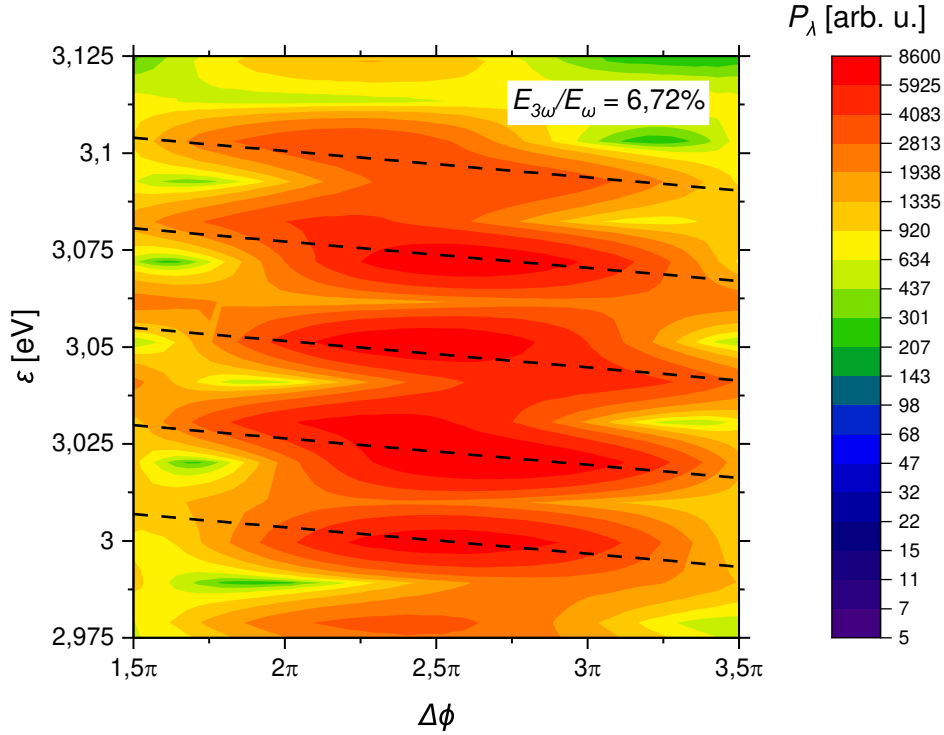


Obr. 3.19: Modulácia intenzity vysokých harmonických frekvencií pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_\omega = 6,72\%$ . Spektrálna hustota výkonu je v logaritmickej škále. V spektrách pozorujeme spektrálnu interferenciu polí vysokých harmonických frekvencií.

dulovaného poľa vysokých harmonických frekvencií, ktorá sa menila v dôsledku fázového posunu medzi poľom základnej a tretej harmonickej frekvencie. Cieľom tohto merania bolo určiť z posunu interferenčných maxím a miním v spektre vysokých harmonických frekvencií, ktorý sa mení vplyvom fázového posunu medzi poľom základnej a tretej harmonickej frekvencie, relatívny fázový posun medzi modulovaným a nedomulovaným poľom vysokých harmonických frekvencií pre rôzne pomery amplitúd polí na tretej harmonickej a základnej frekvencii.

Pri meraniach sme použili pulzy na základnej frekvencii s lineárnou polarizáciou  $45^\circ$  za polvlnnou doštičkou (VD) a so stredným výkonom  $P_{str}^\omega = 15,3$  mW meraným za druhým parabolickým zrkadlom (P2). Na vzorku kremíka tak dopadali pôvodne (pred polarizátorom) horizontálne polarizované pulzy na základnej frekvencii o amplitúde poľa  $E_\omega = 1,23$  GV m $^{-1}$  a pôvodne vertikálne polarizované pulzy o amplitúde poľa  $E_\omega = 1,45$  GV m $^{-1}$ . Merania sme previedli pre šesť rôznych amplitúd poľa tretej harmonickej frekvencie, ktorého spektrá sú uvedené na obrázku 3.18. Pomer amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie  $E_{3\omega}/E_\omega$  uvažujeme ako pomer amplitúdy poľa tretej harmonickej frekvencie a amplitúdy poľa základnej frekvencie s horizontálnou polarizáciou pred polarizátorom (POL), teda pomer amplitúd polí, ktoré boli v čase prekryté a generovali modulované pole vysokých harmonických frekvencií. Analogicky zavádzame aj fázový posun medzi týmito poľami  $\Delta\phi$ . Príklad detekovaného spektra pri spektrálnej interferencii polí vysokých harmonických frekvencií v závislosti na fázovom posune





Obr. 3.20: Detail interferenčných maxím v spektrálnom píku piatej harmonickej frekvencie pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 6,72\%$ . Prerušované čiary ilustrujú posun týchto maxím so zmenou relatívnej fázy medzi generujúcimi poľami. Spektrálna hustota výkonu je v logaritmickvej škále.

medzi poľami základnej a tretej harmonickej frekvencie je uvedený na obrázku 3.19. V spektrálnych píkoch jednotlivých harmonických rádov zjavne, na rozdiel od spektier na obrázkoch 3.8 a 3.9, pozorujeme interferenčné maximá a minimá, ktoré sa s rastúcim fázovým posunom medzi generujúcimi poľami posúvajú k nižším energiám fotónu, ako je ilustrované na obrázku 3.20.

Predpokladáme gaussovskú obálku modulovaného  $E_{mod}^{HHG}(t)$  a nemodulovaného  $E_{nemod}^{HHG}(t)$  poľa vysokých harmonických frekvencií v tvare:

$$E_{mod}^{HHG}(t) = A_{mod} e^{-\frac{t^2}{2\Delta t^2}} e^{i\omega_0 t} e^{i\Delta\phi_{HHG}}, \quad (3.24)$$

$$E_{nemod}^{HHG}(t - \tau) = A_{nemod} e^{-\frac{(t-\tau)^2}{2\Delta t^2}} e^{i\omega_0(t-\tau)}, \quad (3.25)$$

kde sme označili  $A_{mod}$ , resp.  $A_{nemod}$  amplitúdu modulovaného, resp. nemodulovaného poľa,  $\Delta t$  ako pološírku gaussovskej obálky pulzov vysokých harmonických a  $\omega_0$  ako strednú uhlovú frekvenciu príslušnej vysokej harmonickej frekvencie. Fourierova transformácia predošlých vzťahov má tak tvar:

$$E_{mod}^{HHG}(\omega) = \sqrt{2\pi} A_{mod} \Delta t e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2\left(\frac{1}{\Delta t}\right)^2}} e^{i\Delta\phi_{HHG}}, \quad (3.26)$$

$$E_{nemod}^{HHG}(\omega) = \sqrt{2\pi} A_{nemod} \Delta t e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2\left(\frac{1}{\Delta t}\right)^2}} e^{-i\omega\tau}. \quad (3.27)$$

Výsledné spektrum je následne podľa vzťahu (3.23) vyjadrené výrazom:

$$S_{tot}^{HHG}(\omega) = 2\pi\Delta t^2 \left( A_{mod}^2 + A_{nmod}^2 \right) e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2\left(\frac{1}{\sqrt{2}\Delta t}\right)^2}} + \quad (3.28)$$

$$+ 4\pi\Delta t^2 A_{mod}A_{nmod} e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2\left(\frac{1}{\sqrt{2}\Delta t}\right)^2}} \cos(\Delta\phi_{HHG} + \omega\tau)$$

V jednotlivých závislostiach detekovaných spektier na fázovom posune sme zvolili spektrálne intervaly zahŕňajúce daný spektrálny pík harmonickej frekvencie rovnako, ako v predošlom meraní, pričom tentoraz sme ale spektrálnu hustotu výkonu nestredovali. Následne sme všetky namerané spektrá v rámci tohto intervalu pre rôzne fázové posuny fitovali analogicky k funkcii (3.28) podľa vzťahu:

$$P_\lambda = A_1 e^{-\frac{(\varepsilon-\varepsilon_g)^2}{2v_g^2}} + A_2 e^{-\frac{(\varepsilon-\varepsilon_g)^2}{2v_g^2}} \sin\left[\frac{2\pi}{w_{int}}(\varepsilon - \varepsilon_{int})\right] + A_3, \quad (3.29)$$

ktorý odpovedá sínusovej modulácii s gaussovskou obálkou, teda periodickej modulácii pôvodne gaussovského spektrálneho píku vplyvom spektrálnej interferencie. Sínusová modulácia zo vzťahu (3.29) je preto voči kosínusovej zo vzťahov (3.23) a (3.28) posunutá o  $\frac{\pi}{2}$ . Fitovacie parametre pri tomto posune vykazovali vyššiu presnosť, a keďže cieľom experimentu je určiť relatívnu a nie absolútnu fázu, tak tento posun vo výsledku nehraje úlohu. Následne výraz:

$$P_\lambda = (A_1 \pm A_2) e^{-\frac{(\varepsilon-\varepsilon_g)^2}{2v_g^2}} + A_3, \quad (3.30)$$

predstavuje gaussovskú „nadobálku“ (znamienko +) odpovedajúcu tvaru spektrálneho píku bez interferencie, resp. „podobálku“ (znamienko -), so stredom v  $\varepsilon_g$  a šírkou  $v_g$ . Parametre  $A_1$  a  $A_2$  predstavujú váhy príspevkov neinterferenčnej a interferenčnej časti. Pri porovnaní so vzťahom (3.28) následne platia vzťahy:

$$A_1 = 2\pi\Delta t^2 \left( A_{mod}^2 + A_{nmod}^2 \right), \quad (3.31)$$

$$A_2 = 4\pi\Delta t^2 A_{mod}A_{nmod}, \quad (3.32)$$

pričom predpokladáme  $A_1 \geq A_2$ . Parameter  $A_3$  odpovedá konštantnému pozadiu detekovaného spektra. Nakoniec parameter  $w_{int}$  odpovedá perióde interferenčnej modulácie v spektre a  $\varepsilon_{int}$  odpovedá fázovému posunu tejto modulácie, teda posunu interferenčných maxím a miním. Opätovným porovnaním so vzťahom (3.28) platia pre argumenty goniometrických funkcií vzťahy:

$$\Delta\phi_{HHG} + \frac{\pi}{2} = \frac{2\pi}{w_{int}}\varepsilon_{int}, \quad (3.33)$$

$$\tau = \frac{2\pi\hbar}{w_{int}}. \quad (3.34)$$

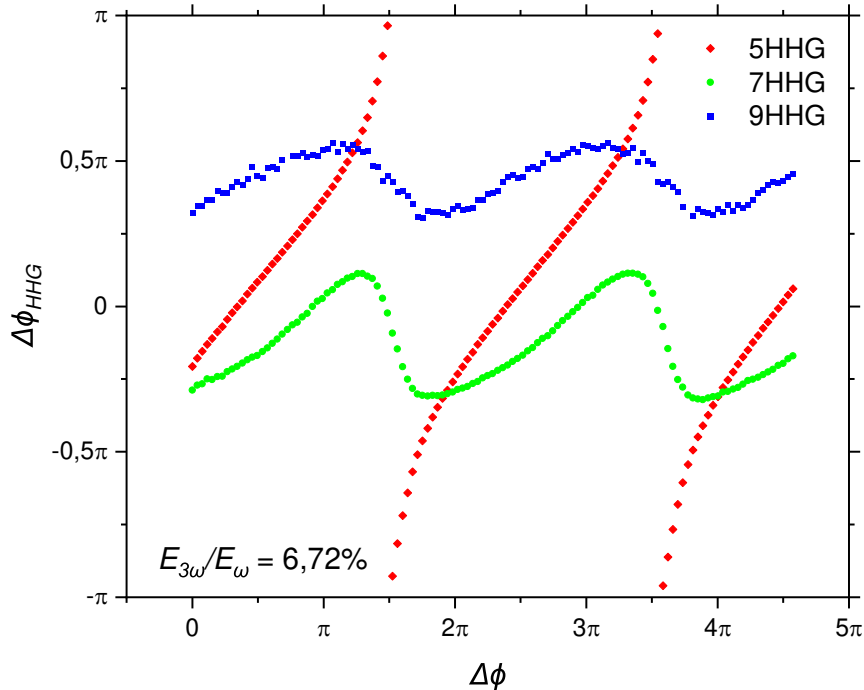
Viditeľnosť interferenčnej modulácie preto vo výsledku odpovedá vzťahu:

$$V(\varepsilon) = \frac{A_2}{A_1 + A_3 e^{\frac{(\varepsilon-\varepsilon_g)^2}{2v_g^2}}}, \quad (3.35)$$

kedy najväčšia viditeľnosť zjavne odpovedá stredu gaussovskej obálky, teda energii danej harmonickej frekvencie  $\varepsilon = \varepsilon_g$ .

Vzhľadom na veľký počet fázových posunov generujúcich polí, pre ktoré sme merania previedli, a teda aj veľký počet detekovaných spektier, sme jednotlivé fity uskutočnili pomocou skriptu v programe Matlab. Najprv sme previedli fitovanie spektier podľa funkcie (3.29) pre jedenásť rôznych fázových posunov v okolí maxima modulácie intenzity danej harmonickej frekvencie, kde sú fity najpresnejšie. Z fitov sme následne obdržali pre jednotlivé harmonické rády hodnoty periódy interferenčnej modulácie  $w_{int}$ , z ktorých sme spočítali aritmetický priemer a pri ďalších fitoch sme túto hodnotu zafixovali, podobne ako sme postupovali s periódou modulácie v predošlom meraní. Výsledná perióda interferenčnej modulácie spektra je pre piaty harmonický rád  $w_{int}^{5HHG} = (24,936 \pm 0,047)$  meV, pre siedmy harmonický rád  $w_{int}^{7HHG} = (24,129 \pm 0,037)$  meV a pre deviaty harmonický rád  $w_{int}^{9HHG} = (23,114 \pm 0,042)$  meV.

Odchýlky v periódach interferenčnej modulácie medzi jednotlivými harmonickými rádmi sú pravdepodobne dôsledkom nepresnosti kalibrácie spektrometra, kedy sme predpokladali lineárnu kalibráciu, pričom skutočný prepočet z pixelov detektora na energiu fotónu mohol byť mierne odlišný. Kalibráciu sme taktiež previedli len pre širokú vstupnú štrbinu spektrometra, ktorú sme používali pri meraniach bez zaradenej polvlnnej doštičky popísaných v kapitole 3.3. Pri meraniach so zaradenou vlnovou doštičkou, kedy sme pozorovali spektrálnu interferen-



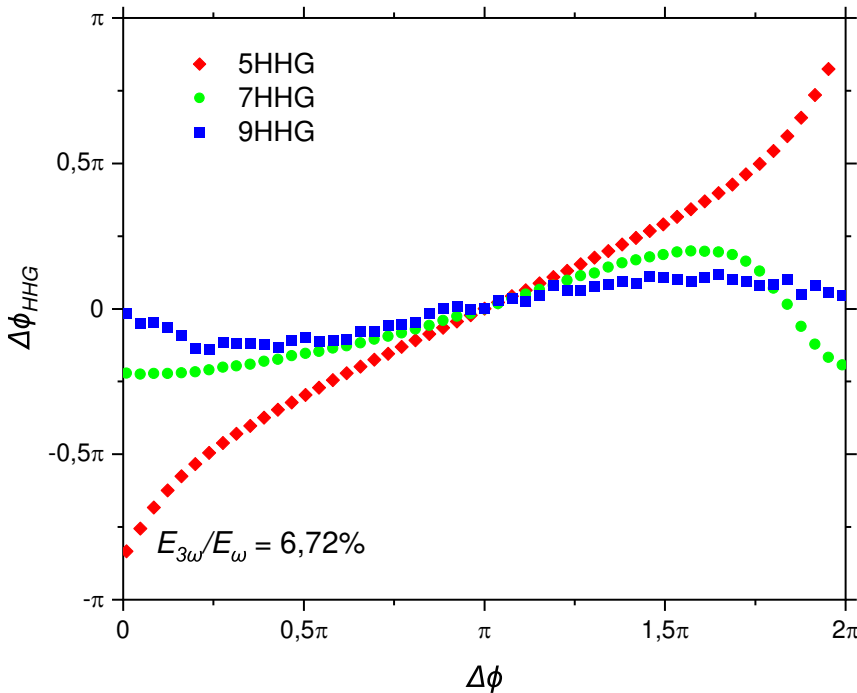
Obr. 3.21: Závislosť fázového posunu medzi modulovaným a nemodulovaným polom vysokých harmonických frekvencií 5. (červená), 7. (zelená) a 9. (modrá) rádu na fázovom posune medzi generujúcimi polami pre ich pomer amplitúd  $E_{3\omega}/E_\omega = 6,72\%$ . Chybové úsečky nie sú kvôli prehľadnosti uvedené.

ciu, sme však kvôli lepšiemu rozlíšeniu používali užšiu vstupnú štrbinu, čo mohlo viesť k odchýlkam od kalibrácie a mať rovnako za následok spôsobenie určitej odchýlky.

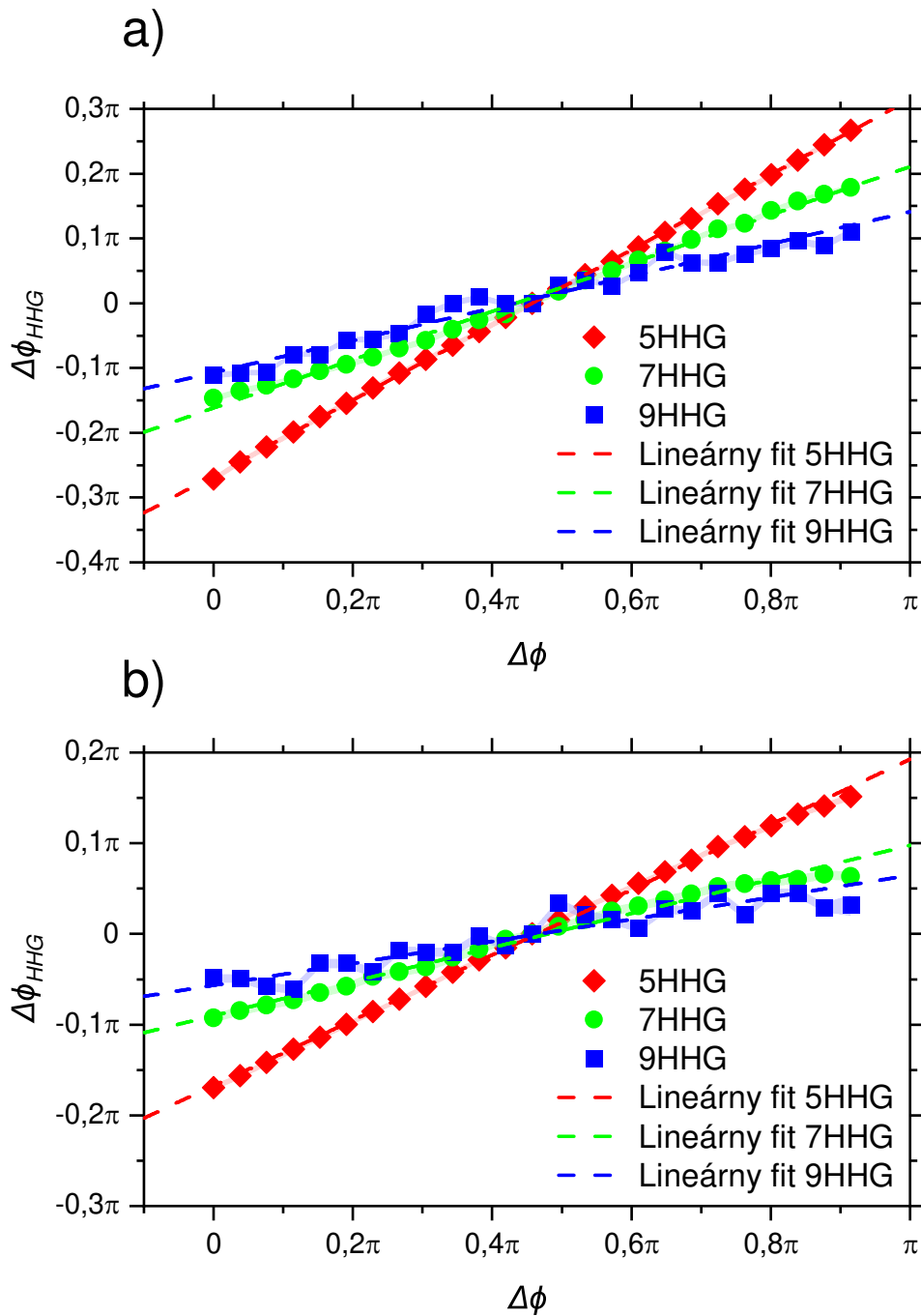
Podľa vzťahu (3.34) môžeme následne spočítať celkový časový posun medzi modulovaným a nemodulovaným pulzom vysokých harmonických frekvencií. Pre priemernú periódu interferenčnej modulácie  $\bar{w}_{int} = (24,060 \pm 0,024)$  meV sme dostali hodnotu  $\tau = (171,89 \pm 0,17)$  fs.

Získané relatívne posuny interferenčnej modulácie  $\varepsilon_{int}$  sme následne prepočítali analogicky vzťahu (3.9) z elektrónvoltov do radiánov, čím sme zároveň obdržali relatívny fázový posun  $\Delta\phi_{HHG}$  medzi modulovaným a nemodulovaným poľom vysokých harmonických frekvencií. Závislosť relatívneho fázového posunu poľí vysokých harmonických frekvencií na relatívnom fázovom posune medzi poľom základnej a tretej harmonickej frekvencie pre prípad  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 6,72\%$  (spektrá uvedené na obrázku 3.19) je znázornená na obrázku 3.21.

Závislosť je zjavne periodická, pričom interval hodnôt relatívnych fázových posunov vysokých harmonických frekvencií sa zužuje s rastúcim harmonickým rádom. Pre piaty harmonický rád odpovedá šírka intervalu fázových posunov vysokých harmonických frekvencií približne jednej celej perióde. Siedmy a deviaty harmonický rád majú na rozdiel od piateho rádu podobný priebeh závislosti a výrazne užšiu šírku intervalu (pre siedmy rád približne  $\frac{2\pi}{5}$  a pre deviaty rád približne



Obr. 3.22: Detail jednej periódy závislosti fázového posunu vysokých harmonických frekvencií 5. (červená), 7. (zelená) a 9. (modrá) rádu na fázovom posune medzi generujúcimi poľami pre prípad  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 6,72\%$ . Osi sú pre jednotlivé harmonické rády posunuté z dôvodu lepšieho porovnania závislostí. Chybové úsečky nie sú kvôli prehľadnosti uvedené.



Obr. 3.23: Fit lineárnej oblasti závislosti relatívneho fázového posunu medzi modulovaným a nemodulovaným poľom vysokých harmonických frekvencií na fázovom posune generujúcich poľí pre prípad a)  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 6,72\%$  a b)  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 2,91\%$ . Osi sú pre jednotlivé harmonické rády posunuté z dôvodu lepšieho porovnania závislostí. Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblasťami medzi experimentálnymi bodmi.

$\frac{\pi}{4}$ ). Uvedené môže byť spôsobené rozdielnym typom generácie žiarenia piatej harmonickej frekvencie. Vplyvom toho, že energia fotónu piatej harmonickej frekvencie  $\varepsilon_{g,direct}^{Si} = 3,1$  eV je menšia ako šírka priameho zakázaného pásu vzorky kremíka  $\varepsilon_{5HHG} = 3,2$  eV, generuje sa toto žiarenie primárne vnútropásovou generáciou. Na rozdiel od toho fotóny siedmej ( $\varepsilon_{7HHG} = 4,34$  eV) a deviatej ( $\varepsilon_{9HHG} = 5,58$  eV) harmonickej frekvencie majú energiu vyššiu ako je šírka priameho zakázaného pásu kremíka, generujú sa preto hlavne v dôsledku medzipásovej generácie.

Na obrázku 3.22 je uvedená jedna perióda tejto závislosti. Pre lepší prehľad sú však osi pre jednotlivé harmonické rády posunuté takým spôsobom, aby experimentálny bod odpovedajúci fázovému posunu, pri ktorom pozorujeme maximum signálu daného rádu harmonickej frekvencie (pre  $\varepsilon = \varepsilon_g$ ), odpovedal fázovému posunu polí vysokých harmonickej frekvencií  $\Delta\phi_{HHG} = 0$  a fázovému posunu generujúcich polí  $\Delta\phi = \pi$ . Vzhľadom na to, že cieľom experimentu sú iba relatívne fázové posuny, posun osí nehraje úlohu. Závislosť je pre piaty, siedmy aj deviaty harmonický rád v okolí tohto experimentálneho bodu približne lineárna. Smerom ku okrajom periódy, teda k bodom, kde je naopak signál daného rádu harmonickej frekvencie v závislosti na fázovom posune generujúcich polí minimálny, sa však závislosti zahýbajú a pozorujeme nelineárne správanie.

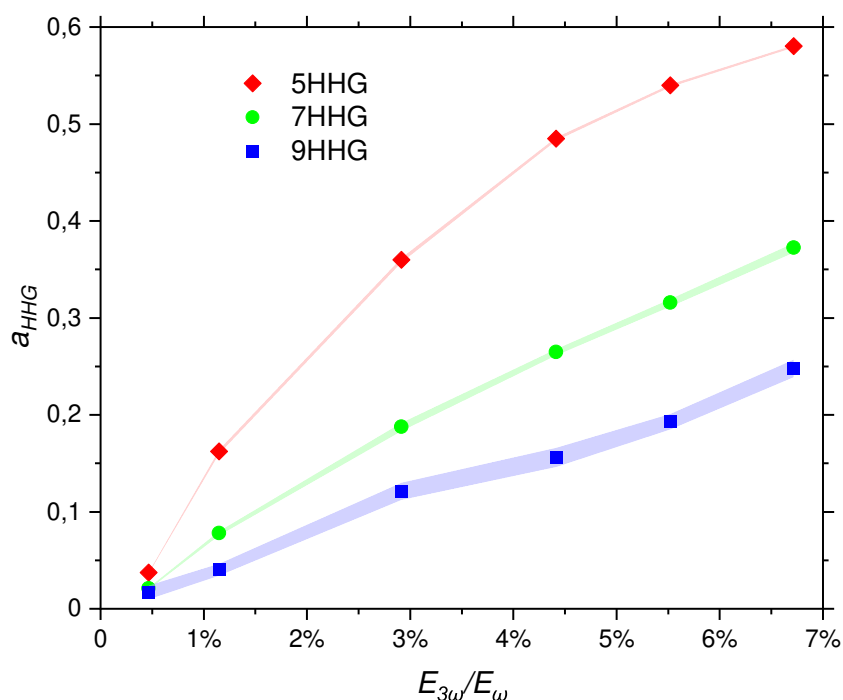
Lineárnu závislosť v okolí experimentálneho bodu, pre ktorého fázový posun nadobúda daný rád harmonickej frekvencie najvyšší signál, sme následne pre jednotlivé pomery amplitúd generujúcich polí fitovali lineárnou funkciou v tvare:

$$\Delta\phi_{HHG} = a_{HHG}\Delta\phi + b, \quad (3.36)$$

kde sme označili  $a_{HHG}$  ako smernicu danej lineárnej závislosti a  $b$  ako absolútny člen, ktorý ale vo výsledku nehraje úlohu. Príklady takýchto fitov sú uvedené na obrázkoch 3.23 a) pre pomer amplitúd generujúcich polí  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 6,72\%$  a 3.23 b) pre pomer amplitúd  $E_{3\omega}/E_{\omega} = 2,91\%$ . Jednotlivé hodnoty smerníc pre dané harmonické rády a pomery amplitúd generujúcich polí sú uvedené v tabuľke 3.7. Vidíme, že jednotlivé smernice lineárnych funkcií sú kladné, čo odpovedá situácii, kedy je modulované pole vysokých harmonickej frekvencií omeškané v čase oproti nemodulovanému a nárast relatívnej fázy  $\Delta\phi$  medzi generujúcimi polami podľa vzťahu (1.24) vedie k nárastu fázového rozdielu polí vysokých harmonickej frekvencií  $\Delta\phi_{HHG}$  podľa vzťahov (3.24) a (3.25). Táto situácia však práve odpovedá nášmu usporiadaniu. Taktiež, hodnota smernice lineárnych funkcií klesá s rastúcim rádom, čo znamená menšiu citlivosť relatívnej fázy medzi

$E_{3\omega}/E_{\omega}$ [%]	$a_{5HHG}$ [ $10^{-2}$ ]	$a_{7HHG}$ [ $10^{-2}$ ]	$a_{9HHG}$ [ $10^{-2}$ ]
6,72	$58,03 \pm 0,13$	$37,25 \pm 0,50$	$24,82 \pm 0,93$
5,52	$53,98 \pm 0,17$	$31,57 \pm 0,42$	$19,32 \pm 0,82$
4,41	$48,48 \pm 0,19$	$26,48 \pm 0,34$	$15,6 \pm 1,0$
2,91	$35,98 \pm 0,25$	$18,78 \pm 0,44$	$12,13 \pm 0,90$
1,15	$16,25 \pm 0,24$	$7,81 \pm 0,25$	$4,06 \pm 0,63$
0,47	$3,74 \pm 0,11$	$2,12 \pm 0,12$	$1,70 \pm 0,73$

Tab. 3.7: Hodnoty smerníc lineárnych funkcií použitých pri fitovaní závislosti relatívneho fázového posunu polí vysokých harmonickej frekvencií na relatívnej fáze generujúcich polí pre jednotlivé harmonické rády a rôzne pomery amplitúd generujúcich polí.



Obr. 3.24: Smernice lineárnych fitov závislosti fázového posunu polí vysokých harmonických frekvencií na fázovom posune generujúcich polí pre rôzne pomery amplitúd generujúcich polí. Chybové úsečky sú v grafe vyznačené tieňovanými oblasťami medzi experimentálnymi bodmi.

polami vysokých harmonických frekvencií na fázový posun medzi generujúcimi polami pre rastúci harmonický rád.

Rovnaký postup sme previedli pre všetkých šesť použitých pomerov amplitúd generujúcich polí uvedených na obrázku 3.18. Výsledné smernice lineárnych fitov závislosti fázového posunu polí vysokých harmonických frekvencií na fázovom posune generujúcich polí pre rôzne pomery amplitúd generujúcich polí sú uvedené v tabuľke 3.7 a znázornené na obrázku 3.24. Hodnota smerníc sa s rastúcim pomerom amplitúd zvyšuje, čím sa zvyšuje aj citlivosť relatívnej fázy polí vysokých harmonických frekvencií na zmenu relatívnej fázy medzi generujúcimi polami. Uvedené je spôsobené zvýšením efektivity koherentnej kontroly s rastúcou amplitúdou poľa tretej harmonickej frekvencie. Najrýchlejšiu zmenu pozorujeme pre smernicu piateho harmonického rádu, pričom táto sa s rastúcim pomerom amplitúd spomaľuje. Naopak, nárast smernice siedmeho a deviateho harmonického rádu je približne lineárny.





## 4. Zhrnutie a diskusia výsledkov

V nasledujúcej kapitole prevedieme zhrnutie a diskusiu jednotlivých výsledkov našich meraní, v ktorých sme sa venovali štúdiu generácie vysokých harmonických frekvencií zo vzorky kryštalického kremíka a ich modulácii pomocou javu kvantovej koherentnej kontroly. Väčšinu javov sme diskutovali už v predošlej kapitole, preto ďalej uvedieme iba najdôležitejšie závery jednotlivých experimentov, ich pôvod a prípadné dôsledky, ako aj možné príčiny nepresností.

Pred začatím jednotlivých experimentov sme previedli justovanie laserového setupu, z ktorého sme generovali horizontálne polarizované pole na fundamentálnej frekvencii. Justovaním sme sa snažili dosiahnuť čo najideálnejší časový a radiálny profil pulzov dopadajúcich na vzorku kremíka, vďaka čomu sme boli schopní pozorovať dostatočne efektívnu generáciu piatej, siedmej a deviatej harmonickej frekvencie. Následne sme ladili sklon BBO kryštálu, v ktorom sme generovali vertikálne polarizované pole tretej harmonickej frekvencie voči polarizácii fundamentálneho zväzku tak, aby bola dobre splnená podmienka sfázovania pre odpovedajúcu generáciu, a tým sme na spektrometri pozorovali ideálne čo najužší a zároveň najintenzívnejší spektrálny pík tretej harmonickej frekvencie. Snažili sme sa týmto spôsobom dosiahnuť čo najvyššieho pomeru amplitúd polí tretej harmonickej a základnej frekvencie, a teda efektívnej koherentnej kontroly generovaného poľa vysokých harmonických frekvencií. Časový profil pulzu tretej harmonickej frekvencie mal však štruktúru dvojpulzu, kedy hlavnému a vedľajšiemu maximu odpovedal rozdielny výkon a ich dĺžka sa líšila od dĺžky pulzu na základnej frekvencii. Tento fakt mohol do značnej miery ovplyvniť správny časový prekryv pulzov na základnej a tretej harmonickej frekvencii, ako aj priebeh výsledného superponovaného poľa generujúceho zo vzorky kremíka pole vysokých harmonických frekvencií.

Následne sme do miesta vzorky umiestnili kremíkovú CMOS kameru, ktorou sme premerali zvlášť radiálny profil pulzov na základnej a tretej harmonickej frekvencii. Radiálny profil sme premerali v horizontálnom aj vertikálnom smere. Výsledné hodnoty sa v jednotlivých smeroch príliš nelíšili, v rámci chyby však neboli zhodné. Radiálny profil oboch zväzkov sme aj napriek tomu ďalej považovali za ideálne gaussovský, čo mohlo do určitej miery spôsobiť odchýlku experimentálnych výsledkov od použitých teoretických modelov. Pre pulz na základnej frekvencii sme previedli taktiež polarizačne rozlíšené meranie, kedy sme overili, že radiálne profily pulzov na základnej frekvencii pre horizontálnu a vertikálnu polarizáciu boli približne zhodné. Ako už bolo vysvetlené, plocha vzorky, na ktorej dochádzalo k efektívnej generácii vysokých harmonických frekvencií, odpovedá tretine stopy fundamentálneho zväzku, čo približne odpovedalo stope zväzku na tretej harmonickej frekvencii. Priestorový prekryv stôp na povrchu vzorky kremíka bol preto dobre optimalizovaný na efektívnu koherentnú kontrolu poľa vysokých harmonických frekvencií.

Pri meraniach sme efektivitu kvantovej koherentnej kontroly ladili zmenou pomeru amplitúd generujúcich polí. To sme dosiahli posunom generujúceho BBO kryštálu okolo ohniska fundamentálneho zväzku pozdĺž osi zväzku, čím sme ladili výsledný stredný výkon generovaných pulzov tretej harmonickej frekvencie. Pri posune BBO kryštálu však dochádzalo tiež k fázovému posunu poľa tretej harmo-

nickej frekvencie voči poľu na základnej frekvencii vplyvom Guoyovho javu. Bolo preto nutné určiť hodnoty tohto fázového rozdielu, čo sme previedli pomocou interferencie poľa tretej harmonickej frekvencie s fixnou počiatočnou fázou a poľa tretej harmonickej frekvencie, ktorého fázou sme ladili posunom BBO kryštálu. Všetky prvky v tomto usporiadaní boli umiestnené v jednom zväzku a oba pulzy sa šírieli kolinearne, čo viedlo na vysoké časové rozlíšenie pri meraní fázových rozdielov. Možným nedostatkom pri tomto meraní bol dvojpulzový charakter poľa tretej harmonickej frekvencie, ktorý sám o sebe mohol spôsobovať spektrálnu interferenciu a ovplyvňovať tak výsledné interferenčné spektrum, z ktorého sme fázové posuny pre jednotlivé polohy BBO kryštálu získavali. Túto korekciu sme následne kalibrovali na stredný výkon poľa tretej harmonickej frekvencie, ktorý sme obdržali integráciou jeho spektra detekovaného na spektrometri. Kalibráciu stredného výkonu na integrál spektra sme pre merania bez zaradenia polvlnnej doštičky previedli s integračnou dobou interferometra 10 ms a so zaradenou polvlnnou doštičkou s integračnou dobou 60 ms. Pri následnom ladení stredného výkonu tretej harmonickej frekvencie posunom BBO kryštálu sme však detekciu prevádzali pre rôzne integračné doby v závislosti na intenzite poľa tretej harmonickej frekvencie. Týmto mohlo dôjsť k odchýlkam od použitej kalibrácie integrálu spektra, čo by viedlo na odlišný detekovaný stredný výkon oproti jeho skutočnej hodnote a vo výsledku k odchýlke od skutočnej hodnoty fázovej korekcie vplyvom posunu BBO kryštálu. Medzi meraním korekcie a ďalšími experimentmi taktiež došlo k ďalšiemu justovaniu laserového setupu. Na nastavení setupu silne závisí časový priebeh poľa základnej frekvencie, a teda aj poľa na tretej harmonickej frekvencii. Vypočítané hodnoty absolútneho fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie vplyvom posunu BBO kryštálu získané interpoláciou výsledkov predošlého merania sa preto mohli v ďalších experimentoch líšiť od skutočných hodnôt.

Pomocou superpozície poľa na základnej a tretej harmonickej frekvencii sme následne generovali zo vzorky kryštalického kremíka pole vysokých harmonických frekvencií. Spektrálnu intenzitu jednotlivých spektrálnych pík pozorovaných harmonických frekvencií sme potom modulovali pomocou kvantovej koherentnej kontroly za zmeny relatívneho fázového posunu medzi generujúcimi poľami. Modulácia bola dobre pozorovateľná aj pre veľmi slabé pole tretej harmonickej frekvencie, kedy pomer jeho amplitúdy voči amplitúde fundamentálneho zväzku predstavoval menej ako 1 %, čo predstavuje len 0,01 % pomeru ich intenzít. Aj pre takto nízky pomer amplitúd bola teda koherentná kontrola generovaného poľa stále dostatočne efektívna. V detekovanom spektre vysokých harmonických frekvencií bol spektrálny pík piateho harmonického rádu výrazne intenzívnejší ako píky zvyšných pozorovaných harmonických rádov. To mohlo byť spôsobené hlavne príspevkom od poruchovej generácie tretieho rádu vďaka interakcii jedného fotónu tretej harmonickej a dvoch fotónov základnej frekvencie. Úlohu mohol hrať taktiež odlišný spôsob generácie piatej harmonickej frekvencie, kedy energia príslušného fotónu je menšia ako šírka priameho zakázaného pásu kryštalického kremíka, dominantná je preto vnútro pásová generácia z naexcitovaných elektrónov vo vodivostnom páse. Naopak, pre siedmy a deviaty harmonický rád prevláda rozfázovanie a príspevok vnútro pásovej generácie je nízky. Energia fotónov siedmej a deviatej harmonickej frekvencie je však väčšia ako je šírka priameho zakázaného pásu kremíka, prevláda preto medzipásová generácia.

Namerané spektrálne píky v závislosti na fázovom posune generujúcich polí sme následne stredovali cez energiu fotónu, čím sme dostali profil modulácie pre jednotlivé harmonické rády. Jednotlivé profily sme ďalej fitovali kosínusom, čím sme získali hodnoty relatívneho fázového posunu modulácie a viditeľnosti modulácie v závislosti na pomere amplitúd medzi generujúcimi poľami. V nameraných profiloch sme však pozorovali odchýlky od harmonickej závislosti, kedy v rámci jednej periódy modulácie od jedného minima závislosti k nasledujúcemu by malo maximum modulácie v ideálne harmonickom priebehu odpovedať stredu tejto periódy, my sme však pozorovali jeho posun. To vedie na odchýlky vo vypočítaných fázových posunoch modulácie, teda relatívneho fázového posunu medzi poľom na základnej a tretej harmonickej frekvencii, kedy pri danom pomere amplitúd polí nadobúda odpovedajúci harmonický rád maximálnej intenzity. Relatívny fázový posun sme taktiež korigovali na príspevok fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie od posunu BBO kryštálu. Pre obe amplitúdy fundamentálneho poľa, pre ktoré sme merania previedli, sme pozorovali prudkú zmenu relatívneho fázového posunu pre nízke pomery amplitúd generujúcich polí. Uvedené bolo predovšetkým dôsledkom nepresnosti merania korekcie, kedy pre nízky pomer amplitúd bolo jedno z použitých polí tretej harmonickej frekvencie výrazne slabšie ako druhé. Prudký pokles fázového posunu sa ale postupne spomaloval a od určitého pomeru amplitúd poľa tretej harmonickej a základnej frekvencie sme v priebehu závislosti pozorovali plató.

Z fitu sme taktiež získali priebeh závislosti viditeľnosti modulácie na pomere amplitúd generujúcich polí. Piaty harmonický rád dosahoval maximálnej viditeľnosti pre pomerne nízke pomery amplitúd generujúcich polí pre obe použité amplitúdy fundamentálneho poľa, pričom viditeľnosť pri ďalšom zvyšovaní pomeru klesala. Naopak, siedmy a deviaty harmonický rád dosahoval maximálnej viditeľnosti až pri vyšších pomeroch. To mohlo byť opäť dôsledkom rôzneho typu generácie piatej harmonickej frekvencie oproti siedmej a deviatej harmonickej frekvencii. Úlohu mohol tiež hrať poruchový príspevok k piatej harmonickej frekvencii. Viditeľnosti piateho harmonického rádu sme následne pre obe použité amplitúdy fundamentálneho poľa porovnali s teoretickým poruchovým modelom. Priebehy sa viditeľne líšili, čím sme potvrdili neporuchový charakter javu generácie vysokých harmonických frekvencií.

Experimentálne získané dáta sme následne porovnali s numerickými výpočtami metódou TDDFT. Teoreticky získané spektrá boli kvalitatívne podobné tým, ktoré sme v priebehu experimentu namerali. Maximálne spektrálne intenzity jednotlivých harmonických rádov boli však na rozdiel od experimentu porovnateľné a spektrálne píky boli výrazne širšie. Taktiež hodnoty viditeľnosti a relatívneho fázového posunu modulácie medzi jednotlivými harmonickými rádmami sa líšili oproti nameraným dátam.

Zaradením polvlnnej doštičky do usporiadania sme získali mimo pôvodnej dvojice časovo prekrytých pulzov na základnej a tretej harmonickej frekvencii ešte ďalší, v čase posunutý pulz na základnej frekvencii. To viedlo ku generácii nemodulovaného a v čase omeškaného modulovaného pulzu vysokých harmonických frekvencií a k spektrálnej interferencii medzi nimi. Z polôh interferenčných maxím a miním a ich posunu so zmenou relatívnej fázy medzi generujúcimi poľami sme následne určovali relatívny fázový posun medzi modulovaným a nemodulovaným poľom vysokých harmonických frekvencií. Z periódy interferenčnej modulácie sme

tiež určili časový posun medzi modulovaným a nemodulovaným pulzom. Výsledná závislosť relatívneho fázového posunu polí vysokých harmonických frekvencií na relatívnej fáze medzi generujúcimi polami mala následne silne nelineárny charakter. V okolí hodnoty fázového posunu generujúcich polí, pri ktorej sme pozorovali maximum modulácie od koherentnej kontroly, bola však závislosť jednotlivých harmonických rádov približne lineárna. Závislosť v tejto oblasti sme pre jednotlivé harmonické rády následne fitovali lineárnymi funkciami. Najrýchlejší nárast smernice použitej lineárnej funkcie s rastúcim pomerom amplitúd generujúcich polí sme pozorovali pre piaty harmonický rád, pričom rast sa postupne spomaľoval. Naopak, smernica siedmeho a deviateho harmonického rádu rástla približne lineárne. To mohlo byť opäť dôsledkom vnútro pásovej generácie piatej harmonickej frekvencie oproti medzipásovej generácii siedmej a deviatej harmonickej frekvencie.

# Záver

Na začiatku práce sme si uviedli teoretické základy nelineárnej optiky a jej dva režimy. V rámci poruchového režimu sme popísali teóriu generácie tretej harmonickej frekvencie. Predstavili sme tiež spôsob jej efektívnej generácie za pomoci splnenia podmienky sfázovania v anizotropnom kryštáli. Následne sme predstavili teoretický model v rámci režimu silného poľa nelineárnej optiky vedúci na generáciu vysokých harmonických frekvencií. Tento jav sme popísali pre jednoduchší prípad generácie zo súboru nezávislých atómov, ako aj pre zložitejší prípad generácie z kryštalickej látky, ktorému sme sa venovali v našich meraniach. Uviedli sme taktiež jav kvantovej koherentnej kontroly, ktorý sme v experimentoch používali k modulácii poľa vysokých harmonických frekvencií.

Detailne sme si predstavili experimentálne usporiadanie použité pri meraniach. Uviedli sme jednotlivé použité optické prvky, ako aj ich funkciu v meraniach a ich základné parametre.

V meraniach sme používali superpozíciu poľa na základnej a tretej harmonickej frekvencii. Pre oba zväzky sme charakterizovali ich radiálny profil a pole tretej harmonickej frekvencie sme optimalizovali pre naše experimenty. Predstavili sme si tiež metódu korekcie fázového posunu poľa tretej harmonickej frekvencie vplyvom posunu generujúceho kryštálu pozdĺž osi generujúceho zväzku.

Následne sme sa venovali popisu generácie vysokých harmonických frekvencií zo vzorky kryštalického kremíka pomocou superpozície generujúcich polí. Výsledné pole vysokých harmonických frekvencií sme modulovali pomocou koherentnej kontroly relatívnym fázovým posunom medzi poľom základnej a tretej harmonickej frekvencie. Pomocou fitovania profilu tejto modulácie teoretickým modelom sme získali závislosti fázového posunu modulácie a viditeľnosti modulácie na pomere amplitúd generujúcich polí. Výsledky sme tiež porovnali s numericky získanými hodnotami.

Nakoniec sme zo vzorky kremíka generovali dvojicu v čase posunutých pulzov vysokých harmonických frekvencií, pričom prvý pulz bol nedomulovaný a druhý modulovaný opäť pomocou koherentnej kontroly relatívnym fázovým posunom medzi generujúcimi poľami. To viedlo na spektrálnu interferenciu medzi dvojicou pulzov, čím sme následne z posunu interferenčných maxím v spektre s meniacou sa relatívnou fázou medzi generujúcimi poľami boli schopní určiť relatívny fázový posun medzi nedomulovaným a modulovaným poľom vysokých harmonických frekvencií. V oblasti maxima modulácie bola závislosť relatívneho fázového posunu polí vysokých harmonických frekvencií na fázovom posune medzi generujúcimi poľami približne lineárna. Závislosť sme v tejto oblasti preto fitovali lineárnou funkciou, čím sme získali smernicu jednotlivých závislostí pre rôzne pomery amplitúd generujúcich polí.

Kvantová koherentná kontrola generácie vysokých harmonických frekvencií pomocou superpozície poľa na základnej a tretej harmonickej frekvencii, ktorá bola demonštrovaná v tejto práci, bude v budúcnosti využitá k skúmaniu súvislosti medzi vlastnosťami generovaných harmonických spektier a pásovou štruktúrou študovaného materiálu. Zaujímavá sa javí predovšetkým možnosť presného merania relatívnych fázových posunov generovaných polí pomocou prístupu spektrálnej interferometrie, ktorá predstavuje novú metódu umožňujúcu meranie ča-

sového posunu emisie vysokoenergetických fotónov s rozlíšením len niekoľko attosekúnd. Táto metóda môže v budúcnosti nájsť uplatnenie napríklad pri štúdiu ultrarýchleho rozptylu elektrónov urýchlených v materiáloch na vysoké energie, prípadne kolektívnych javov, ako sú tienenie Coulombickej interakcie, alebo vznik elektrón-dierovej kvapaliny.

# Zoznam použitej literatúry

- [1] B. E. A. Saleh, M. C. Teich. *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons, Inc., USA, 1991.
- [2] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, San Diego, USA, 2008.
- [3] P. Malý, F. Trojánek. *Laserová fyzika a nelineární optika*. MatfyzPress, Praha, 2022.
- [4] E. Hecht. *Optics*. Pearson Education Limited, Harlow, Anglicko, 2017.
- [5] P. Malý. *Optika*. Karolinum, Praha, 2008.
- [6] G. New. *Introduction to Nonlinear Optics*. Cambridge University Press, New York, USA, 2011.
- [7] R. L. Sutherland. *Handbook of Nonlinear Optics*. Marcel Dekker Inc., New York, USA, 2003.
- [8] M. Born, E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, Oxford, Anglicko, 1970.
- [9] P. Qiu, A. Penzkofer. Picosecond Third-Harmonic Light Generation in  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. *Appl. Phys. B*, 45:225–236, 1988.
- [10] A. L. Cavalieri, et al. Intense 1.5-cycle near infrared laser waveforms and their use for the generation of ultra-broadband soft-x-ray harmonic continua. *New J. Phys.*, 9(242):1–12, 2007.
- [11] J. J. Carrera, S. Chu. Extension of high-order harmonic generation cutoff via coherent control of intense few-cycle chirped laser pulses. *Phys. Rev. A*, 75(033807), 2007.
- [12] F. Krausz, M. Ivanov. Attosecond physics. *Rev. Mod. Phys.*, 81:163–234, 2009.
- [13] P. B. Corkum. Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13):1994–1997, 1993.
- [14] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, K. C. Kulander. Above Threshold Ionization Beyond the High Harmonic Cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 70(11):1599–1602, 1993.
- [15] P. B. Corkum, F. Krausz. Attosecond science. *Nat. Phys.*, 3:381–387, 2007.
- [16] K. Midorikawa. High-Order Harmonic Generation and Attosecond Science. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 50(9R), 2011.
- [17] A. McPherson, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am B*, 4(4):595–601, 1987.

- [18] Z. Chang, et al. Generation of Coherent Soft X Rays at 2.7 nm Using High Harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 79(16):2967–2970, 1997.
- [19] T. Popmintchev, et al. The attosecond nonlinear optics of bright coherent X-ray generation. *Nature Photonics*, 4:822–832, 2010.
- [20] S. Ghimire, D. A. Reis. High-harmonic generation from solids. *Nat. Phys.*, 15:10–16, 2019.
- [21] Y. S. You, D. A. Reis, S. Ghimire. Anisotropic high-harmonic generation in bulk crystals. *Nature Phys.*, 13:345–349, 2017.
- [22] J. Lu, et al. Interferometry of dipole phase in high harmonics from solids. *Nature Photonics*, 13:96–100, 2019.
- [23] M. Wu, et al. High-harmonic generation from Bloch electrons in solids. *Phys. Rev. A*, 91(043839), 2015.
- [24] C. R. McDonald, et al. Theory of high-harmonic generation in solids. *J. Phys.: Conf. Ser.*, 594(012021), 2015.
- [25] A. Haché, J. E. Sipe, H. M. van Driel. Quantum Interference Control of Electrical Currents in GaAs. *IEEE J. Quantum Electron.*, 34(7):1144–1154, 1998.
- [26] Ch. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley & Sons, Inc., USA, 2005.
- [27] G. Vampa, et al. All-Optical Reconstruction of Crystal Band Structure. *Phys. Rev. Lett.*, 115(193603), 2015.
- [28] G. Vampa, et al. Linking high harmonics from gases and solids. *Nature*, 522:462–464, 2015.
- [29] X. He, et al. Interference effects in two-color high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 82(033410), 2010.
- [30] M. Kozák, et al. Generation of few-cycle laser pulses at 2  $\mu\text{m}$  with passively stabilized carrier-envelope phase characterized by  $f$ - $3f$  interferometry. *Opt. Laser Technol.*, 144(107394), 2021.
- [31] G. Tamošauskas, et al. Transmittance and phase matching of BBO crystal in the 3–5  $\mu\text{m}$  range and its application for the characterization of mid-infrared laser pulses. *Opt. Mater. Express*, 8(6):1410–1418, 2018.
- [32] W. H. Strehlow, E. L. Cook. Compilation of Energy Band Gaps in Elemental and Binary Compound Semiconductors and Insulators. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 2(1):163–199, 1973.
- [33] I. H. Malitson. Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica. *J. Opt. Soc. Am.*, 55(10):1205–1209, 1965.



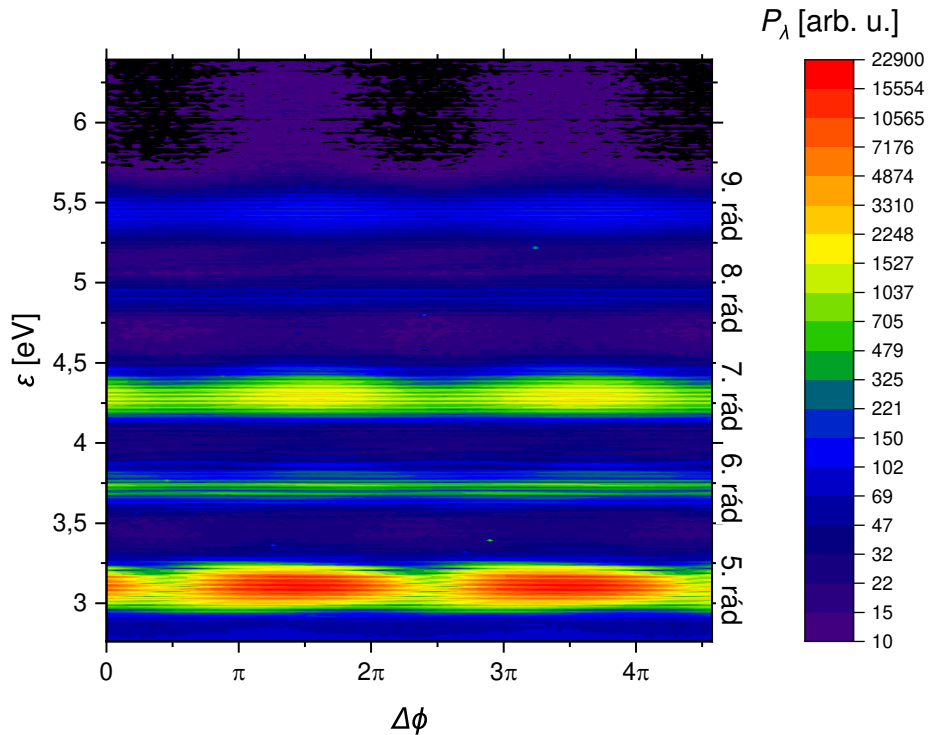
- [34] E. Shkondin, et al. Large-scale high aspect ratio Al-doped ZnO nanopillars arrays as anisotropic metamaterials. *Opt. Mater. Express*, 7(5):1606–1627, 2017.
- [35] D. E. Aspnes, A. A. Studna. Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV. *Phys. Rev. B*, 27(2):985–1009, 1983.
- [36] M. Schultze, et al. Attosecond band-gap dynamics in silicon. *Science*, 346(6215):1348–1352, 2014.
- [37] J. Englich. *Úvod do praktické fyziky I*. MatfyzPress, Praha, 2006.
- [38] P. Suthar, F. Trojánek, P. Malý, et al. Role of Van Hove singularities and effective mass anisotropy in polarization-resolved high harmonic spectroscopy of silicon. *Commun. Phys.*, 5(288), 2022.
- [39] P. Suthar, F. Trojánek, P. Malý, et al. Role of Van Hove singularities and effective mass anisotropy in polarization-resolved high harmonic spectroscopy of silicon [Supplementary Information]. *Commun. Phys.*, 5(288), 2022.
- [40] H. H. Li. Refractive index of alkaline earth halides and its wavelength and temperature derivatives. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 9:161–290, 1980.
- [41] M. A. L. Marques, C. A. Ullrich, F. Nogueira, et al. *Time-Dependent Density Functional Theory*. Lecture Notes in Physics. Springer Berlin, Heidelberg, 2006.
- [42] J. Kopáček. *Matematická analýza nejen pro fyziky IV*. MatfyzPress, Praha, 2010.



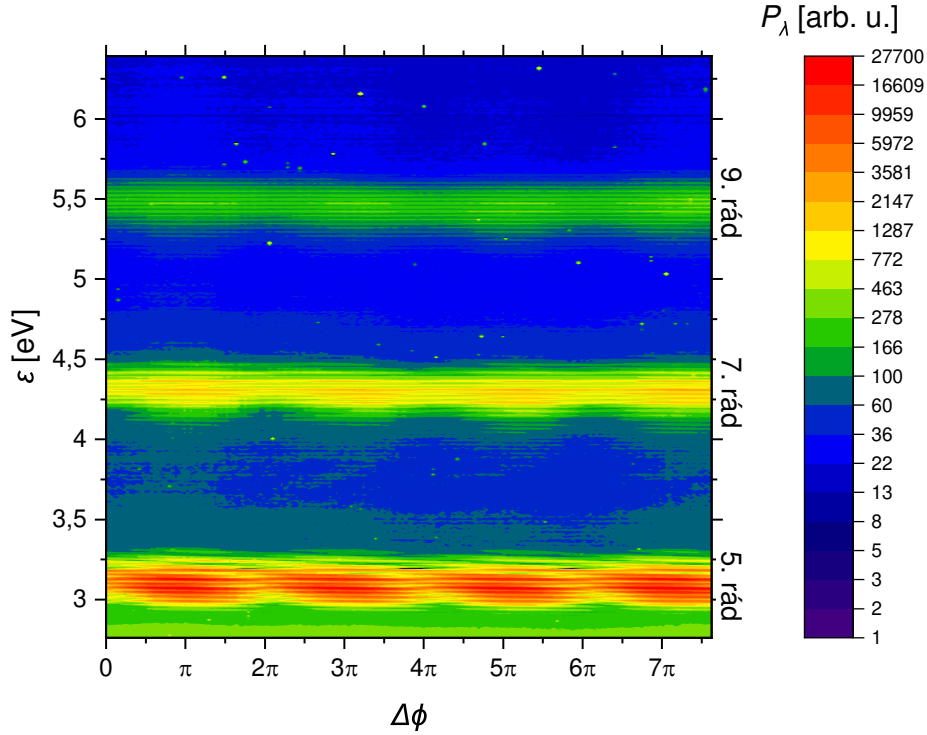
# A. Prílohy

## A.1 Potlačenie zväzku na druhej harmonickej frekvencii spektrálnym filtrom

Pri dopade zväzku na základnej frekvencii  $\lambda_{fund}$  na BBO kryštál pod uhlom dopadu  $\theta \doteq 27,4^\circ$  dochádzalo k splneniu podmienky sfázovania pre generáciu tretej harmonickej frekvencie  $\lambda_{fund}/3$ . V blízkosti tohto uhla však dochádza aj k sfázovaniu pre druhú harmonicnú frekvenciu  $\lambda_{fund}/2$ , konkrétne pre uhol  $\theta \doteq 21,8^\circ$ . V spektre sme tak pozorovali aj slabý príspevok poľa druhej harmonickej frekvencie, ktorý by pri dopade na vzorku kremíka porušoval symetriu interakcie a okrem nepárnych rádov vysokých harmonicných frekvencií by dochádzalo taktiež ku generácii párných rádov. Za BBO kryštál sme preto umiestnili optický filter, ktorý spektrálnu oblasť okolo druhej harmonickej frekvencie potlačí, ale pre oblasť základnej a tretej harmonickej frekvencie je čiastočne priehľadný. Detekované spektrá pri experimente s interferenciou dvoch fázovo posunutých polí vysokých harmonicných frekvencií sú uvedené na obrázkoch A.1 a A.2. Zaradením optického filtra tu pozorujeme vymiznutie párných rádov vysokých harmonicných, konkrétne šiesteho a ôsmeho rádu.



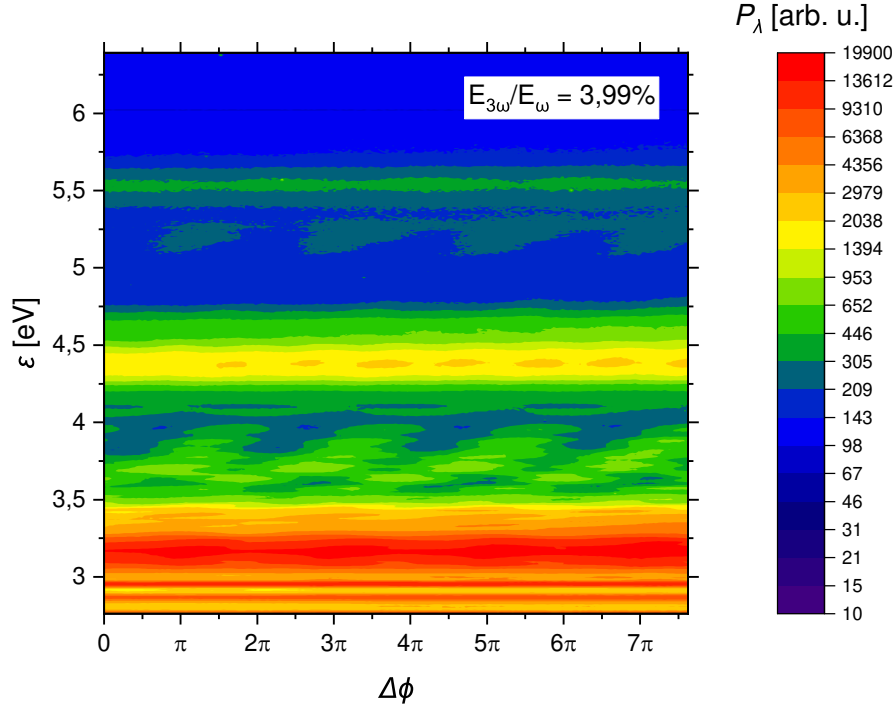
Obr. A.1: Detekované spektrum pri interferencii dvoch polí HHG bez umiestneného filtra SHG. Pozorujeme párne (6. a 8.) aj nepárne (5., 7. a 9.) rády harmonicných frekvencií.



Obr. A.2: Detekované spektrum pri interferencii dvoch polí HHG s umiestneným filtrom SHG. Pozorujeme iba nepárne (5., 7. a 9.) rády harmonických frekvencií.

## A.2 Meranie modulácie bez zaradenia polarizátora pred vzorku kremíka

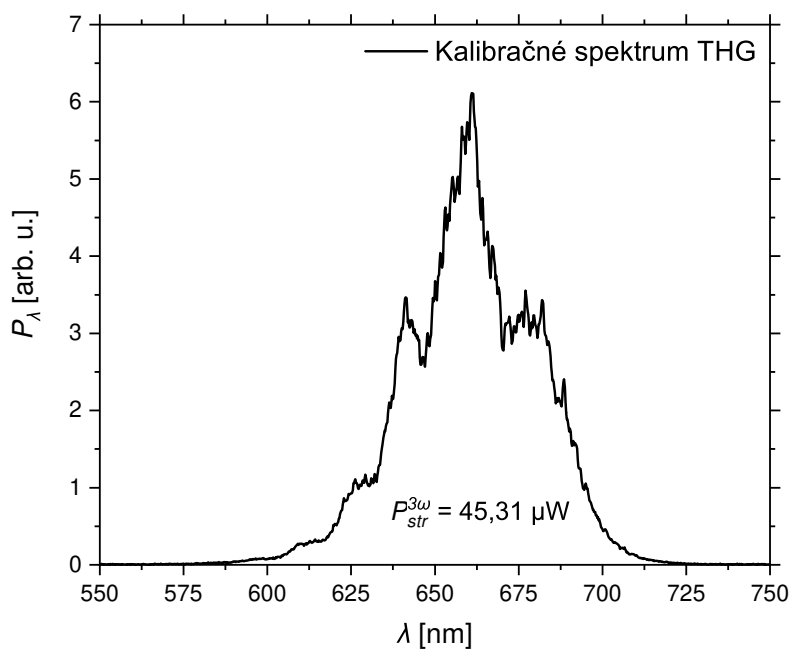
Pri kvantovej koherentnej kontrole predpokladáme rovnakú lineárnu polarizáciu oboch generujúcich zväzkov. Na splnenie tejto podmienky sme pred vzorku umiestnili polarizátor (POL). Nesplnenie uvedenej podmienky má za následok výrazný pokles efektivity kvantovej koherentnej kontroly. Takéto meranie bez zaradeného polarizátora je uvedené na obrázku A.3. Pre lepší signál sme pri meraní bez zaradeného polarizátora pootočili vzorku okolo osi zväzku o  $45^\circ$ , keďže odstránením polarizátora došlo k zmene relatívneho natočenia polarizácie dopadajúcich zväzkov a kryštalografických osí vzorky kremíka. Aj napriek dostatočne vysokému pomeru amplitúd generujúcich polí tak nepozorujeme takmer žiadnu moduláciu signálu vysokých harmonických frekvencií. Je nutné preto pred vzorku zaradiť polarizátor aj napriek jeho slabej priepustnosti pre zväzok na tretej harmonickej frekvencii.



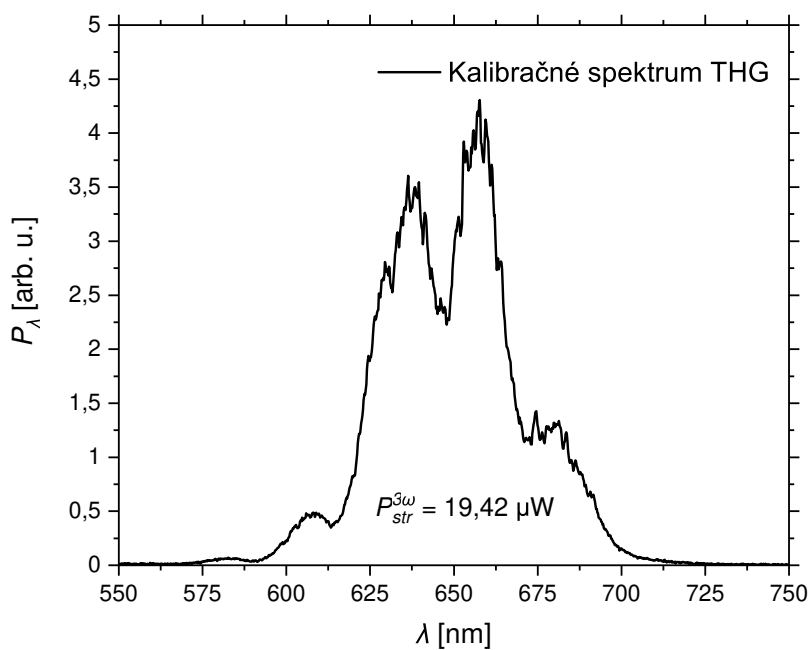
Obr. A.3: Detekované spektrum vysokých harmonických frekvencií v závislosti na fázovom posune polí na základnej a tretej harmonickej frekvencii pri pomere amplitúd polí  $E_{3\omega}/E_\omega = 3,99\%$  bez zaradeného polarizátora pred vzorkou.

### A.3 Kalibrácia stredného výkonu pulzu tretej harmonickej frekvencie

Pomocou powermetra sme namerali stredný výkon pulzu tretej harmonickej frekvencie o hodnote  $P_{str}^{3\omega} = 35 \mu\text{W}$ . Následne sme spektrometrom detekovali spektrum tretej harmonickej, ktoré tomuto výkonu odpovedá. Do detekovanej hodnoty stredného výkonu tretej harmonickej bolo potrebné započítať ešte priepustnosť optického hranola  $\text{BaF}_2$  použitého pri meraní. Skutočná hodnota kalibrácie je tak  $P_{str}^{3\omega} = 45,31 \mu\text{W}$ . Pomer integrálu spektra ku strednému výkonu príslušného pulzu tretej harmonickej frekvencie musí byť zachovaný. Následným ladením výkonu tretej harmonickej posunom BBO kryštálu okolo ohniska parabolického zrkadla sme potom už schopní stredný výkon určiť priamo z detekovaného spektra bez nutnosti použitia powermetra. Kalibračné spektrum je uvedené na obrázku A.4. Pri neskorších meraniach interferencie vysokých harmonických frekvencií so zaradenou polvlnnou doštičkou sme použili analogicky premeranú kalibráciu uvedenú na obrázku A.5.



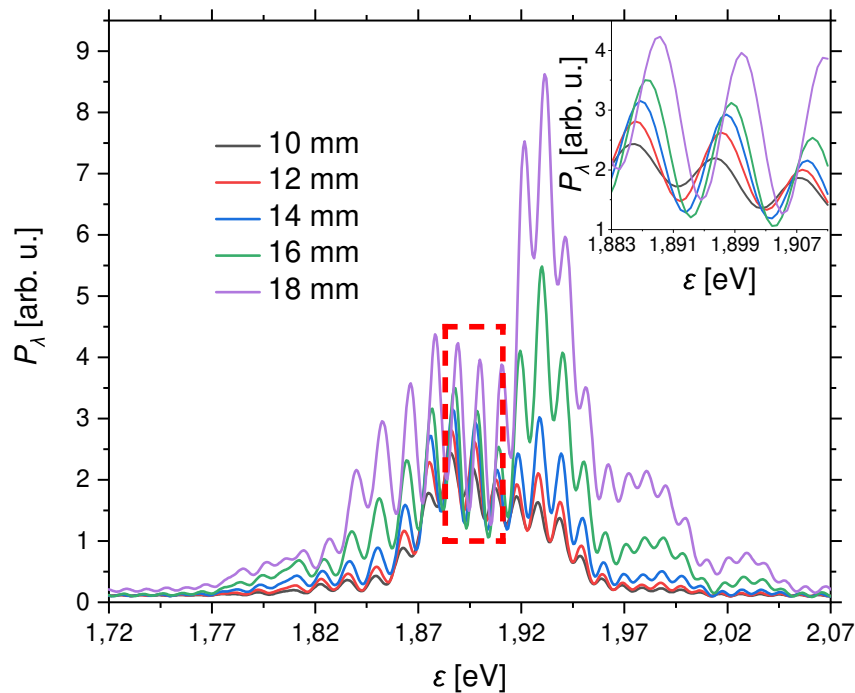
Obr. A.4: Kalibračné spektrum tretej harmonickej frekvencie pri strednom výkone  $P_{str}^{3\omega} = 45,31 \mu\text{W}$ .



Obr. A.5: Kalibračné spektrum tretej harmonickej frekvencie pri strednom výkone  $P_{str}^{3\omega} = 19,42 \mu\text{W}$ .

## A.4 Interferenčné spektrá polí tretej harmonickej frekvencie

Spektrálnu interferenciu horizontálne a vertikálne polarizovaného poľa na tretej harmonickej frekvencii sme detekovali pre celý rozsah posuvnej dráhy, na ktorej je BBO kryštál umiestnený. Na obrázku A.6 je uvedených päť takto detekovaných spektier pre päť rôznych polôh BBO kryštálu na posuvnej dráhe. Z insetu je zjavné, že sa interferenčné maximá s posunom BBO taktiež posúvajú. V spektrách sme následne zvolili oblasť, kedy má závislosť približne konštantnú strednú hodnotu cez periódu a konštantnú amplitúdu (oblasť znázornená v insete). V takto zvolenej oblasti sme následne všetky detekované spektrá fitovali kosínusom, čím sme získali závislosť posunu interferenčných maxím, a teda aj fázového posunu medzi vertikálne a horizontálne polarizovaným poľom tretej harmonickej frekvencie. Vo výsledku dostávame závislosť fázového posunu vertikálne polarizovaného poľa tretej harmonickej frekvencie použitého v experimentoch na polohe generujúceho BBO kryštálu.



Obr. A.6: Detekované spektrum pri interferencii dvoch pulzov na tretej harmonickej frekvencii pre päť rôznych polôh BBO kryštálu. Oblasť ohraničená červenou prerušovanou čiarou vyznačuje interval, na ktorom sme previedli fitovanie. Detail tohto intervalu je uvedený v insete.

