

Estudio acerca de los efectos en la generación de armónicos de orden alto bajo variaciones de las condiciones de focalización de pulsos láser de pocos ciclos

Eduardo-Warein Holgado Lage

Septiembre, 2016

Breve resumen

Hoy en día los pulsos láser de femtosegundo son generados rutinariamente y, gracias a su alta potencia pico y corta duración, se usan en un amplio número de aplicaciones, desde el ámbito industrial al médico o científico. Por ejemplo son aplicados para observar el movimiento de las moléculas dentro de una reacción química, o para acelerar electrones o incluso partículas más pesadas.

La presente tesis de doctorado está dedicada a una de las múltiples aplicaciones de los pulsos de femtosegundo: la generación de armónicos de orden alto (HHG). HHG es un proceso donde un pulso de alta potencia genera nuevas frecuencias, por encima del límite actual de longitudes de onda accesibles con láseres convencionales. Temporalmente, la radiación generada es emitida en forma de un tren de pulsos con una duración de centenares de attosegundos (incluso decenas en algunos casos), lo que añade interés a esta aplicación.

En los experimentos detallados en este trabajo estudiamos la dependencia de la HHG en parámetros clave del proceso, como son la fase del pulso generador, la posición del jet de gas o las condiciones de focalización. Esto nos permite controlar las características de la radiación XUV emitida. Además, analizamos la relevancia de la propagación macroscópica de estas nuevas frecuencias, incluyendo una comparación con simulaciones teóricas.

Ya que la HHG precisa de pulsos de femtosegundo, se hace necesario entender cómo trabajar con ellos. Con este propósito, en el primer capítulo de la tesis se describen los pulsos de femtosegundo, incluida su generación, caracterización y propagación. Hemos usado nuevas técnicas de caracterización, como STARFISH, o desarrollado otras como la versión en un solo disparo de 1 d-scan. Se han estudiado también los efectos no lineales que aparecen en la propagación de un pulso de femtosegundo, los cuales inducen cambios en su espectro y perfil espacial. En el segundo capítulo, se describe la HHG, el montaje experimental del que se dispone en el laboratorio y los principales resultados. El primer experimento analiza la influencia de la propagación no lineal en el gas en los armónicos emitidos. Además, se han realizado dos experimentos para estudiar

la influencia del acuerdo de fase en la generación de radiación XUV, en los que se ha visto que juega un papel fundamental en la creación de un continuo en el espectro XUV y en la dependencia con la CEP del pulso generador. También se han estudiado focalizaciones alternativas, como es el uso de un singlete con aberración cromática o de un vórtice infrarrojo con momento angular orbital.

1. Introducción

Gracias a la invención del láser en 1960 y, poco después, de técnicas de pulsado como modulación de factor Q o anclaje de modos, se han conseguido generar pulsos de duraciones de femtosegundo. Estos pulsos suponen un reto tecnológico tanto en su generación y amplificación, como en su propagación o en su medición.

En el presente trabajo de tesis se han utilizado pulsos generados en sistemas láser comerciales. Estos sistemas están basados en láseres de estado sólido con medio activo de Titanio Zafiro. Este tipo de cristal tiene una amplia banda de ganancia que permite generar pulsos con duraciones de pocos femtosegundos en el oscilador. Posteriormente, son amplificados mediante la técnica de amplificación de pulso *chirpeado* (CPA) para llegar al régimen de alta potencia, donde se alcanzan intensidades por encima de 10^{14} W/cm².

Además, se han utilizado novedosas técnicas para la caracterización de estos pulsos, como STARFISH (*SpatioTemporal Amplitude-and-phase Reconstruction by Fourier-transform of Interference Spectra of Highly-complex-beams*) o d-scan (*dispersion scan*). Incluso se ha desarrollado una variante de la técnica d-scan que permite aplicarla a la caracterización de pulsos en un solo disparo.

El método d-scan permite, además, optimizar los pulsos generados y es una de las posibilidades para alcanzar el régimen de pocos ciclos, donde la escala temporal de la envolvente del pulso se compara con la de la onda portadora. En el caso de pulsos cuya longitud de onda central se encuentra en el infrarrojo cercano ($\lambda_0 = 800$ nm) este régimen se alcanza cuando los pulsos tienen una duración inferior a los 5 femtosegundos aproximadamente. Además, la CEP del pulso, fase entre la onda envolvente y la onda portadora (*Carrier-Envelope Phase*) juega un papel determinante en este régimen.

Entre las numerosas aplicaciones de los pulsos de femtosegundo, esta tesis se centra en la generación de armónicos de alto orden (HHG). Este proceso aparece cuando un campo electromagnético suficientemente intenso interactúa con materia, provocando que la moléculas de la materia emitan luz en nuevas

frecuencias superiores a la del pulso generador.

El proceso HHG supone una fuente única de radiación en frecuencias que no son alcanzables con láseres convencionales, abarcando hasta el rango de los ultravioleta o incluso rayos X.

El espectro de emisión del HHG consiste en un peine de armónicos, cuya intensidad decrece en una primera parte del espectro, se mantiene constante en la zona intermedia, y finalmente cae hasta el último armónico generado, correspondiente a la denominada frecuencia de corte.

Además, al ser un proceso coherente, la radiación emitida puede ser comprimida hasta duraciones de decenas de attosegundo. Esto abre la puerta a aplicaciones en procesos ultrarrápidos como el movimiento de los electrones, que se enmarca en el régimen de los attosegundos.

Las características de la emisión HHG vienen determinadas por factores microscópicos, ya que el proceso ocurre a nivel molecular, y macroscópicos, ya que la radiación generada se obtiene como la interferencia de cada una de las emisiones independientes. Por ello es fundamental lograr un buen acuerdo de fase entre cada uno de los emisores independientes.

En el presente trabajo de tesis se han realizado experimentos de generación de armónicos en gases. La radiación emitida se ha medido con un espectrómetro XUV, con capacidad de resolver los diferentes armónicos y además otorgar una caracterización espacial.

2. Hipótesis de trabajo

En el presente trabajo de tesis se ha explorado la generación experimental de armónicos de orden alto con pulsos de femtosegundo de pocos ciclos.

Para ello se han desarrollado diversos experimentos donde, bajo la hipótesis de optimizar el proceso mediante la modificación de parámetros del pulso generador, se generan armónicos con características específicas que les añaden interés.

En particular, se pueden distinguir tres bloques experimentales. En un primer bloque se ha trabajado la propagación no lineal de pulsos de femtosegundo para observar su repercusión en la radiación XUV generada.

En un segundo bloque se han llevado a cabo dos experimentos para reseñar la importancia del acuerdo de fase en el proceso HHG. Estos experimentos han sido comparados con resultados teóricos obtenidos por el Dr. Luis Plaja y el Dr. Carlos Hernández-García.

Finalmente, en un tercer bloque se incluyen dos experimentos en los que se han variado las condiciones de focalización del pulso generador, aquí se incluye la generación de armónicos con un vórtice infrarrojo y, por otro lado, con un pulso focalizado con aberración cromática.

3. Objetivos

El objetivo del presente trabajo de tesis es la optimización y profundizar en el entendimiento del proceso de generación de armónicos de orden alto con pulsos de femtosegundo de pocos ciclos.

Para ello se han marcado objetivos para cada capítulo. El objetivo del primer capítulo es controlar la compresión de pulsos de femtosegundo y su correcta medida temporal, pues es la puerta a la optimización de la generación de radiación en nuevas frecuencias.

El objetivo del segundo capítulo es, mediante diversos experimentos, demostrar que el control de los pulsos de femtosegundo puede ser utilizado para generar radiación XUV con características únicas. Estas características van desde un espectro continuo a un control en la frecuencia de cada armónico, utilizando parámetros básicos en los pulsos láser como es la dispersión o la posición del foco, que son además fácilmente controlables.

4. Conclusiones

En este trabajo de tesis presentamos un análisis de la generación de radiación XUV cuando las condiciones del pulso generador son controladas y modificadas. Se han realizado diversos experimentos para explorar los parámetros específicos de los pulsos de femtosegundo que generan HHG con las características deseadas (espectrales, espaciales o temporales).

Hemos desarrollado, gracias a una colaboración con el *Imperial College* de Londres y la *Universidade do Porto*, una variante de la técnica d-scan para poder caracterizar pulsos en un único disparo.

Hemos encontrado que los efectos no lineales que aparecen en el pulso generador infrarrojo durante el proceso HHG conllevan cambios espectrales en la radiación XUV obtenida.

Hemos demostrado experimentalmente que la dependencia del proceso HHG con la CEP del pulso generador se reduce notablemente en el régimen de pocos ciclos si el pulso es focalizado cerca del jet de gas. Estos resultados han sido comparados con simulaciones teóricas realizadas por los Doctores Carlos Hernández-García y Luis Plaja.

Hemos generado radiación XUV de espectro continuo sin reducir temporalmente el pulso de femtosegundo. Al comparar con simulaciones teóricas, se encuentra que este continuo proviene de la interferencia de tres pulsos de attosegundo. Este experimento se reproduce focalizando el pulso con un singlete, encontrándose que la aberración cromática presente en este montaje no supone un limitante para el proceso, ya que la eficiencia aumenta. Además, se añade la ventaja de obtener radiación XUV con frecuencia fácilmente variable.

Los experimentos descritos remarcan la importancia del acuerdo de fase en el proceso HHG. Además, diversos parámetros como el *chirp*, posición del foco o CEP han sido examinados y optimizados.