



Universidad Nacional de La Plata

Facultad de Ciencias Exactas

Departamento de Física

Trabajo de Tesis Doctoral

Estudio teórico de la generación de armónicos de alto orden empleando diferentes campos de excitación

Tesista: Lic. Enrique Gustavo Neyra

Director: Dr. Gustavo A. Torchia

Año 2017



Universidad Nacional de La Plata

Facultad de Ciencias Exactas

Departamento de Física

Trabajo de Tesis Doctoral

Estudio teórico de la generación de armónicos de alto orden empleando diferentes campos de excitación

Tesista: Lic. Enrique Gustavo Neyra

Director: Dr. Gustavo A. Torchia

Tesis realizada en el Centro de Investigaciones Ópticas (CIOp)

Año 2017

*¿Quieres hacer algo inteligente?
Es muy fácil.
Piensa en hacer algo tonto y haz lo contrario.*

A Papá y Mamá.

Agradecimientos

Antes que nada quiero agradecer a mis padres, que sin ellos no hubiese sido posible nada de esto.

A Gustavo por haberme insertado en el tema de la generación de Armónicos y siempre estar dispuesto para discutir una idea, a Fabian por haberme prestado ayuda de todo tipo.

A Jose Antonio Pérez Hernández y Marcelo Ciappina, que sin la ayuda de ellos para realizar los diferentes cálculos, la tesis no se podría haber realizado.

A mis hermanos, que hemos compartido diferentes etapas.

A mis compañeros: Damian, Demian, Matias, Roberto y Valentin, que pasamos muy buenos momentos estos años, entre mates, cervezas y asados.

A los amigos que forme todos estos años en La Plata.

A mi ahijada, Mileva, que siempre encuentra una nueva forma de sacarme una sonrisa.

Y por último a la suerte, que por *suerte* fue buena.

Resumen

En este trabajo de tesis, se presentan diversos estudios teóricos de la generación de armónicos de alto orden (del inglés, High Order Harmonic Generation- HHG) en gases nobles utilizando diferentes campos láser ultracortos intensos para su producción. Estos estudios conducen a explicar las principales características de los espectros de armónicos obtenidos, en estas condiciones. El análisis fue realizado mediante la resolución de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE), en una y tres dimensiones espaciales, dependiendo de la forma del campo de excitación. Por otro lado, se llevó a cabo también un estudio clásico de las energías de ionización-recombinación en la generación de armónicos, por medio de la integración de la ecuación de Newton.

En la primera parte, se determinan las características que deben presentar los pulsos con chirp, para que sea posible una extensión del cut-off (fotón más energético) en la HHG respecto de los pulsos sin chirp. Se observa, que el chirp que permite tal comportamiento debe ser originado por un fenómeno no-lineal, tal que logre un aumento del ancho espectral del pulso. Siguiendo este razonamiento, se propone estudiar la HHG empleando un pulso con chirp obtenido por auto-modulación de fase (del inglés, Self-Phase-Modulation-SPM). Este fenómeno, origina el chirp sobre el pulso a medida que este se propaga una cierta longitud dentro de un material no-lineal. Se muestra, que existe un alargamiento del cut-off empleando pulsos modulados por SPM y que este incremento, es proporcional a la longitud del medio no-lineal utilizado para modificar el pulso.

Posteriormente, se estudia la dependencia del cut-off en función de la longitud de onda de excitación, considerando en este caso un campo

intenso inhomogéneo. Este campo inhomogeneo proviene del refuerzo de campo cercano producido por una nano-estructura de oro cuando es iluminada por un pulso láser. En estas condiciones el campo inhomogéneo oscila armónicamente con la misma frecuencia del láser. Como las variaciones en su intensidad se aprecian a escala nanométrica, es esperable que el comportamiento de las trayectorias de los electrones durante el proceso de HHG varíe notablemente en relación a un campo homogéneo. Por este motivo el proceso de HHG, excitado con un campo inhomogéneo, presenta un drástico apartamiento de la conocida ley del cut-off.

Finalmente, se propone un experimento que permite la síntesis de pulsos de aproximadamente un ciclo óptico de ancho temporal, para el estudio de la generación de armónicos altos en átomos de argón. Para lograr esto, inicialmente se divide un pulso gaussiano de un ciclo en dos y se los hace pasar por diferentes medios dispersivos, de distintas longitudes, esto origina un ensanchamiento temporal de los pulsos. Mediante una serie de espejos, se propone lograr un desfase de π entre ambos. Posteriormente, se los hace interferir en un interferómetro de dos ramas; de manera que el pulso resultante proporciona en la HHG una notable extensión del cut-off en relación al pulso original, debido a las características de los pulsos de pocos ciclos sintetizado. Se espera que, la eficiencia en la generación de armónicos en estas condiciones muestre una mejora en aproximadamente un orden de magnitud.

Índice general

Índice general	VI
Índice de figuras	IX
1. Introducción	1
2. Láser de pulsos ultra-cortos y propagación en medios dieléctricos	5
2.1. Láser de femtosegundos	5
2.1.1. El láser de Titanio Zafiro	5
2.1.2. Pulso ultra-corto con fase estabilizada	7
2.2. Descripción matemática de un pulso ultra-corto	8
2.2.1. Relación entre la duración del pulso y su ancho espectral .	11
2.3. Propagación en medios dieléctricos	12
2.3.1. Medios dispersivos lineales	13
2.3.2. Medios ópticos, interacción no-lineal	18
3. Generación de Armónicos de Alto Orden	23
3.1. Ionización con campos muy intensos	23
3.1.1. Ionización por efecto túnel	24
3.1.2. Ionización por supresión de barrera	26
3.1.3. Ionización multifotónica	26
3.2. Generación de Armónicos de Alto orden en gases nobles	28
3.2.1. Análisis clásico y modelo de los tres pasos	30
3.2.2. Aproximación de campo fuerte y modelo de Lewenstein . .	35
3.2.3. Ecuación de Schrödinger 1-D y 3-D	38

3.2.4. Análisis tiempo-frecuencia, Transformada Wavelet	41
4. Generación de armónicos de alto orden con pulsos con chirp	43
4.1. Generación de Armónicos con chirp lineal y no-lineal	44
4.1.1. Modelos teóricos	44
4.1.2. Generación de Armónicos con pulsos con chirp lineal, medio dispersivo	46
4.1.3. Generación de Armónicos con pulsos con chirp no-lineal . .	50
4.2. Generación de Armónicos con pulsos con chirp dados por auto-modulación de fase	55
4.2.1. Modelos teóricos y obtención de la SPM sobre el pulso . .	56
4.2.2. Resultados	59
4.3. Discusión y Conclusiones	65
5. Generación de armónicos de alto orden por medio de campos inhomogéneos	68
5.1. Refuerzo de campo cercano producido por una nano-estructura metálica	70
5.1.1. Campo eléctrico producido por un dipolo oscilante	70
5.1.2. Movimiento colectivo de los electrones: Plasmones	72
5.2. Modelos teóricos	74
5.2.1. Refuerzo de campo producido por una nano-estructura de oro	74
5.2.2. Ecuación 1D-TDSE para campos inhomogeneos	76
5.3. Resultados	78
5.4. Discusión y Conclusiones	88
6. Síntesis de un pulso de un ciclo para la generación de armónicos	90
6.1. Generación de armónicos con pulsos de pocos ciclos: Attosegundos	91
6.2. Síntesis de los pulsos	92
6.3. Resultados	97
6.4. Discusión y Conclusiones	102
7. Conclusiones y perspectivas futuras	105

Bibliografía

109

Índice de figuras

2.1. Espectro de absorción-emisión de un láser de Ti:Sa.	6
2.2. Esquema de un sistema amplificador (CPA) basado en redes de difracción.	7
2.3. Variación de la CEP ($\Delta\phi$) en un tren de pulsos.	8
2.4. Ejemplo de un pulso con chirp lineal.	10
2.5. Ensanchamiento de un pulso antes y después de atravesar un medio dispersivo de longitud z	18
3.1. Evolución del paquete de onda del electrón, en régimen túnel y por supresión de barrera.	25
3.2. Absorción multifotónica de dos fotones.	27
3.3. Espectro característico de la generación de armónicos de alto orden. En el mismo se pueden identificar tres regiones a medida que aumenta la frecuencia o energía del fotón emitido. La región perturbativa, que se sitúa en los primeros ordenes armónicos, en donde la intensidad decrece exponencialmente. Una región denominada meseta, en donde los armónicos poseen la misma intensidad, hasta finalizar en el cut-off o fotón de máxima energía que se puede obtener.	29
3.4. Esquema de un dispositivo experimental tipo para la generación y detección de la radiación armónica.	31

3.5. Esquema del modelo de los tres pasos. Inicialmente, se observa el potencial sin deformar, luego el láser modifica al potencial creando una barrera que permite la ionización del electrón. La aceleración ocurre en el segundo paso y por ultimo (cuando el campo cambia de dirección) el electrón es recombinado emitiendo un fotón muy energético.	32
3.6. Energía cinética del electrón como función de la fase de ionización θ_0 (azul) y la fase de recombinación θ_r (rojo), normalizada a U_P . El campo eléctrico láser (parte superior), se encuentra normalizado a E_0	34
4.1. Pulso láser sin chirp, el máximo valor del campo eléctrico E_0 es $0,1688a.u.$ que corresponde a una intensidad de $10^{15}W/cm^2$	46
4.2. La imagen (a) corresponde al pulso sin chirp utilizado para realizar las simulaciones, la intensidad asociada a este pulso es de $10^{15}W/cm^2$ y la longitud de onda es $\lambda=800nm$. La imagen (b) corresponde a las energías clásicas, que resulta de la integración de las ecuaciones de Newton-Lorentz. Donde, en azul se describe la energía de ionización como función del tiempo y en rojo la energía de recombinación. El máximo valor de energía (cut-off) corresponde a $190eV$	48
4.3. Las imágenes (a), (b), (c), representan los diferentes pulsos con chirp variando el parámetro aL . Los correspondientes valores de la función $\Delta(t)$, se muestran en las imágenes (d), (e), (f). Siguiendo el mismo criterio de la figura 4.2, se muestran en las imágenes, (g), (h), (i), el análisis clásicos de las energías.	49
4.4. En el lado izquierdo se muestran los pulsos con chirp dados por la ecuación (4.9), a una intensidad de $10^{15}W/cm^2$ y para los diferentes valores del parámetro b . Sobre el lado derecho, se encuentra la función $\Delta(t)$ para los diferentes pulsos.	51

4.5. Transformada de Fourier para los diferentes pulsos dados en la figura 4.4, ($b = 0,0005\omega_0$ en verde, $b = 0,001\omega_0$ en rojo y $b = 0,0015\omega_0$ en azul). En negro se gráfica la Transformada de Fourier para el pulso sin chirp.	52
4.6. Las imágenes (a), (b) y (c) muestran los correspondientes espectros de HHG en átomos de He para los pulsos con chirp dados en la figura 4.4. En (d), (e) y (f) se grafican el análisis tiempo-frecuencia y en líneas negras se superpone el análisis clásico de las energías de recombinación. Con línea gris se muestran los diferentes pulsos con chirp.	54
4.7. En esta figura, se representa lo mismo que en la figura 5 (c),(f), pero en este caso la intensidad es $I = 1,4 \cdot 10^{15} W/cm^2$ ($E_0 = 0,2 a.u.$). Esta intensidad, corresponde al umbral de saturación del átomo de helio.	55
4.8. Posible experimento para la HHG con pulsos con chirp dado por la SPM. Los paneles insertados contienen, a la entrada, la envolvente del pulso y su frecuencia ω_0 . A la salida, se representa en línea negra la frecuencia instantánea $\omega(t)$	58
4.9. Figura (a) pulso libre de chirp. Figuras (b), (c), (d) pulsos con chirp para tres valores diferentes de z . Los periodos mas largos (longitudes de ondas largas), se encuentran sobre la parte inicial del pulso. La amplitud del campo permanece invariante para todos los casos.	60
4.10. Espectro de HHG en argón extraído de la ecuación 1D-TDSE para los diferentes pulsos presentados en la figura 4.9. Las diferentes flechas indican los incrementos del cut-off en unidades de U_P	61
4.11. Análisis clásico de las energías de ionización-recombinación del electrón, para los diferentes pulsos dados en la figura 4.9. Se muestra el potencial de ionización I_P del argón, cuya valor es $15,7 eV$. . .	62
4.12. Figura (a), pulso con chirp para $z = 100L_{NL}$. En (b) se muestra la frecuencia instantánea $\omega(t)$, como la derivada primera de la fase. (c) análisis clásico de las energías. El cuadro insertado muestra un aumento de la región de máxima energía (cut-off).	64

5.1. Simulación del refuerzo de campo producido por una nano-estructura de oro, utilizando una longitud de onda del láser de 800nm. En la figura (a) se muestra un esquema de la interacción del láser con la nano-estructura, como así también en azul el refuerzo de campo producido. Las figuras (b) y (c) muestran los resultados obtenidos para la intensidad del refuerzo de campo.	75
5.2. Función $h(x)$ normalizada en el punto $x = 0$, la cual representa el termino inhomogéneo del campo eléctrico que interactúa con el gas. Esta función se desprende del ajuste de la simulaciones dadas por la figura 5.1(c).	76
5.3. La figura (a) muestra el pulso láser utilizado para realizar las simulaciones, las flechas de colores indican la zona temporal donde el electrón es ionizado y recombinado. La figura (b) muestra los resultados clásicos obtenidos en el punto B, a cada flecha le corresponde otra flecha del mismo color en la figura (a).	80
5.4. Simulaciones cuánticas realizadas bajo la ecuación 1D-TDSE utilizando el pulso representado por la figura 5.3(a). Se muestra los espectros de armónicos para las cuatro longitudes de onda λ utilizadas: (a)800nm, (b)1100nm, (c)1300nm, (d)1500nm. La intensidad del láser empleada fue de $10^{14}W/cm^2$	83
5.5. Simulaciones clásicas de energías de ionización (rojo) y recombinación (verde), para los mismos parámetros que las simulaciones cuánticas, figura 5.4. Se puede observar en cada gráfica, la línea negra que representa el cut-off del campo homogéneo.	84
5.6. Dependencia de cut-off como función de la longitud de onda λ , mediante el análisis clásico de las energías para el campo inhomogéneo (negro). En línea roja se muestra el comportamiento de la ley clásica del cut-off (3.7).	86
5.7. Análisis clásico de las trayectorias para el campo inhomogéneo. La figura (a) muestra los resultados para $\lambda = 3000nm$ y la figura (b) el caso para $\lambda = 4000nm$. Se observa que las trayectorias que recombinan nunca superan, aproximadamente, el rango espacial $\pm 200a.u.$	87

6.1. Espectro de armónicos obtenidos con pulsos con diferentes anchos temporales. Las imágenes superiores muestran un espectro obtenido por un pulso de varios ciclos, como así también su TF (tren de attosegundos). La imágenes inferiores, muestran la síntesis de un pulso de attosegundo, obtenido por medio de un pulso de pocos ciclos. En línea roja se señala la región espectral que fue filtrada (filtro pasa-alto).	93
6.2. (a)Esquema experimental propuesto para la síntesis de los pulsos.(b) pulso inicial, (c) superposición de dos pulsos que originan la síntesis, (d) síntesis del pulso antes de atravesar un filtro espectral.	94
6.3. Pulso sintetizado y su análisis wavelet (izquierda). Las imágenes a la derecha, muestran el filtro espectral (línea punteada roja) sobre el análisis wavelet y el pulso luego de ser filtrado (rojo).	96
6.4. Los cuatro pulsos sintetizado para el estudio de la generación de armónicos.	97
6.5. Espectro de armónicos obtenidos por medio de la ecuación 3D-TDSE, para los cuatro pulsos sintetizados (rojo). En azul, se observan los espectros equivalentes que originan el mismo cut-off. En negro (a), se muestra el espectro de armónicos para $\lambda = 800nm$	98
6.6. Análisis clásico de las energías de ionización-recombinación para los cuatro pulsos sintetizados. La flecha negra en cada imagen, indica el tiempo de vuelo τ_V	100
6.7. Análisis Wavelet de la HHG, para los cuatro pulsos sintetizados.	101
6.8. Las figuras (a) y (b) muestran los espectros de armónicos obtenidos por medio de los pulsos 1 y 3 respectivamente, con azul se representa la región espectral filtrada. Las figuras (c) y (c) muestran los pulsos de attosegundos obtenidos luego de filtrar la radiación de bajas frecuencias.	103

Capítulo 1

Introducción

En las últimas décadas se ha logrado un gran avance en la generación de pulsos ópticos ultracortos. Estos pulsos, que se encuentran generalmente en la región temporal de los femtosegundos ($10^{-15}s$), permiten, mediante sistemas amplificadores, obtener intensidades muy elevadas. Esto ha originado una revolución en los procesos de interacción radiación-materia, dando lugar a la física de campos ultra-intensos [1–3].

En las dos últimas décadas, una de las aplicaciones que mayor interés ha suscitado en la comunidad científica, es la posibilidad de controlar y generar radiación coherente en la región del espectro entre el ultravioleta extremo (XUV) y los rayos X blandos. Esta aplicación es posible utilizando sistemas relativamente compactos y de bajo costo [4,5].

El fenómeno conocido como HHG (Generación de Armónicos de Alto Orden o High Order Harmonic Generation en inglés) origina la radiación en las regiones del espectro electromagnético antes mencionadas. La HHG es un proceso altamente no-lineal, debido a la interacción entre un pulso láser ultraintenso y un sistema gaseoso. Esta interacción, permite la generación de radiación coherente, tanto espacial como temporal. [6,7]. La radiación obtenida de esta manera, se manifiesta como armónicos cuyas frecuencias son múltiplos impares, de orden muy elevado, de la frecuencia original del láser [8–10]. Generalmente las intensidades que se utilizan para la HHG, se encuentran entre los rangos de 10^{13} - 10^{15} W/cm².

El primero en observar este fenómeno, fue McPherson y colaboradores en 1987 [11], encontrando el orden armónico 17 en átomos de Ne. Años después, en

1993, L’Huillier y Balcou utilizaron un láser de 1 ps (10^{-12} s) de ancho temporal y una longitud de onda de 1053 nm para generar armónicos en Xe (orden 29), Ar (orden 57) y Ne (orden 137) [12].

Un espectro típico de armónicos, consta de una región denominada perturbativa (bajos ordenes), donde la eficiencia de la generación decrece exponencialmente con el orden armónico. Luego se observa, que la eficiencia para los siguientes órdenes permanece constante (región de *plateau*), hasta llegar a un punto denominado frecuencia de corte o *cut-off*, que corresponde al fotón más energético que se puede obtener [8, 13]. A partir de este punto, la eficiencia decrece drásticamente para los siguientes ordenes armónicos.

En 1992 Krause y en 1993 Corkum y colaboradores [14, 15], propusieron un modelo semi-clásico para explicar la generación de armónicos, denominado modelo de los tres pasos. Este modelo, fue ampliado por Lewenstein y colaboradores en 1994 (Modelo de Lewenstein) incluyendo una descripción cuántica, que utiliza la aproximación de campo fuerte (Strong Field Approximation SFA) [16].

Los armónicos de alto orden, son una fuente de radiación coherente y bajas longitudes de ondas que dan lugar a varias aplicaciones. Por ejemplo, pueden emplearse para microscopia de transmisión en tejidos biológicos, ya que permiten generar radiación en la banda espectral que se conoce como "ventana del agua" (2.34nm-4.37nm), en donde el oxígeno es relativamente transparente con relación al carbono, que posee una gran absorción [17, 18]. También, gracias a la coherencia de la radiación, permiten la reconstrucción 2D y 3D de imágenes a escala nanométrica. Esto se logra, empleando la técnica "Lensless Diffractive Imaging" (LDI) [19]. Otra de las aplicaciones consiste en la fabricación de estructuras nanométricas, mediante la técnica de litografía por interferencia láser (Laser interference lithography) [20].

Un párrafo aparte merece, la que es quizás, la aplicación mas importante de la HHG: la posibilidad de generar pulsos de Attosegundos (10^{-18} s), que ha abierto una nueva área de investigación en la física, llamada Attofísica o Attociencia [21–23]. La HHG permite además obtener radiación con un gran ancho espectral, que por medio de la Transformada de Fourier, es equivalente a obtener pulsos temporalmente muy cortos. La Attofísica, estudia los procesos físicos que ocurren en una escala temporal muy corta mediante la técnica pump-probe, como por

ejemplo: reacciones químicas, cambio en la estructura molecular, dinámica de los electrones ligados (función de onda), etc. [24–27] En este sentido, debemos tener en cuenta que el periodo clásico del electrón del átomo de Hidrógeno alrededor del núcleo, es de 150 attosegundos. Al día de hoy, el pulso mas corto obtenido en el laboratorio, es de 67 attosegundos [28].

En 2008 Kim y colaboradores, presentaron un trabajo que generó una revolución en la HHG, como así también una gran controversia [29, 30]. Generaron armónicos, mediante el refuerzo de campo eléctrico producido por una nano-estructura de oro. La intensidad de este refuerzo de campo, se encuentra entre 2 y 3 ordenes de magnitud con respecto a la intensidad inicial. Para generar la radiación, emplearon una intensidad de 10^{11} W/cm² al enfocar el pulso láser sobre la nano-estructura de oro. Esto originó nuevos estudios sobre la HHG, ya que el campo eléctrico resulta inhomogéneo, pues el refuerzo de campo eléctrico producido por la nano-estructura presenta variaciones a escala nanométricas.

Los desafíos en la HHG en los últimos años, se han centrado principalmente en lograr una mejora en la eficiencia de la generación, considerando que esta es relativamente baja, del orden de 10^{-7} [31–34]. Por otro lado, también se han propuesto diferentes métodos, tanto teóricos como experimentales, para lograr fotones más energéticos (extensión del cut-off) [35–38].

Siguiendo la idea del párrafo anterior, el objetivo y la motivación de la presente tesis, fue el estudio de diferentes *estrategias* para mejorar el proceso de generación de armónicos, utilizando diferentes campos de excitación. Por otro lado, una mejor interpretación del origen de los fenómenos físicos que originan los diferentes campos, dió lugar a nuevas consideraciones en el comportamiento de las trayectorias de los electrones.

Los estudios y análisis fueron realizados de manera teórica, mediante la resolución de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo en una y tres dimensiones espaciales (1D-TDSE y 3D-TDSE). Complementariamente, se llevó a cabo un estudio clásico de las energías de ionización-recombinación y de las trayectorias de los electrones en el continuo, mediante la integración de las ecuaciones de Newton.

La tesis, está organizada según el siguiente orden: en el capítulos 2, se presenta una introducción teórica breve, de la generación de pulsos de femtosegundos y su

propagación en medios dieléctricos. En el capítulo 3, hablaremos de los procesos de ionización en átomos por medio de campos muy intensos. También se presenta una introducción al proceso de generación de armónicos de alto orden en gases nobles. Los siguientes capítulos, presentan los resultados obtenidos que dan el cuerpo a la tesis.

Así, en el capítulo 4, se estudia la generación de armónicos con pulsos con chirp. Se concluye cuales deberían ser las características físicas del origen del chirp en el pulso, para lograr una extensión del cut-off. Por otra parte, teniendo en cuenta las conclusiones obtenidas, se propone un pulso con chirp, que es consecuencia del fenómeno conocido como *auto modulación de fase* (en inglés *self-phase-modulation* SPM). Se muestra, que el chirp originado es proporcional a la distancia z de propagación dentro de el material y que el mismo origina un incremento del cut-off proporcional a z .

En el capítulo 5, se estudia la dependencia del cut-off con la longitud de onda para un campo inhomogéneo. Este campo, se obtuvo a través de un ajuste con muy buen grado de aproximación, del refuerzo de campo producido por una nano-estructura de oro, al ser iluminada por un pulso láser. Este ajuste más preciso del campo cercano de la nano-estructura, muestra un comportamiento distinto de las trayectorias de los electrones en el continuo, en relación a un campo homogéneo.

En el capítulo 6, se estudian las características del espectro de armónicos en átomos de argón, eficiencia de la generación y extensión del cut-off, por medio de la síntesis de un pulso de aproximadamente un ciclo de ancho temporal y cierto grado de chirp. El pulso sintetizado, es la suma de dos pulsos con chirp, dado por un medio dispersivo y un desfase entre ellos de π .

Finalmente, en el capítulo 7 se presentan las conclusiones generales y las perspectivas futuras de los resultados presentados en esta tesis.

Capítulo 2

Láser de pulsos ultra-cortos y propagación en medios dieléctricos

2.1. Láser de femtosegundos

Generalmente cuando se habla en la literatura de láseres de pulsos ultra-cortos, se hace referencia a los diferentes láseres de varios a algunos femtosegundos de duración. Hoy en día, el láser mas utilizado para producir dichos pulsos es el láser de Titanio Zafiro. Este láser permite obtener una gran potencia en los pulsos, como así también pulsos verdaderamente muy cortos, llegando a algunos pocos femtosegundos de duración [39–41].

2.1.1. El láser de Titanio Zafiro

El láser de Titanio Zafiro utiliza como medio activo un cristal de zafiro (Al_2O_3) dopado con titanio. Por las características de su espectro de emisión puede ser un láser sintonizable, pero generalmente se lo utiliza en 800 nm de longitud de onda central. En la figura 2.1, puede observarse el espectro de absorción, centrado alrededor de 500 nm, y el de emisión centrado en 800 nm de longitud de onda. Este láser, al poseer un gran ancho en la banda de emisión (ancho espectral), puede ser utilizado para la generación de pulsos ultracortos, lográndose pulsos de

alrededor de 5 fs de duración temporal [42].

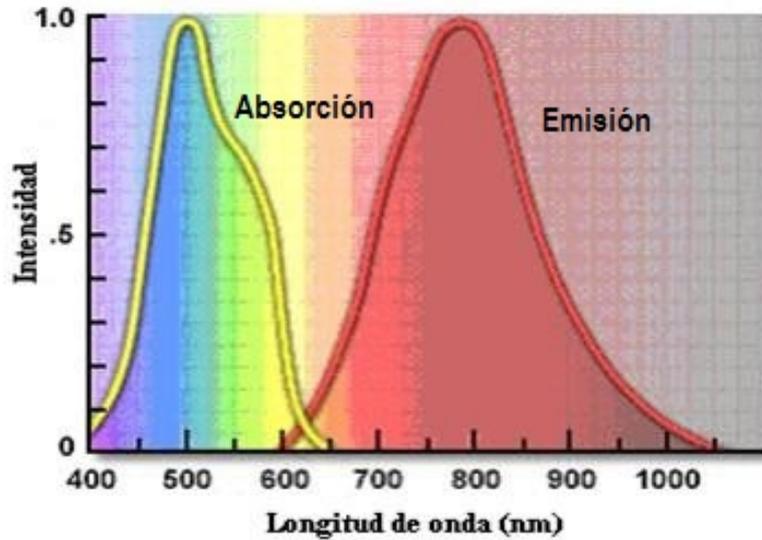


Figura 2.1: Espectro de absorción-emisión de un láser de Ti:Sa.

La técnica empleada para producir pulsos ultracortos se conoce como Mode-Locking [39, 43, 44]. Esta técnica, consiste en lograr *anclar* las fases de los diferentes modos longitudinales dentro de la cavidad resonante, obteniéndose así un tren de pulsos cortos. La separación de este tren, esta dada por la siguiente relación $T_{rep} = \frac{2L}{c}$, siendo L la longitud de la cavidad láser y c la velocidad de la luz. Por otro lado, la duración de estos pulsos, dependerá de la cantidad de modos que se encuentren oscilando con la misma fase. Las dos técnicas mas comunes para obtener mode-locking, se conocen como active mode-locking y passive mode-locking [45–47]. En la primera se utiliza un modulador externo para acoplar las fases, que puede ser un modulador acusto-óptico. En la segunda, no se requiere de una modulación externa de los modos, sino que se utiliza lo que se conoce como absorbente saturable, el cual permite el paso de la luz cuando esta posee suficiente intensidad. De esta manera, el absorbente dejará pasar solamente los pulsos que estén en fase, ya que son los que poseen mas potencia, logrando así el mode-locking.

Una de las grandes ventajas de trabajar con pulsos ultra-cortos, es la posi-

bilidad de generar pulsos de muy alta potencia, que en la actualidad se encuentran en el rango de los Petawatt ($10^{15}W$). La técnica empleada para producir pulsos ultra-cortos muy energéticos se conoce como Chirped-pulse-amplification (CPA) [48–50]. Esta técnica consiste en ensanchar el pulso temporalmente mediante un medio dispersivo, por ejemplo utilizando redes de difracción o sistemas de prismas [51–53]. Esto permite que el pulso pueda ser amplificado en diferentes etapas, sin *dañar* el medio activo. Luego de ser amplificado, el pulso es comprimido obteniéndose un pulso ultra-corto muy energético. En la figura 2.2, se muestra un esquema de la técnica CPA [39].

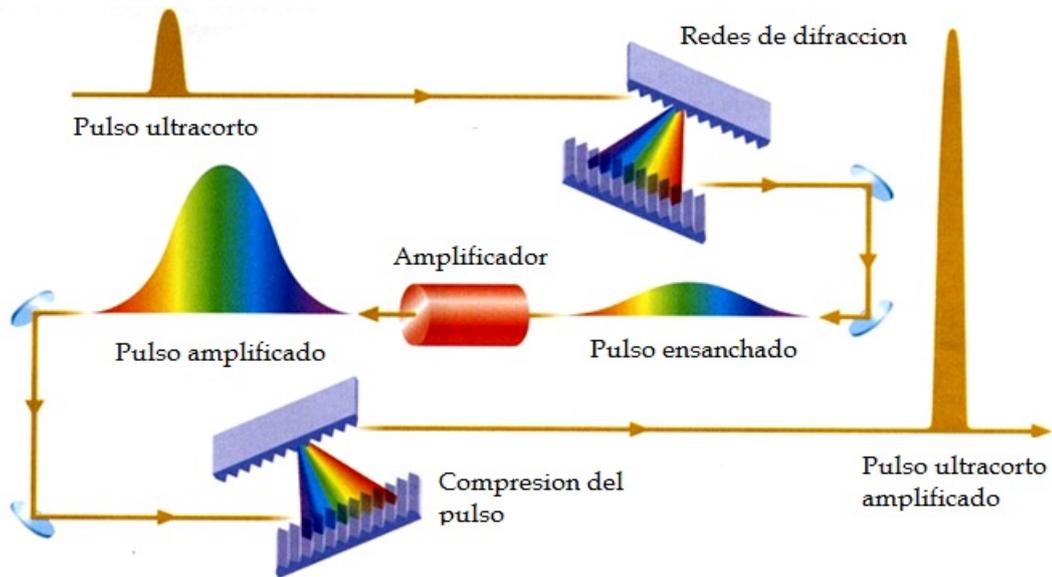


Figura 2.2: Esquema de un sistema amplificador (CPA) basado en redes de difracción.

2.1.2. Pulso ultra-corto con fase estabilizada

Cuando los pulsos poseen algunos ciclos ópticos (*o.c.*) de ancho temporal ($1o.c. = 1T$), la diferencia de fase entre la envolvente y la portadora adquiere relevancia. Esta diferencia se conoce como CEP (carrier envelope phase en inglés). Por ejemplo, para un pulso de 800 nm de longitud de onda central, el periodo T es igual a 2.67 fs.

Esta relevancia, se refleja en la variación de la máxima amplitud del campo eléctrico del pulso cuando varía la CEP. Los nuevos láser que originan un tren de pulsos de pocos ciclos, poseen sistemas que permiten controlar y mantener constante en el tiempo la CEP [54–56]. En pocas palabras, logran que la velocidad de grupo v_g sea igual a la velocidad de fase para todo tiempo.

La importancia de mantener constante la CEP en un tren de pulsos, radica en la posibilidad de repetir los resultados entre un pulso y el siguiente [57–60]. Si el sistema que interactúa con los pulsos láser responde en función de la CEP, es necesario que ese tren de pulsos posea la misma CEP, de lo contrario cada medida va a ser diferente. En la figura 2.3, se muestra un esquema de un tren de pulsos, donde la CEP no es constante.

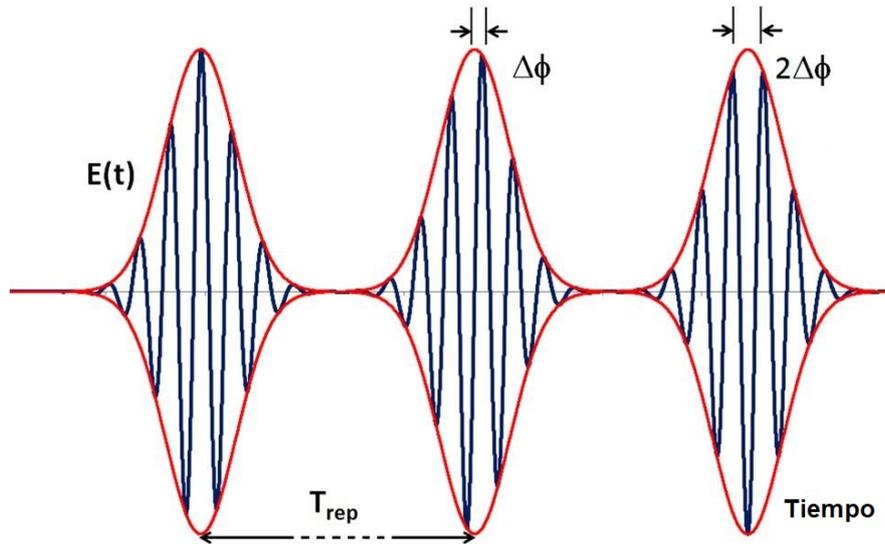


Figura 2.3: Variación de la CEP ($\Delta\phi$) en un tren de pulsos.

2.2. Descripción matemática de un pulso ultracorto

En esta sección describiremos las características de los pulsos ópticos utilizados en esta tesis. Un pulso óptico es un paquete de ondas electromagnéticas, que posee

un determinado ancho temporal τ y una frecuencia central ω_0 . En el tratamiento semiclásico, la propagación e interacción de estos pulsos con la materia, están descritos por las ecuaciones de Maxwell y la respuesta del material a través de la polarización macroscópica.

Por el tipo de intensidades utilizadas (régimen no-relativista), no tendremos en cuenta en este análisis la componente del campo magnético para realizar los diferentes cálculos, por lo que solamente describiremos el pulso a través del campo eléctrico. Por otro lado, no se estudiarán efectos de propagación asociados a la variación espacial del pulso y supondremos que el pulso está polarizado linealmente. De esta manera, se desprecia la variación espacial del pulso como así también su carácter vectorial. De esta forma, podemos describir al pulso óptico en forma compleja de la siguiente manera.

$$E(t) = f(t)e^{i\Gamma(t)} \quad (2.1)$$

Siendo $f(t)$ la envolvente del pulso y $\Gamma(t)$ la fase. Generalmente, el contenido espectral de los pulsos ópticos se encuentra centrado alrededor de una frecuencia media ω_0 y toma valores apreciables solamente en un cierto intervalo $\Delta\omega$. Este intervalo, es muy chico comparado con ω_0 .

De esta manera, se puede describir al pulso óptico por medio de una frecuencia central o portadora, como:

$$E(t) = f(t)e^{i\phi(t)}e^{i\omega_0 t} = f'(t)e^{i\omega_0 t} \quad (2.2)$$

O escrito de manera equivalente utilizando términos reales.

$$E(t) = f(t) \cos(\omega_0 t + \phi(t)) \quad (2.3)$$

La función $f'(t)$ es llamada la envolvente compleja del pulso. La envolvente $f(t)$, es la que posee información sobre el ancho temporal τ del pulso. El término $\phi(t)$, es una función que puede llegar a ser bastante compleja y determina la fase del pulso. Cuando la fase posee una dependencia temporal, se dice que el pulso posee *chirp*. De esta manera, el pulso va a tener una frecuencia instantánea $\omega(t)$

dada por:

$$\omega(t) = \omega_0 + \frac{d\phi(t)}{dt} \quad (2.4)$$

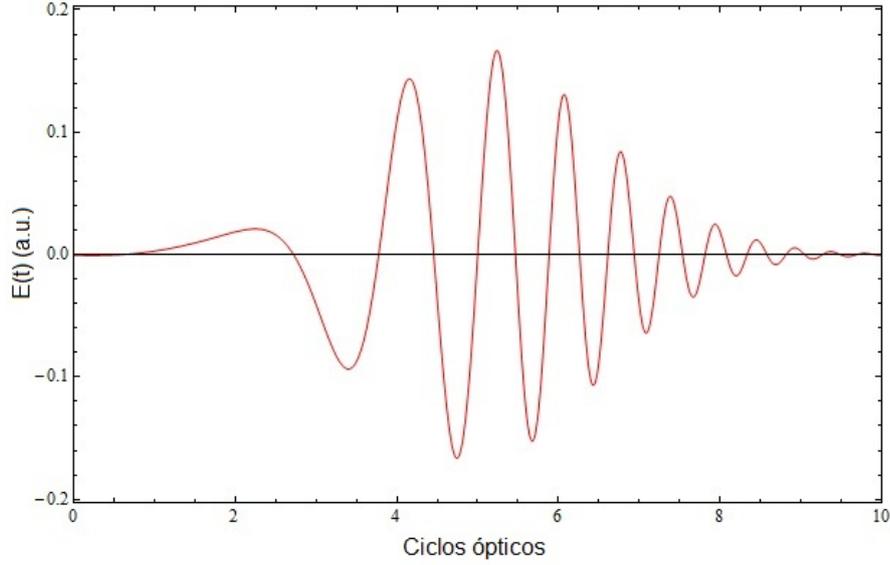


Figura 2.4: Ejemplo de un pulso con chirp lineal.

En la figura 2.4 se muestra un ejemplo de un pulso de pocos ciclos con chirp lineal. Para este ejemplo, la frecuencia instantánea viene dada por la siguiente expresión $\omega(t) = \omega_0 + bt$, siendo b un parámetro que determina el grado del chirp.

La aproximación anterior, dada por $\Delta\omega \ll \omega_0$, implica que la envolvente $f(t)$ y la fase $\phi(t)$ cambian muy poco en un ciclo óptico T (para una longitud de onda de 800 nm $T = 2,6 fs$). Esta aproximación es muy útil y se utilizará más adelante.

Por otro lado, la descripción y el análisis del pulso óptico realizada anteriormente, puede también ser considerada en el dominio de las frecuencias por medio de la Transformada de Fourier (TF):

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t)e^{-i\omega t} dt = |\tilde{E}(\omega)| e^{\Phi(\omega)} \quad (2.5)$$

El módulo $|\tilde{E}(\omega)|$ representa la amplitud espectral y la función $\Phi(\omega)$ la fase espectral del pulso óptico.

La Transformada de Fourier inversa se puede escribir como:

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (2.6)$$

Esta representación en el dominio de las frecuencias, posee muchas aplicaciones y permite estudiar determinados casos de manera más simple.

2.2.1. Relación entre la duración del pulso y su ancho espectral

Como se comentó en el punto anterior, la envolvente del pulso $f(t)$ es la función que determina el ancho temporal del pulso (τ). Por lo general, está aceptado en la literatura que el ancho temporal es determinado a mitad de altura del perfil de intensidades del campo, siendo la intensidad $I(t) \propto E(t)E(t)^*$. En inglés, para referirse al ancho temporal del pulso se utiliza la abreviación FWHM (full width half maximum).

Existen diferentes funciones que se pueden utilizar para describir la envolvente de un pulso, pero las más comunes son la función gaussiana y la función secante hiperbólica. Esta dos funciones se pueden escribir de la siguiente manera.

Siendo la función gaussiana.

$$f(t) = E_0 \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau_G}\right)^2\right) \quad (2.7)$$

y la función secante hiperbólica.

$$f(t) = E_0 \operatorname{sech}\left(\frac{t}{\tau_G}\right) \quad (2.8)$$

El parámetro E_0 determina la máxima amplitud del campo eléctrico. Por otro lado, el parámetro τ_G , está relacionado con el ancho temporal a mitad de altura τ (FWHM). Para el pulso gaussiano $\tau_G = \frac{\tau}{\sqrt{2\ln(2)}}$ y para el pulso hiperbólico $\tau_G = \frac{\tau}{1,76}$.

En esta tesis trabajaremos, en determinados casos, con otra función para describir al pulso. Esta función es $\sin^2\left(\frac{\pi t}{1,456\tau}\right)$. Aunque es una función periódica, es útil para realizar los cálculos, ya que permite hacer coincidir la ventana de

simulación con los puntos donde la función se anula.

Como el pulso posee un determinado ancho temporal no es posible asignarle una única frecuencia ω , sino que el mismo está compuesto de muchas frecuencias. A estas frecuencias, se las denomina el contenido espectral del pulso. Existe una relación matemática muy conocida entre el contenido espectral del pulso y su función $f(t)$, esta relación es la TF, dada en las ecuaciones (2.5) y (2.6). De forma equivalente al ancho temporal τ del pulso, se le puede asignar al contenido espectral del pulso un ancho espectral a mitad de altura $\delta\omega$, definido como FWHM de la función $|\tilde{E}(\omega)|$, siendo esta función la TF de $f(t)$.

A través de la TF, se puede obtener una relación muy importante entre el ancho temporal τ y el ancho espectral $\delta\omega$ del pulso. Esta relación se puede escribir como:

$$\tau\delta\omega \geq 2\pi c_r \quad (2.9)$$

Siendo c_r una constante que depende del tipo de función utilizada para describir al pulso. Para la función gaussiana $c_r = 0,441$ y para la función secante hiperbólica $c_r = 0,315$. La anterior relación tiene las siguientes consecuencias: si un pulso posee un determinado ancho espectral $\delta\omega$, el ancho temporal del pulso está limitado. En otras palabras, el pulso no puede ser temporalmente más corto que el límite dado por la ecuación (2.9). Cuando el pulso se encuentra en su mínimo ancho temporal, se dice que está en el "límite de Fourier". Para los casos prácticos, un pulso está en el límite de Fourier cuando no posee chirp.

Otra cuestión interesante que se desprende de la ecuación (2.9), es que se la puede asociar al principio de incerteza de Heisenberg. Pero es de destacar, que el principio de Heisenberg es un fenómeno cuántico y la ecuación (2.9) es de naturaleza ondulatoria *clásica*, por lo que a veces en la literatura se suele interpretar de forma errónea a la ecuación anterior.

2.3. Propagación en medios dieléctricos

Cuando un paquete de ondas electromagnéticas se propaga por un medio dieléctrico, se presupone que la componente magnética de la onda no interactúa

con el medio (su amplitud es mucho menor que la del campo eléctrico), por lo que solamente el campo eléctrico \vec{E} es afectado por el mismo. La interacción entre el medio y el campo eléctrico puede describirse por medio del vector densidad de polarización \vec{P} y de la susceptibilidad eléctrica χ . Esta relación para el caso mas simple, en donde el medio es isotrópico, homogéneo, lineal y no dispersivo puede escribirse como $\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}$, siendo ϵ_0 la permitividad eléctrica del vacio.

En esta sección, se estudiará el caso en donde el medio es dispersivo y no lineal. Para este caso, podemos escribir la ecuación de propagación del campo eléctrico en el medio como:

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \vec{E}(x, y, z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(x, y, z, t) \quad (2.10)$$

Siendo c la velocidad de la luz y μ_0 la permeabilidad magnética del vacio. Por otro lado, es conveniente reescribir a \vec{P} de la siguiente forma:

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL} \quad (2.11)$$

Esta descomposición permitirá trabajar por separado la parte lineal \vec{P}^L y la parte no lineal \vec{P}^{NL} de la polarización.

2.3.1. Medios dispersivos lineales

Un medio dispersivo se caracteriza por tener una susceptibilidad eléctrica $\chi = \chi(\omega)$, indice de refracción $n(\omega)$ y una velocidad de propagación en el medio $v(\omega) = \frac{c}{n(\omega)}$ dependiente de la frecuencia. Esta dependencia ocurre en el dominio de Fourier o de frecuencias. En el dominio temporal significa que hay una relación de causalidad entre \vec{P} y \vec{E} , en otras palabras la respuesta del medio al campo eléctrico no es instantánea.

Para analizar la propagación de un campo eléctrico en un medio dispersivo, vamos a suponer que el campo eléctrico está polarizado linealmente y se propaga en la dirección z como una onda plana (el campo es uniforme en la dirección transversal x, y). De esta manera, se puede reducir la ecuación (2.10) a la siguiente

expresión.

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)E(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^L(z, t) \quad (2.12)$$

La relación entre el campo eléctrico y la polarización, en el dominio temporal, para un medio dispersivo esta dada por la siguiente expresión.

$$P^L(t, z) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^t \chi(t') E(z, t - t') dt' \quad (2.13)$$

Esta integral de convolución, indica el carácter no instantáneo de la respuesta del material al campo eléctrico. Trabajar con esta expresión en los casos prácticos no es sencillo, por lo que es conveniente trabajar en el dominio de Fourier . Por lo tanto, podemos reescribir la ecuación (2.13) mediante la TF como:

$$\tilde{P}^L(\omega, z) = \epsilon_0 \chi(\omega) \tilde{E}(\omega, z) \quad (2.14)$$

Siendo $\tilde{P}(\omega, z)$, $\tilde{E}(\omega, z)$ y $\chi(\omega)$ las respectivas TF de la polarización P , el campo eléctrico E y la susceptibilidad χ . Teniendo en cuenta esta expresión y tomando la TF de la ecuación diferencial (2.12), llegamos a la siguiente expresión para la propagación de un campo eléctrico en un medio dispersivo:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\omega)\right) \tilde{E}(\omega, z) = 0 \quad (2.15)$$

En la anterior ecuación hemos introducido la constante dieléctrica, que en términos de la susceptibilidad se expresa como:

$$\epsilon(\omega) = (1 + \chi(\omega)) \quad (2.16)$$

Para una constante dieléctrica real, la solución en la dirección de propagación $+z$, toma la siguiente forma:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, 0) e^{-ik(\omega)z} \quad (2.17)$$

Donde la constante de propagación $k(\omega)$ queda determinada por la siguiente

relación de dispersión.

$$k^2(\omega) = \frac{\omega^2}{c^2} n^2(\omega) \quad (2.18)$$

Para hacer simplificaciones adicionales sobre la ecuación (2.12), vamos a desarrollar en serie de Taylor, alrededor de ω_0 , la constante de propagación $k(\omega)$.

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \frac{dk}{d\omega} \Big|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \frac{d^2k}{d\omega^2} \Big|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots = k_0 + \delta k \quad (2.19)$$

De esta manera, podemos reescribir la ecuación (2.17) como:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, 0) e^{-ik(\omega_0)z} e^{-i\delta k z} \quad (2.20)$$

En este punto, vamos a hacer una aproximación ya utilizada en la ecuación (2.2). Esta vez, la aproximación se realizará sobre la propagación del pulso sobre el eje z . Supondremos que el espectro de Fourier del campo está centrado alrededor del vector de onda k_0 y que es solo apreciable alrededor de un intervalo pequeño Δk , en comparación con k_0 .

Redefiniendo la ecuación (2.20), como:

$$\tilde{\varepsilon}(\omega', z) = \tilde{E}(\omega, 0) e^{-i\delta k z} \quad (2.21)$$

Donde $\omega' = \omega + \omega_0$. La anterior aproximación nos indica, que la nueva amplitud definida del pulso (2.21), varía muy poco cuando viaja una distancia comparable con la longitud de onda $\lambda_0 = \frac{2\pi}{k_0}$. El mismo resultado, se puede obtener de manera equivalente, por medio de la siguiente desigualdad.

$$\left| \frac{d}{dz} \tilde{\varepsilon}(\omega', z) \right| \ll k_0 \left| \tilde{\varepsilon}(\omega', z) \right| \quad (2.22)$$

La aproximación anterior es muy conocida, se la suele conocer por sus siglas en inglés SVEA (slowly varying envelope approximation).

Podemos escribir ahora la ecuación para el campo eléctrico $E(t, z)$, por medio

de la TF de la ecuación (2.20) y la ecuación (2.21), como:

$$E(t, z) = \varepsilon(t, z)e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} \quad (2.23)$$

Donde, $k(\omega_0) = k_0$ y $\varepsilon(t, z)$ es la TF de $\tilde{\varepsilon}(\omega', z)$. Para simplificar la ecuación diferencial 2.12, vamos a desarrollar en serie de Taylor la función dieléctrica $\epsilon(\omega)$ alrededor de ω_0 . Por lo que podemos escribir la ecuación (2.14) de la siguiente forma:

$$\tilde{P}^L(\omega, z) = (\epsilon(\omega_0) - \epsilon_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n!} \frac{d^n \epsilon}{d\omega^n} \Big|_{\omega_0}) \tilde{E}(\omega, z) \quad (2.24)$$

Podemos escribir la ecuación anterior en el dominio temporal como:

$$P^L(t, z) = ((\epsilon(\omega_0) - \epsilon_0)\varepsilon(t, z) + \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{\epsilon^{(n)}(\omega_0)}{n!} \frac{\partial^n}{\partial t^n} \varepsilon(t, z)) e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} \quad (2.25)$$

Donde $\epsilon^{(n)}(\omega_0) = \frac{d^n \epsilon}{d\omega^n} \Big|_{\omega_0}$. De esta manera, reemplazando el campo eléctrico $E(t, z)$ y la polarización $P^L(t, z)$ en la ecuación de onda (2.12) y por medio de las relaciones (2.23) y (2.25), llegamos a la siguiente expresión:

$$\frac{\partial}{\partial \xi} \varepsilon - \frac{i}{2} k_0'' \frac{\partial^2}{\partial \eta^2} \varepsilon + \varsigma = -\frac{i}{2k_0} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{2}{v_g} \frac{\partial}{\partial \eta} \right) \varepsilon \quad (2.26)$$

Sobre la ecuación diferencial anterior, hemos realizado el siguiente cambio de variables para la coordenada espacial z y temporal t .

$$\xi = z \quad \eta = t - \frac{z}{v_g} \quad (2.27)$$

Donde las diferentes derivadas parciales queden expresadas como:

$$\frac{\partial}{\partial \xi} = \frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial \eta} \quad \frac{\partial}{\partial \eta} = \frac{\partial}{\partial t} \quad (2.28)$$

Este sistema de coordenadas se *mueve* con la velocidad de grupo v_g , definida como, $v_g = \left(\frac{dk}{d\omega} \Big|_{\omega_0} \right)^{-1}$.

La cantidad ς , en la ecuación (2.26), contiene términos dispersivos de orden

$n \geq 3$. El término dispersivo de orden $n = 2$ es muy importante, se lo suele conocer en la literatura como GVD (por sus siglas en ingles Group Velocity Dispersion) y queda expresado a continuación como:

$$k_0'' = \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} |_{\omega_0} = -\frac{1}{v_g^2} \frac{dv_g}{d\omega} |_{\omega_0} \quad (2.29)$$

Para simplificar la ecuación de onda (2.26), utilizaremos la aproximación SVEA sobre el termino del lado derecho de la ecuación. Para este caso la aproximación nos queda:

$$\left| \frac{1}{k_0} \left(\frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{2}{v_g} \frac{\partial}{\partial \eta} \right) \varepsilon \right| \ll |\varepsilon| \quad (2.30)$$

Por otro lado, despreciamos los términos dispersivos de orden $n \geq 3$, ya que estos términos, para una gran cantidad de problemas pueden despreciarse. De esta manera, se llega a la siguiente ecuación de onda reducida.

$$\frac{\partial}{\partial \xi} \varepsilon(\xi, \eta) - \frac{i}{2} k_0'' \frac{\partial^2}{\partial \eta^2} \varepsilon(\xi, \eta) = 0 \quad (2.31)$$

Esta ecuación, representa la evolución de un pulso óptico propagándose por un medio dispersivo sin pérdidas, caracterizado por la GVD del medio. Es de destacar la similitud entre la ecuación (2.31) y la ecuación de Schrödinger unidimensional.

Un pulso óptico propagándose en un medio dispersivo sufre una *deformación* en su estructura temporal. Para el caso en que el medio dispersivo quede únicamente caracterizado por el parametro GVD, las distintas frecuencias contenidas dentro del pulso viajan a diferentes velocidades. Esto genera un alargamiento o compresión del pulso (cambia el parámetro τ). La compresión o alargamiento, depende del estado inicial del pulso y/o el signo de la dispersión. La figura 2.5 muestra un ejemplo de un pulso propagándose en un medio dispersivo. Inicialmente el pulso esta limitado por TF y es ensanchado a medida que atraviesa un medio de longitud z .

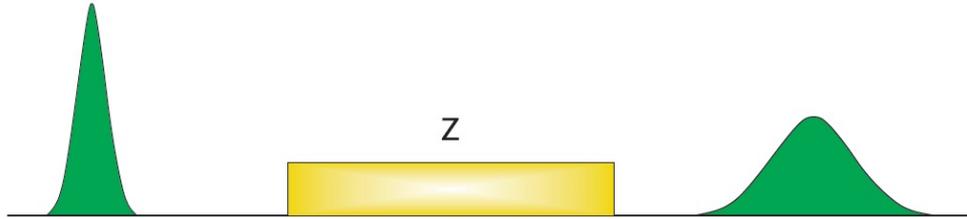


Figura 2.5: Ensanchamiento de un pulso antes y después de atravesar un medio dispersivo de longitud z .

2.3.2. Medios ópticos, interacción no-lineal

En esta sección, vamos a considerar la propagación de un pulso a través de un medio óptico. El pulso está linealmente polarizado y el material es isotrópico, homogéneo y no dispersivo. Vamos a suponer que la intensidad o amplitud del campo eléctrico es suficientemente grande, tal que permita la modificación de las propiedades ópticas a medida que el pulso se propaga.

Estas modificaciones sobre el material, dada por la interacción con el campo eléctrico, pueden expresarse (lejos de frecuencias de resonancia), por medio de una polarización P^{NL} que no depende linealmente con el campo eléctrico E . Esta dependencia, la podemos escribir por medio de un desarrollo en serie como:

$$P^{NL} = \epsilon_0 \chi(E) E = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \dots + \epsilon_0 \chi^{(n)} E^n \dots \quad (2.32)$$

A cada término de la expansión en serie de la ecuación anterior, se le puede asignar una polarización P de orden n , de tal forma que, $P^{(n)} = \epsilon_0 \chi^{(n)} E^n$. Las diferentes cantidades $\chi^{(n)}$, se las conoce como susceptibilidad de orden n . Donde el primer término $\chi^{(1)}$, que no se encuentra en la ecuación (2.23), es la susceptibilidad para el caso de interacción lineal.

Por otro lado, asumiremos que la respuesta del medio al campo eléctrico es instantánea. La polarización al instante $t = t_0$, depende del campo en $t = t_0$. Esta suposición es acertada para los efectos no lineales que provengan de naturaleza electrónica. En este caso y lejos de frecuencias de resonancia, los pulsos pueden poseer duraciones temporales del orden de $10^{-14} s$. Para los casos en donde el

efecto no-lineal sea de origen molecular (vibraciones moleculares), los tiempos de respuestas son más largos y para trabajar con pulsos de femtosegundos, es necesario realizar una integral de convolución entre P y E .

Los distintos ordenes de la polarización $P^{(n)}$, dan origen a diferentes fenómenos ópticos no lineales. Para $P^{(2)}$ (procesos no-lineales de segundo orden), ocurre el fenómeno de la generación de segundo armónico. En donde, al interactuar el pulso de frecuencia ω_0 con el medio, se origina un nuevo pulso que posee una frecuencia $2\omega_0$. También a este orden, se manifiesta el fenómeno denominado rectificación óptica, en donde se generan campos eléctricos cuasi-estáticos. Por otra lado, al "sumar" (el principio de superposición deja de tener validez) pulsos de diferentes frecuencias ω_1 y ω_2 , se origina un pulso nuevo que posee una nueva frecuencia ω_3 . Esto da origen, a dos nuevos fenómenos llamados en inglés parametric up-conversion y parametric down-conversion, en donde $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ y $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ respectivamente.

La polarización de tercer orden $P^{(3)}$, da origen, entre otros fenómenos, a la generación de tercer armónico y al efecto Kerr. Como en la generación de segundo armónico, la generación de tercer armónico genera un pulso de frecuencia $3\omega_0$, partiendo de un pulso con frecuencia original ω_0 . El efecto Kerr, origina un cambio del índice de refracción del material al aplicarle un campo eléctrico externo. Este efecto origina varios tipos de fenómenos, pero en esta tesis solo discutiremos la automodulación de fase (en inglés self phase modulation SPM). La SPM es un cambio temporal de la fase $\phi(t)$ del pulso, a medida que se propaga por el medio.

Para estudiar la propagación de un pulso en un medio óptico no-lineal, utilizaremos la ecuación de onda reducida (2.31) y le agregaremos el cambio temporal de la polarización no-lineal P^{NL} . Por lo que se obtiene la siguiente ecuación:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z}\varepsilon - \frac{i}{2}k_0''\frac{\partial^2}{\partial t^2}\varepsilon\right)e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} = i\frac{\mu_0}{k_0}\frac{\partial^2}{\partial t^2}P^{NL} \quad (2.33)$$

Para simplificar las ecuaciones utilizaremos sobre P^{NL} , la misma aproximación realizada en la ecuación (2.2). Para ahorrar notación, llamaremos a $P^{NL} = P$. De esta manera, podemos escribir a P a través de una envolvente y una frecuencia portadora como $P = \tilde{P}e^{i\omega_0 t}$.

El termino del lado derecho de la ecuación (2.33), se puede entonces reescribir

como:

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2}(\tilde{P}e^{i\omega_0 t}) = \left(\frac{\partial^2}{\partial t^2}\tilde{P} + 2i\omega_p\frac{\partial}{\partial t}\tilde{P} - \omega_0^2\tilde{P}\right)e^{i\omega_0 t} \quad (2.34)$$

En este punto utilizaremos la aproximación en la cual, la envolvente de la polarización varia muy poco en relación a su periodo temporal T . Esto quiere decir que $\omega_0\tau_0 = 2\pi\tau_0/T \gg 1$. Bajo esta aproximación los dos primeros términos (los términos que contienen las derivadas temporales) pueden ser despreciados en relación a $\omega_0^2\tilde{P}$. Esta aproximación simplifica enormemente la resolución de la ecuación (2.33).

Cuando un pulso, de suficiente intensidad, se propaga sobre un material transparente, el índice de refracción depende no linealmente del campo propagado (se desprende del efecto Kerr). Esta dependencia, a primer orden se puede escribir como:

$$n = n_0 + n_2 I(t) \quad (2.35)$$

El parámetro n_2 se lo suele llamar coeficiente de índice de refracción no-lineal. Este parámetro determina que tan fuerte es el acoplamiento entre el campo eléctrico y el índice de refracción. Como ya hemos mencionado antes, el origen de este cambio puede provenir de diferentes fenómenos físicos. Como una regla general, a una gran no-linealidad (alto valor del coeficiente n_2) se le suele asociar un alto tiempo de respuesta del material. Por ejemplo, los vidrios poseen n_2 del orden de $10^{-16} \text{cm}^2/W - 10^{-15} \text{cm}^2/W$ y tiempos de respuesta del material del orden de $10^{-15} \text{s} - 10^{-14} \text{s}$. Para el caso de los procesos de origen molecular, como puede ser la molécula de CS_2 , $n_2 = 10^{-12} \text{cm}^2/W$ y posee un tiempo de respuesta de 10^{-12}s . El coeficiente no-lineal n_2 puede ser escrito en función de una no-linealidad de tercer orden. Al incidir un pulso sobre un material, la polarización se puede escribir como:

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 = \epsilon_0 \chi^{(3)} \left(\frac{3}{8} \epsilon^2 \epsilon e^{i\omega_0 t} + \frac{1}{8} \epsilon^3 e^{3i\omega_0 t} \right) \quad (2.36)$$

El término que posee una frecuencia $3\omega_0$ en la exponencial, corresponde a la generación de tercer armónica. Este término se puede despreciar para ciertos

materiales ópticos, por lo que no se tendrá en cuenta en nuestro estudio. De la ecuación anterior, se puede relacionar la susceptibilidad de tercer orden con la variación del índice de refracción con la intensidad. Por lo que podemos escribir a n_2 como:

$$n_2 = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{\epsilon_0 c n_0^2} \quad (2.37)$$

La relación anterior se obtiene teniendo en cuenta la definición del índice de refracción $n = (1 + \chi)^{\frac{1}{2}}$. La dependencia del índice de refracción n con la intensidad origina, por un lado, un pulso con chirp (variación temporal), este fenómeno es el ya mencionado SPM. Por otro lado, existe una variación espacial en el frente de onda del pulso mediante un *efecto de lente*, a esta variación espacial se la conoce como auto-enfoque o en inglés self-focusing. En la mayoría de los casos el auto-enfoque no es deseable, ya que se trata de trabajar con perfiles espacialmente uniformes.

Vamos ahora, a deducir como cambia la fase de un pulso con chirp dado por la SPM. Esta deducción la haremos sobre la ecuación de onda reducida (2.33) despreciando el termino dispersivo k_0'' . Para despreciar este término, es necesario que el pulso se propague dentro del material una distancia $z \ll L_D$, donde L_D es la longitud de dispersión. Esta longitud caracteriza el efecto de la dispersión sobre el pulso y se define como:

$$L_D = \frac{\tau^2}{k_0''} \quad (2.38)$$

Bajo las hipótesis anteriormente mencionadas, podemos escribir la ecuación de onda reducida para el caso de un pulso propagándose en un medio no-lineal de tercer orden como:

$$\frac{\partial}{\partial z} \varepsilon(z, t) = -i \frac{3\omega_0^2 \chi^{(3)}}{8c^2 k_0} \varepsilon^2 \varepsilon = -i \frac{n_2 k_0}{n_0} I \varepsilon \quad (2.39)$$

Donde hemos escrito al cuadrado del campo eléctrico en función de una intensidad *instantánea* I . Para $\chi^{(3)}$ real, sustituyendo $\varepsilon = \tilde{\varepsilon} \exp(i\phi)$ en la ecuación anterior y separando parte real e imaginaria, obtenemos una ecuación para la

envolvente del pulso:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\varepsilon} = 0 \quad (2.40)$$

Y una ecuación para la fase ϕ .

$$\frac{\partial}{\partial z} \phi = -\frac{n_2 k_0}{n_0} I \quad (2.41)$$

Se observa de las dos ecuaciones anteriores, que la envolvente del pulso permanece constante a medida que se propaga el pulso sobre el medio, esto se debe a que se desprecia los efectos dispersivos. Esto permite poder integrar la ecuación (2.41), ya que $\tilde{\varepsilon}(z, t) = \tilde{\varepsilon}(0, t) = \tilde{\varepsilon}_0(t)$. Por lo que se obtiene la solución para la fase $\phi(z, t)$ como:

$$\phi(z, t) = \phi_0(t) - \frac{k_0 n_2}{n_0} z I_0(t) \quad (2.42)$$

Teniendo en cuenta la solución anterior, puede observarse que el cambio de fase depende de la forma del pulso. Como la GVD (medio dispersivo) produce un aumento del ancho del pulso τ , la SPM produce un ensanchamiento espectral del pulso. De esta manera, la SPM puede ser utilizada para obtener pulsos de algunos fs de duración, ya que al ensanchar su espectro en frecuencia (cambia el límite de Fourier) y mediante un medio dispersivo es posible comprimir el pulso. Por otro lado, puede generarse luz supercontinua, que no es ni más ni menos un pulso con un enorme ancho espectral.

Como una caracterización de la *intensidad* del fenómeno de la SPM, es conveniente definir una longitud L_{NL} , denominada longitud de interacción no-lineal. Entonces.

$$L_{NL} = \frac{n_0}{n_2 k_0 I_{0m}} \quad (2.43)$$

Siendo I_{0m} la intensidad pico del pulso.

Capítulo 3

Generación de Armónicos de Alto Orden

3.1. Ionización con campos muy intensos

¿A que nos referimos cuando hablamos de campos láser muy intensos?. La respuesta, solo tiene sentido en la comparación con los sistemas que deseamos estudiar. Tomemos como ejemplo la intensidad del campo eléctrico que experimenta el electrón en un átomo de hidrógeno, debido a la interacción Coulombiana.

$$E_a = \frac{e}{a_0^2} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \simeq 5,1 \cdot 10^{11} V/m \quad (3.1)$$

Este campo eléctrico, corresponde a la primer órbita del átomo de Bohr, siendo e la carga del electrón y a_0 el radio de Bohr.

La intensidad de un campo láser, correspondiente al valor del campo anterior, se puede calcular por la siguiente expresión:

$$I = \frac{1}{2} c \epsilon_0 E^2 \quad (3.2)$$

Siendo c la velocidad de la luz. Esta intensidad es igual a $3,5 \cdot 10^{16} W/cm^2$. Cuando se trabajan con intensidades muy altas superiores a $10^{12} W/cm^2$, aparecen nuevos fenómenos en la interacción radiación materia. Estos fenómenos se originan mayormente, porque los valores de los campos Coulombiano y del láser son del

mismo orden de magnitud. A estas intensidades, deja de tener validez el principio de superposición, por lo que a estos efectos se los conoce como fenómenos no-lineales o de campo fuerte (strong field) [2, 61, 62].

A estas intensidades, se ionizan los átomos o moléculas independientemente de la energía que posean los fotones ($\hbar\omega_0$). Esto contradice la noción *clásica* de ionización [63]. Existen tres tipos de posibilidad de ionizar un átomo utilizando altas intensidades. Estas son: ionización por efecto túnel, ionización multifotónica y ionización por supresión de barrera. Cada uno de estos tres diferentes procesos, depende de la frecuencia ω_0 y amplitud del campo eléctrico E_0 láser, como así también del potencial de ionización I_P del átomo. El primero en unificar estos procesos fue Keldysh [64], introdujo un parámetro llamado parámetro de Keldysh o parámetro adiabático, que se puede escribir como:

$$\gamma = \frac{\omega_0(2mI_P)^{1/2}}{qE_0} = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \quad (3.3)$$

Siendo m y q la masa y carga del electrón, el termino U_P se lo denomina energía ponderomotriz y es un promedio de la energía que adquiere una partícula de masa m y carga q bajo la fuerza de un campo eléctrico oscilante. El parámetro γ determina el régimen de ionización.

En las siguientes sub-secciones, explicaremos los tres procesos de ionización y su relación con el parámetro de Keldysh con más detalle.

3.1.1. Ionización por efecto túnel

El proceso de ionización más importante para la generación de armónicos de alto orden, es la ionización por efecto túnel [14].

Cuando la magnitud del campo eléctrico del láser es comparable al campo Coulombiano del átomo o molécula, se logra una deformación del potencial del núcleo. Esta modificación del potencial atómico, permite que un electrón que se encuentra en una estado ligado, pueda ser ionizado por efecto túnel [61, 65].

Esquemáticamente, el proceso se puede apreciar en la figura 3.1. Originalmente el electrón se encuentra ligado al núcleo como se observa en la figura 3.1a. Cuando el campo láser comienza a actuar (línea punteada), se crea una barrera

de potencial como se observa en la figura 3.1b. Esto permite, bajo cierta probabilidad, que el electrón pase de un estado ligado al estado continuo.

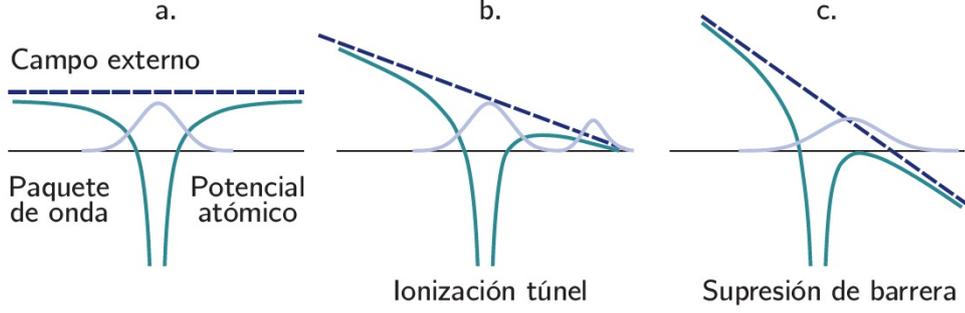


Figura 3.1: Evolución del paquete de onda del electrón, en régimen túnel y por supresión de barrera.

En estas condiciones, es posible estimar un tiempo de ionización. Supongamos que el electrón se encuentra originalmente con una energía de ligadura I_P y en la posición $z = 0$. Cuando el potencial de láser alcanza ese valor, se da la siguiente condición en valor absoluto $I_P = qE_0z$, por lo que podemos escribir la nueva posición del electrón después de la ionización como:

$$z_0 = \frac{I_P}{qE_0} \quad (3.4)$$

Asumimos que el electrón *viaja* a velocidad constante sobre la barrera de potencial, en consecuencia se la puede estimar como, $v_0 = \sqrt{2mI_P}$. De esta manera, podemos obtener el tiempo que el electrón tarda en atravesar la barrera túnel como:

$$\tau_t = \frac{z_0}{v_0} = -i \frac{\gamma}{2\omega_0} \quad (3.5)$$

Donde γ es el parámetro de Keldysh definido en la ecuación (3.3). Este parámetro puede ser escrito, aproximadamente, en función del tiempo túnel τ_t y el periodo del campo del láser T como $\gamma \approx 4\pi |\tau_t| / T$. De la anterior expresión, se puede ver, intuitivamente, que el tiempo túnel τ_t , debe ser mucho menor

el periodo del campo del láser para que el electrón pueda ser ionizado por efecto túnel. Esta condición, asume un campo eléctrico estático en el proceso de ionización. De esta manera, se puede afirmar que el fenómeno de ionización por túnel tiene lugar cuando $\gamma \ll 1$.

3.1.2. Ionización por supresión de barrera

El proceso de ionización por supresión de barrera es similar al de efecto túnel [14]. En este proceso, el campo eléctrico láser al interactuar con el átomo deforma enormemente al potencial del mismo, permitiendo que el electrón escape al estado continuo, ya que no hay estado ligado. Este proceso se puede apreciar en la figura 3.1c, donde se observa que el potencial láser es superior al potencial de ligadura del átomo, lo que origina que el electrón sea ionizado sin la necesidad de atravesar una barrera túnel.

3.1.3. Ionización multifotónica

La ionización de átomos o moléculas, en donde deja de tener validez el proceso de absorción de fotones propuesto por Einstein, esto es, cuando la ionización cumple la condición $I_P < \hbar\omega_0$, donde I_P es el potencial de ionización y $\hbar\omega_0$ es la energía del fotón, se denomina proceso de absorción no-lineal [61].

La ionización multifotónica, consiste en la absorción de varios fotones, "simultáneamente", para generar una transición entre un estado ligado y un estado del continuo. Este proceso de ionización es no-lineal y cumple la condición $\hbar\omega_0 < I_P$. Para lograr este proceso, el electrón debe absorber un número entero de fotones, es decir $I_P < N\hbar\omega_0$, siendo N entero [63, 66, 67].

Este tipo de absorción, no solo puede producir una ionización, sino que también tiene lugar en transiciones internas entre estados ligados donde se cumple la siguiente relación $N\hbar\omega_0 = E_f - E_i$, expresión que difiere del postulado de Bohr $\hbar\omega_0 = E_f - E_i$. La posibilidad que se viole el postulado de Bohr, la fundamenta el principio de incerteza de Heisenberg, el cual en unidades atómicas queda expresado como $\Delta E \Delta t \geq 1$. Esta desigualdad permite que se generen estados virtuales en un tiempo Δt , con un intervalo de energías ΔE . En la figura 3.2, a la derecha, se representa un esquema de absorción multifotónica de dos fotones y su estado

virtual, como así también en la imagen de la izquierda, se detalla un esquema del procesos de absorción lineal entre estados ligados.

La ionización multifotónica se logra cuando $\gamma \gg 1$, es decir, el potencial de ionización I_P debe ser mayor a la energía ponderomotriz, esto se alcanza para intensidades bajas o frecuencias altas. De esta manera, quedan bien definidos en términos del parámetro de Keldysh los dos regímenes de ionización por campos láser muy intensos.

Cuando el campo es débil, la razón de ionización (probabilidad de ionización por unidad de tiempo) se da por la siguiente expresión perturbativa.

$$w = \sigma^{(K)} \left(\frac{I}{\omega_0} \right)^K \quad (3.6)$$

Siendo, $\sigma^{(K)}$ la sección transversal multifotónica, que depende de la frecuencia y polarización del láser, como así también de la estructura atómica. El parámetro K , determina el número de fotones que son absorbidos en el proceso multifotónico. Cuando $K = 1$ se describe el efecto fotoeléctrico propuesto por Einstein [68].

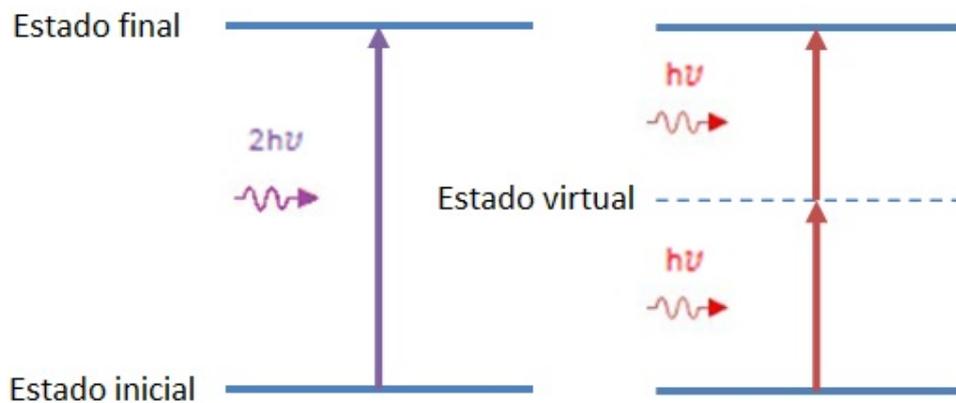


Figura 3.2: Absorción multifotónica de dos fotones.

3.2. Generación de Armónicos de Alto orden en gases nobles

La generación de armónicos de alto orden, en inglés High Harmonics Generation (HHG), es un proceso de interacción radiación-materia altamente no-lineal. Cuando un pulso láser, suficientemente energético, de frecuencia ω_0 es enfocado sobre un sistema gaseoso, se generan fotones con frecuencias impares de la frecuencia de excitación. La energía de estos fotones está dada por $n\hbar\omega_0$, siendo n un entero impar [8, 12].

Generalmente, para obtener radiación armónica se suele emplear sistemas láser de Titanio Zafiro de pocos femtosegundos de duración y algunos mJ de energía, estos láseres suelen trabajar con a longitud de onda central de 800 nm [9]. Los sistemas gaseosos utilizados suelen ser gases nobles (He, Ar, Xe, etc.), que poseen potenciales de ionización elevados, como así también algunos gases moleculares [69, 70]. El rango de intensidades utilizado, depende del gas con el que se trabaje y suele estar entre $10^{13}W/cm^2$ y $10^{15}W/cm^2$. La HHG permite obtener radiación coherente en la región entre los XUV y los rayos X blandos, aunque hoy en día se a alcanzado la región de los rayos X duros, que en términos energéticos se sitúa en los Kev [10, 71].

El espectro característico de la generación de armónicos, consiste en una primera parte denominada perturbativa (armónicos de orden bajo), en la cual el electrón no es ionizado por el láser y se encuentra ligado al núcleo. En esta región la eficiencia decrece exponencialmente con el orden armónico. La siguiente región se denomina meseta o plateau y se caracteriza porque la eficiencia de los armónicos permanece constante. Esta meseta, termina en un punto denominado cut-off, que corresponde a la energía del fotón más energético que se puede obtener. Mas allá de este punto, la eficiencia de la generación de armónicos decrece bruscamente [12, 13, 32]. En la figura 3.3, se observa un esquema de un espectro de armónicos donde se distinguen claramente las regiones anteriormente nombradas.

El fotón de máxima energía o cut-off, esta dado por la siguiente ley.

$$E_{cut-off} = I_P + 3,17U_P \quad (3.7)$$

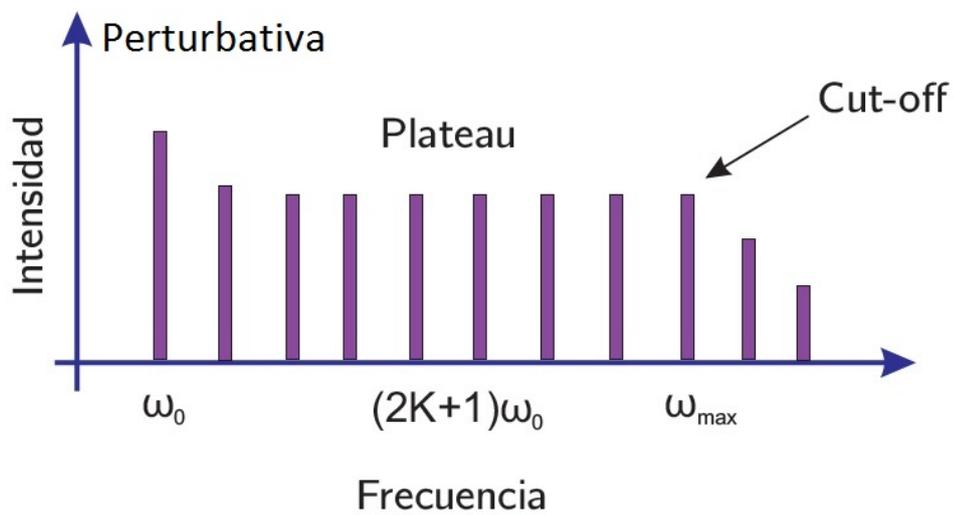


Figura 3.3: Espectro característico de la generación de armónicos de alto orden. En el mismo se pueden identificar tres regiones a medida que aumenta la frecuencia o energía del fotón emitido. La región perturbativa, que se sitúa en los primeros ordenes armónicos, en donde la intensidad decrece exponencialmente. Una región denominada meseta, en donde los armónicos poseen la misma intensidad, hasta finalizar en el cut-off o fotón de máxima energía que se puede obtener.

Siendo I_P el potencial de ionización del átomo y U_P la energía ponderomotriz, que se puede escribir como $U_P \propto I\lambda_0^2$, donde I es la intensidad del láser y λ_0 su longitud de onda [15]. De la anterior relación, se observa que existen dos formas para extender el cut-off en la generación de armónicos. Por un lado, se puede aumentar la intensidad del láser y/o por el otro, se puede aumentar su longitud de onda. Sin embargo, existen limitaciones cuando se desea obtener fotones más energéticos (cut-off). Si se aumenta la intensidad, se puede entrar en el régimen de supresión de barrera. En este régimen, no se dan las condiciones para que se produzca radiación armónica [14]. Por otro lado, un aumento en la longitud de onda origina un brusco decrecimiento de la eficiencia de la radiación emitida. Este decrecimiento está dado por $\lambda_0^{-5,5}$ [72-74]. En las siguientes sub-secciones, se explicará detalladamente los modelos propuestos para describir el fenómeno de la generación de armónicos, por lo que se entenderá mejor lo anteriormente mencionado.

Un esquema de un sistema experimental tipo para la generación de armónicos de alto orden se muestra en la figura 3.4. En el mismo, un láser de pulsos ultracortos (rojo), generalmente en el infrarrojo, es enfocado sobre un jet de gas. Todo el sistema de generación y detección de armónicos debe producirse en una cámara de vacío, ya que la radiación emitida es absorbida por el aire. Luego de generarse la radiación armónica, es necesario colocar un filtro de aluminio para absorber el láser. Una vez filtrada la radiación infrarroja, se colocan redes de difracción para obtener el espectro separado y de esta manera mediante un detector adecuado, se registra la radiación.

3.2.1. Análisis clásico y modelo de los tres pasos

La generación de armónicos de orden bajo (segundo armónico, tercer armónico, etc.), está dada por los diferentes órdenes de la polarización no-lineal, ecuación (2.32). Esto origina, un decrecimiento exponencial de la eficiencia de generación a medida que crece el orden armónico. La generación de armónicos de alto orden es un fenómeno bastante distinto. La característica más peculiar, se encuentra en la región donde la intensidad de los armónicos permanece constante, la llamada meseta o plateau. Esta región, termina en un punto de máxima energía denominado

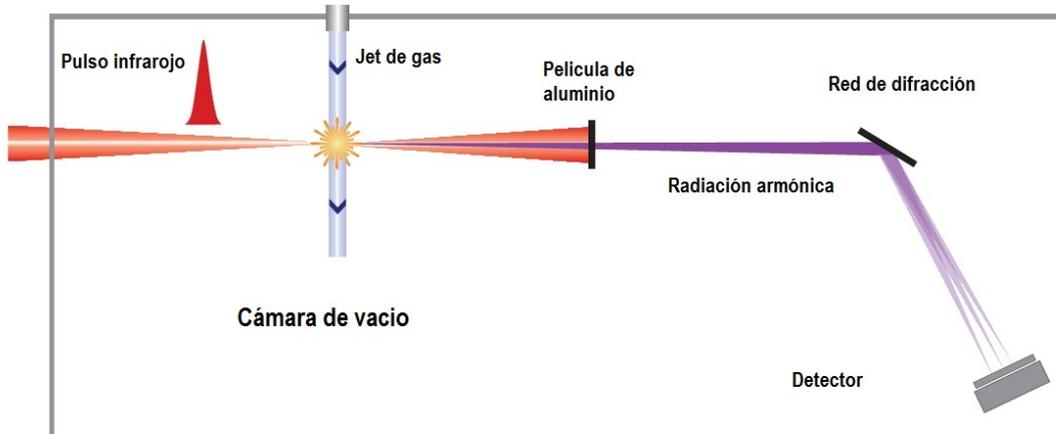


Figura 3.4: Esquema de un dispositivo experimental tipo para la generación y detección de la radiación armónica.

cut-off y está muy bien descrita por la ecuación (3.7).

En 1993 Corkum y por otro lado Kulander y Schafer [14, 15], proponen un modelo muy simple e intuitivo para explicar la HHG. A este modelo, se lo conoce como modelo de los tres pasos (three step model) y es un modelo semi-clásico.

En el primer paso, cuando el campo láser interactúa con el átomo, se produce una deformación del potencial atómico. Esto permite, que el electrón sea ionizado por efecto túnel, por lo que es *lanzado* al continuo con cero energía cinética (ionización). En el segundo paso, el movimiento del electrón en el continuo es gobernado solamente por las leyes clásicas y es afectado únicamente por el campo eléctrico oscilante del láser (aceleración). En el tercer paso, el electrón vuelve a su estado ligado original (por el cambio de dirección en el campo eléctrico), emitiendo un fotón cuya energía es igual a la energía cinética adquirida en el continuo, más el potencial de ionización, I_P , del átomo (recombinación).

La figura 3.5, muestra un esquema del modelo. En la misma, se observan los diferentes pasos a medida que actúa el campo eléctrico del láser sobre el átomo.

Consideremos ahora el campo eléctrico del láser $E(t)$, supondremos que está linealmente polarizado en la dirección z . Por lo que podemos escribirlo de la si-

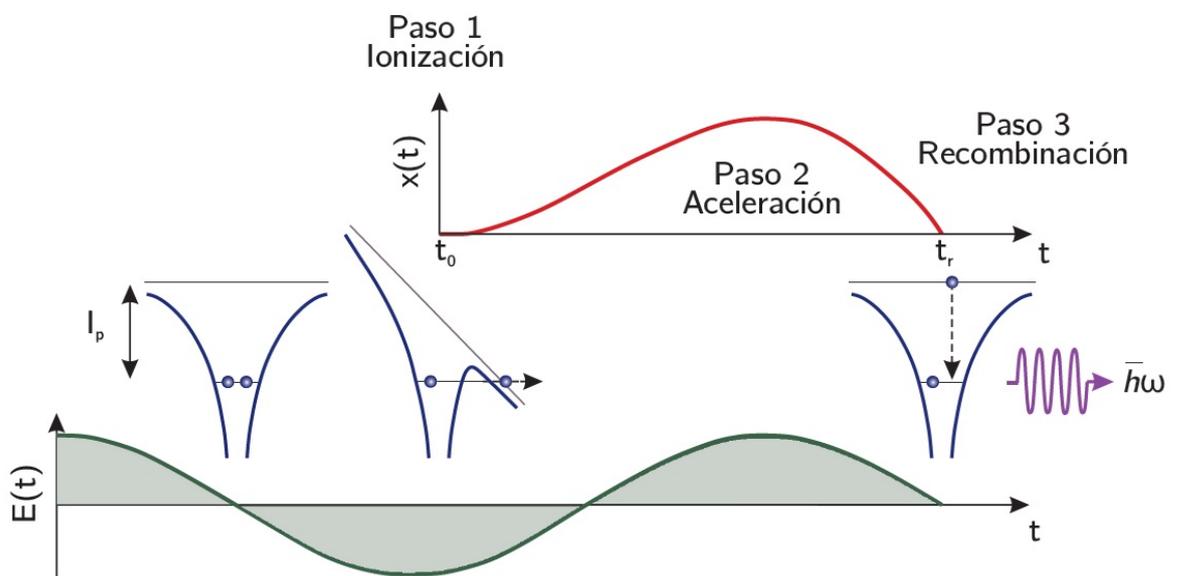


Figura 3.5: Esquema del modelo de los tres pasos. Inicialmente, se observa el potencial sin deformar, luego el láser modifica al potencial creando una barrera que permite la ionización del electrón. La aceleración ocurre en el segundo paso y por ultimo (cuando el campo cambia de dirección) el electrón es recombinado emitiendo un fotón muy energético.

guiente manera:

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \quad (3.8)$$

Donde E_0 y ω_0 , son la amplitud máxima del campo y la frecuencia respectivamente. Consideremos ahora que el electrón es ionizado al tiempo t_0 en la posición $z = 0$. Podemos escribir entonces, la segunda ley de Newton para el electrón bajo la fuerza del campo oscilante como:

$$\ddot{z}(t) = -\frac{eE_0}{m} \cos(\omega_0 t) \quad (3.9)$$

Integrando la ecuación anterior, para un tiempo t , y utilizando la condición $\dot{z}(t_0) = 0$, obtenemos las expresiones para la velocidad y posición del electrón.

$$\dot{z}(t) = -\frac{eE_0}{\omega_0 m} (\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_0)) \quad (3.10)$$

$$z(t) = \frac{eE_0}{\omega_0^2 m} [(\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0)) + (\omega_0 t - \omega_0 t_0) \sin(\omega_0 t_0)] \quad (3.11)$$

Es conveniente reescribir las ecuaciones anteriores en términos de una fase, tal que $\theta = \omega_0 t$. Por lo tanto, obtenemos la siguiente expresión para $z(\theta)$.

$$z(\theta) = \frac{eE_0}{\omega_0^2 m} [(\cos(\theta) - \cos(\theta_0)) + (\theta - \theta_0) \sin(\theta_0)] \quad (3.12)$$

La energía cinética, $E_C(\theta) = \frac{1}{2} m \dot{z}^2(\theta)$, que adquiere el electrón la podemos escribir como:

$$E_C(\theta) = 2U_P (\sin(\theta) - \sin(\theta_0))^2 \quad (3.13)$$

Dado que las trayectorias de los electrones relevantes para la HHG, corresponden a las trayectorias que recombinan o que vuelven al electrón a su estado original, es necesario encontrar las soluciones donde, $z(t) = 0$ ($z(\theta) = 0$). De esta manera, así como definimos un tiempo de ionización t_0 , se define un tiempo de recombinación (o equivalentemente en fase) t_r (θ_r), que es el tiempo al cual el electrón es recombinado. Así, obtenemos la energía del fotón emitido luego de la

recombinación como: $E_C(\theta_r) + I_P$.

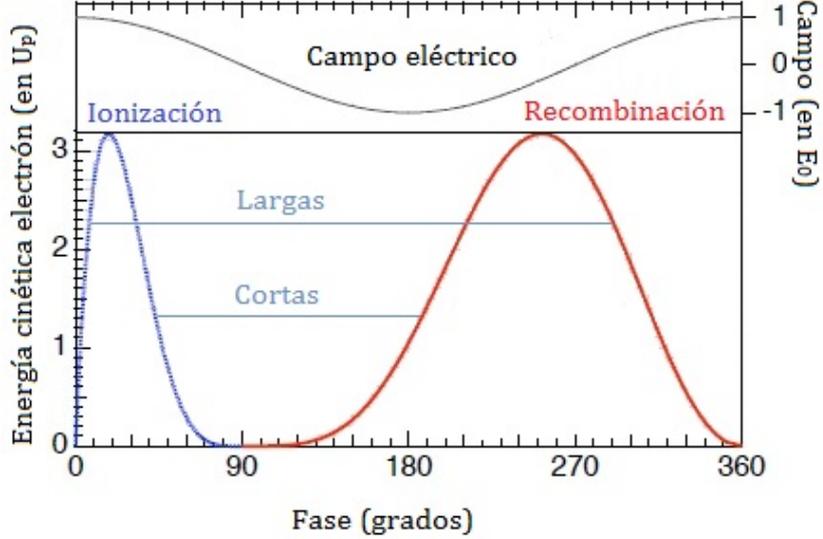


Figura 3.6: Energía cinética del electrón como función de la fase de ionización θ_0 (azul) y la fase de recombinación θ_r (rojo), normalizada a U_P . El campo eléctrico láser (parte superior), se encuentra normalizado a E_0 .

En la figura 3.6, se muestra la energía cinética $E_C(\theta)/U_P$, como función de la fase de ionización θ_0 (azul) y como función de la fase de recombinación θ_r (rojo). Se observa que el electrón recombina, solamente si es ionizado en el intervalo $0 < \theta_0 < \pi/2$. Cuando el electrón es ionizado en el intervalo $\pi/2 < \theta_0 < \pi$, nunca regresa al origen y por lo tanto no genera radiación armónica. El valor máximo de la energía corresponde a $3,17U_P$ y corresponde a las siguientes fases, $\theta_0 = 17^\circ$ y $\theta_r = 255^\circ$. Este modelo explica de manera simple e intuitiva la ley del cut-off o fotón de máxima energía generado en la HHG.

De imponer las soluciones $z(t) = 0$, se obtiene que a cada tiempo de ionización t_0 le corresponde un tiempo de recombinación t_r . Si escribimos explícitamente la ecuación para $z(\theta_0, \theta_r) = 0$ y $E_C(\theta_0, \theta_r)$, obtenemos.

$$(\cos(\theta_r) - \cos(\theta_0)) + (\theta_r - \theta_0)\text{sen}(\theta_0) = 0 \quad (3.14)$$

$$(\text{sen}(\theta) - \text{sen}(\theta_0))^2 = \frac{E_C}{2U_P} \quad (3.15)$$

Las solución de estas ecuaciones implica que a cada valor de la energía por debajo de $3,17U_P$, le corresponden dos soluciones de z . Esto quiere decir, que existen dos trayectorias que originan la misma energía cinética al momento de recombinarse. Estas trayectorias se las conoce como trayectorias cortas y trayectorias largas. En la figura 3.6, se muestran estas diferentes soluciones de z , que dan la misma energía cinética. Por otro lado, también se puede apreciar que existe una única trayectoria que al momento de recombinarse da la máxima energía (cut-off). Las trayectorias largas, están dadas para los siguientes intervalos de ionización-recombinación $0^\circ < \theta_0 < 17^\circ$, $255^\circ < \theta_r < 360^\circ$, mientras que las trayectorias cortas para los intervalos $17^\circ < \theta_0 < 90^\circ$, $90^\circ < \theta_r < 255^\circ$.

Veamos ahora una explicación simple, a través de este modelo, de porque los armónicos poseen frecuencias impares de la frecuencia fundamental. Si (θ_0, θ_r) , es solución de las ecuaciones (3.14) y (3.15), $(\theta_0 + m\pi, \theta_r + m\pi)$ también lo es, siendo m un número entero. Podemos escribir que: $z_m(\theta) = (-1)^m z_{m=0}(\theta - m\pi)$, esto quiere decir que los armónicos son emitidos cada medio ciclo del láser con fases alternadas (dirección del campo). Podemos escribir entonces para el campo eléctrico armónico E_h , la siguiente expresión:

$$E_h(t) = \dots + F_h(t+2\pi/\omega_0) - F_h(t+\pi/\omega_0) + F_h(t) - F_h(t-\pi/\omega_0) + F_h(t-2\pi/\omega_0) - \dots \quad (3.16)$$

Donde F_h son los campos armónicos emitidos cada medio ciclo. Tomando la transformada de Fourier de la ecuación anterior, se puede ver que el espectro de armónicos está compuesto de frecuencias impares de la frecuencia original [75].

3.2.2. Aproximación de campo fuerte y modelo de Lewenstein

El modelo visto en la sección anterior, es un modelo semi-clásico de la HHG. Como la HHG es un fenómeno cuántico, es necesario un formalismo que lo contenga. Por otro lado, la radiación emitida por un átomo es proporcional a la TF

del momento dipolar atómico $x(t) = \langle \Psi(r, t) | z | \Psi(r, t) \rangle$, por lo que es necesario encontrar esta expresión para obtener un espectro de armónicos *real*. En esta sección se presentará un modelo cuántico propuesto por Lewenstein en 1994 [16], el mismo sirve para explicar la generación de armónicos y encontrar una expresión para $x(t)$. El modelo se basa en la aproximación de campo fuerte (strong field approximation, SFA) [76], que es una aproximación sobre los sistemas cuánticos que interactúan con campos láser muy intensos.

Antes de interactuar el láser con el átomo, este se encuentra ligado al núcleo con un potencial de la forma $V(r) \sim -1/r$. Si suponemos que el láser está polarizado en la dirección z y su longitud de onda es lo suficientemente grande para utilizar la aproximación dipolar, podemos escribir entonces la ecuación de Schrödinger (en u.a.), en el *gauge de Length* [77] como:

$$\frac{\partial}{\partial t} |\Psi(r, t)\rangle = \left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V(r) + zE(t)\right] |\Psi(r, t)\rangle \quad (3.17)$$

La ecuación anterior describe la física de un solo electrón, pero generalmente los átomos utilizados en la HHG poseen varios electrones. La aproximación anterior, se denomina en inglés Single-Active-Electron Approximation (SAE). Esta aproximación es válida para la HHG, ya que solamente un electrón es ionizado, mientras que el resto permanece fuertemente ligado al núcleo.

La SFA asume tres suposiciones sobre el sistema y su interacción:

- El átomo es descrito por un solo estado ligado, el estado $|0\rangle$. Las interacciones entre estados ligados resonantes debe ser evitadas. Esto implica que el potencial de ionización I_P , debe ser mucho más grande que la energía de los fotones del láser, $\hbar\omega_0$.
- La ionización debe ser débil. La intensidad del láser debe estar por debajo de la intensidad de saturación del átomo.
- En el continuo, el electrón no debe ser influenciado por el potencial del átomo $V(r)$. Para lograr esto, es necesario que la energía ponderomotriz U_P , sea más grande que el potencial de ionización del átomo, I_P .

Teniendo en cuenta las consideraciones anteriores, podemos escribir el estado

$|\Psi(r, t)\rangle$, como una expansión en una base que contiene al estado ligado y a los estados del continuo como:

$$|\Psi(r, t)\rangle = (a(t) |0\rangle + \int_0^\infty d^3\mathbf{q} b(\mathbf{q}, t) |\mathbf{q}\rangle) e^{iI_P/\hbar} \quad (3.18)$$

Siendo \mathbf{q} el momento cinético, $a(t)$ la amplitud del estado ligado y $b(\mathbf{q}, t)$ las amplitudes de los diferentes estados del continuo. Si introducimos el estado definido por la ecuación (3.18), en la ecuación de Schrödinger (3.17) y hacemos simplificaciones utilizando la SFA, llegamos a la siguiente ecuación para el momento dipolar dependiente del tiempo.

$$x(t) = i \int_{-\infty}^t dt' \int d^3\mathbf{p} d^*(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) \cdot \exp(-iS(\mathbf{p}, t, t')) E(t') d(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')) \quad (3.19)$$

Donde \mathbf{p} es el momento canónico, $\mathbf{A}(t) = -\int \mathbf{E}(t) dt$, $d(\mathbf{p})$ el elemento de matriz de la transición dipolar y $S(\mathbf{p}, t, t')$ la acción semi-clásica, definida como:

$$S(\mathbf{p}, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left(\frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'')]^2}{2} + I_P \right) \quad (3.20)$$

La interpretación física que se puede obtener de la ecuación (3.19), corresponde de manera directa con el modelo de los tres pasos. Si recorremos la ecuación de derecha a izquierda, a través del término $E(t') d(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'))$ se observa que el electrón es ionizado al tiempo t' . Entre t' y t , el electrón se mueve clásicamente, esto queda representado por medio de la acción $S(\mathbf{p}, t, t')$. Por último, el término $d^*(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))$ representa la recombinación al tiempo t .

El espectro de armónicos es proporcional a la TF del dipolo dependiente del tiempo $x(t)$, que se puede escribir como:

$$\hat{x}(\omega_h) = i \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^t dt' \int d^3\mathbf{p} d^*(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) \cdot \exp(i\omega_h t - iS(\mathbf{p}, t, t')) E(t') d(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')) \quad (3.21)$$

Resolver la integral anterior no es sencillo, la misma que posee 5 dimensiones, \mathbf{p} , t , t' . Para hacerlo se utilizó el método de saddle-point (punto silla). Este

método considera una expansión en Taylor (sobre \mathbf{p} , t , t') del argumento de la exponencial, para luego igualar a cero la primera derivada. Esto nos lleva a las siguientes ecuaciones:

$$p(t - t') + \int_{t'}^t A(t'') dt'' = 0 \quad (3.22)$$

$$\frac{(p + A(t'))^2}{2} = -I_P \quad (3.23)$$

$$\frac{(p + A(t))^2}{2} = \omega_h - I_P \quad (3.24)$$

Las trayectorias que se desprenden de las ecuaciones (3.22), (3.23) y (3.24), se las conocen como *quantum orbits* [77]. Si escribimos el momento cinético como $q = p + A(t)$ (velocidad), podemos reescribir la ecuación (3.22), como $\int_{t'}^t q(t'') dt'' = 0$. Esto indica que el electrón aparece en el continuo y es recombinado en su misma posición. Las ecuaciones (3.23) y (3.24) las podemos reescribir como $\frac{(q(t))^2}{2} - \frac{(q(t'))^2}{2} = \omega_h$ y representa la conservación de la energía en el proceso de radiación armónica. La interpretación de la ecuación (3.23) es más complicada, ya que posee un elemento complejo, a la parte imaginaria de t' , se la suele atribuir como un tiempo túnel.

Por otro lado, si de las ecuaciones anteriores reemplazamos I_P por cero y ω_h por la E_C , obtenemos la ecuaciones (3.14) y (3.15) propuestas en el modelo clásico de los tres pasos. Lewenstein para el fotón de máxima energía (cut-off), obtiene la siguiente expresión.

$$E_{cut-off} = 3,17U_P + gI_P \quad (3.25)$$

Siendo $g \sim 1,3$, esta pequeña discrepancia puede estar dada por la distancia entre el núcleo y la posición donde el electrón es ionizado por túnel.

3.2.3. Ecuación de Schrödinger 1-D y 3-D

Cuando se describe la dinámica de un electrón en la HHG, se puede asumir que el movimiento de este se encuentra sobre la dirección de polarización del láser, z .

De esta manera, es aceptable trabajar con la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo en una dimension (1D-TDSE), que se puede escribir como:

$$i \frac{\partial \Psi}{\partial t} = H(t) \Psi(z, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{\text{átomo}}(z) + V_{\text{láser}}(z, t) \right] \Psi(z, t) \quad (3.26)$$

Para modelar el átomo unidimensional, se utiliza el potencial conocido como *Soft Coulomb* [77], el cual se escribe:

$$V_{\text{átomo}}(z) = \frac{-1}{\sqrt{z^2 + a^2}} \quad (3.27)$$

Este potencial posee la ventaja de no tener singularidades, por lo que hace más fácil su resolución numérica. El termino a^2 se ajusta de tal manera, que permita modelar los diferentes átomos (Ar, Xe, He, Ne...) a través del potencial de ionización I_P . Este potencial fue introducido por primera vez por Su y Eberly [78], y se utiliza frecuentemente en el análisis de átomos en una dimension. El potencial del láser, se escribe en la aproximación dipolar como:

$$V_{\text{láser}}(z) = -\vec{E}(t) \cdot \vec{r} = -E_0 f(t) z \text{sen}(\omega_0 t) \quad (3.28)$$

La función $f(t)$, es la envolvente del pulso y por lo general es una función Gaussiana, pero para realizar los cálculos se pueden utilizar otras funciones (sección 2.2.1).

Antes de que el átomo interactue con el láser, el estado inicial del sistema es el estado fundamental $\Psi_0(z, 0)$. Este estado, es una solución del siguiente problema de autovalores:

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{\text{átomo}}(z) \right] \Psi(z, 0) = \xi \Psi(z, 0) \quad (3.29)$$

Siendo ξ , la energía del electrón. Una vez encontrado el estado fundamental, es necesario resolver la ecuación (3.26), para encontrar $\Psi_0(z, t)$. El espectro de armónicos se obtiene por medio de la *TF* de la aceleración dipolar $D(\omega)$ [77, 79],

que se escribe como:

$$D(\omega) = \left| \frac{1}{\tau_1} \frac{1}{\omega^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} a(t) \right|^2 \quad (3.30)$$

Siendo τ_1 la duración total del pulso. La aceleración dipolar, se puede escribir por medio de la siguiente relación de conmutación:

$$a(t) = \frac{d^2 \langle z \rangle}{dt^2} = \langle \Psi(r, t) | [H(t), [H(t), z]] | \Psi(r, t) \rangle \quad (3.31)$$

Donde $H(t)$ es el Hamiltoniano definido en la ecuación (3.26). La función $D(\omega)$ es llamada espectro dipolar, ya que proporciona el perfil espectral medido en los experimentos de HHG.

Cuando se desea trabajar con un estudio completo de la generación de armónicos, bajo la *SAE*, es necesario recurrir a la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo tridimensional (3D-TDSE). Esta, utilizando las aproximaciones dadas en la ecuación (3.26), se puede escribir como:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[\frac{1}{2} \mathbf{p}^2 + V_{\text{átomo}}(\mathbf{r}) + V_{\text{láser}}(\mathbf{r}, t) \right] \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (3.32)$$

Donde el átomo posee simetría esférica, por lo que el potencial es de la forma $V_{\text{átomo}}(\mathbf{r}) \sim -1/r$. El potencial del láser o de interacción se puede escribir como:

$$V_{\text{láser}}(\mathbf{r}) = -\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r} = -E_0 r f(t) \text{sen}(\omega_0 t) \text{cos}(\theta) \quad (3.33)$$

Donde θ es el ángulo de colatitud, tal que $z = r \text{cos}(\theta)$. Como es sabido, al poseer el átomo simetría esférica, podemos reducir el problema a dos variables espaciales (r, θ) . De esta manera, podemos escribir la función de onda $\Psi(\mathbf{r}, t)$, como una expansión en armónicos esféricos:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_l \frac{1}{r} R_l(r, t) Y_l^0(\theta, \phi) \quad (3.34)$$

Si el átomo está en el estado inicial $1s$ y considerando la polarización del láser en la dirección z , solo los términos con $m = 0$ son relevantes en la expansión en armónicos esféricos. De esta manera, sustituyendo la función de onda 3.34, en la ecuación de Schrödinger obtenemos el siguiente sistema de ecuaciones diferencia-

les:

$$i\frac{\partial}{\partial t}R_l(r,t) = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{1}{r} + \frac{l(l+1)}{2r^2}\right]R_l(r,t) + rE(t)[C_l^+R_{l+1}(r,t) + C_l^-R_{l-1}(r,t)] \quad (3.35)$$

Para $l > 0$, y para $l = 0$

$$i\frac{\partial}{\partial t}R_0(r,t) = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{1}{r}\right]R_0(r,t) + rE(t)C_0^+R_0(r,t) \quad (3.36)$$

Donde los coeficientes C_l^\pm , toman las siguientes formas:

$$C_{l-1}^+ = C_l^- = \left[\frac{l^2}{(2l+1)(2l-1)}\right]^{1/2} \quad (3.37)$$

La ecuación anterior debe resolverse numéricamente, para esto es necesario fijar un valor máximo del momento angular, l_{max} . De esta manera se obtienen un sistema de l_{max} ecuaciones diferenciales parciales. Como en el caso de la ecuación de Schrödinger unidimensional, una vez encontrado el valor de $\Psi(\mathbf{r}, t)$, el espectro de armónicos se obtiene por medio de la *TF* de la aceleración dipolar $a(t)$ [77]

$$D(\omega) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} a(t) \right|^2 \quad (3.38)$$

Que puede ser calculada, mediante el teorema de Ehrenfest.

$$a(t) = \frac{d^2\langle z \rangle}{dt^2} = \langle \Psi(r,t) | \frac{\partial}{\partial z} [V_{átomo} + V_{láser}] | \Psi(r,t) \rangle \quad (3.39)$$

3.2.4. Análisis tiempo-frecuencia, Transformada Wavelet

En esta sección, comentaremos brevemente las características del análisis Wavelet aplicada a la generación de armónicos. El análisis Wavelet o tiempo-frecuencia, permite obtener en una misma función, las características espectrales y temporales de una señal. Estas pueden ser, ópticas, eléctricas, acústicas, etc. En pocas palabras, permite asignarle al tiempo de cada señal, su frecuencia correspondiente. Esto en general es muy útil para analizar señales que poseen chirp.

De manera general, se puede definir la Transformada Wavelet de la función

$f(t)$, como:

$$W_f(s, \tau) = \int f(t) \Psi_{s,\tau}^*(t) dt \quad (3.40)$$

Siendo el conjunto de funciones $\Psi_{s,\tau}(t)$ una base ortonormal, sobre la cual se proyecta la función $f(t)$. Las funciones $\Psi_{s,\tau}(t)$, son las llamadas *Wavelet*, estas se forman por traslación y dilatación de una función $\Psi(t)$ llamada *Wavelet Madre*, tal que

$$\Psi_{s,\tau}(t) = \frac{1}{\sqrt{s}} \Psi\left(\frac{t - \tau}{s}\right) \quad (3.41)$$

Para el estudio de la generación de armónicos, el análisis Wavelet permite obtener información espectral y temporal del comportamiento del espectro de HHG. Mas precisamente, el instante donde la radiación armónica es emitida, a medida que el pulso interactua con el átomo. Para realizar el análisis, utilizamos la *Wavelet Gabor*, de esta manera podemos escribir el análisis tiempo-frecuencia en función de la aceleración dipolar $a(t)$ (3.39), como:

$$a_G(\Omega, t) = \int d\tau a(\tau) \frac{\exp[-(t - \tau)^2/2\sigma^2]}{2\pi\sigma} \exp(i\omega\tau) \quad (3.42)$$

Donde la integración se realiza sobre la duración del pulso y el parámetro σ se elije de tal manera, de lograr un adecuado balance entre la resolución del tiempo y la frecuencia [80–83].

Capítulo 4

Generación de armónicos de alto orden con pulsos con chirp

Una de los retos en los últimos años en la HHG, ha sido encontrar estrategias o métodos para obtener fotones más energéticos. Como se ha mencionado en el capítulo anterior, si se aumenta la longitud de onda del láser, el cut-off aumenta como λ^2 . Por otro lado, si se aumenta la intensidad, el cut-off es proporcional a la misma, $E_{cut-off} \sim I\lambda^2$. Existen varias propuestas teóricas para aumentar el cut-off en la HHG, que no están basadas en la ley del cut-off. Estas son: sumar dos pulsos con distinta fase, sumar dos pulsos de distinto color (frecuencia), generar armónicos en campos inhomogéneos, pulsos con chirp, etc. [35, 36, 84, 85]

En este capítulo nos centraremos en la generación de armónicos con pulsos con chirp. En una primera parte, estudiaremos que condiciones debe tener un pulso con chirp para extender el cut-off y cual debe ser su origen. En una segunda parte, propondremos un pulso con chirp para extender el cut-off, el mismo se origina del fenómeno no-lineal conocido como auto modulación de fase (SPM) (ecuación (2.42)).

Estos estudios se realizarán teóricamente bajo la aproximación SAE. Esto quiere decir que no se estudiarán efectos de propagación asociados a la generación de armónicos. El análisis se realizará mediante la resolución de la ecuación de Newton (análisis clásico), como así también mediante un estudio cuántico a través de las ecuación de Schrödinger 1-D y 3-D.

4.1. Generación de Armónicos con chirp lineal y no-lineal

Existe en la literatura gran cantidad de trabajos teóricos de generación de armónicos empleando pulsos con chirp [86–89]. El primero en proponer una extensión del cut-off, con este tipo de pulsos fue Carrera [36]. Este autor, propone un pulso de pocos ciclos de ancho temporal, con un chirp dado por una función Tangente Hiperbólica. A partir de estos resultados, se originaron otros trabajos de extensión del cut-off en la HHG, teniendo en cuenta la misma forma funcional para el chirp del pulso.

En este apartado, presentaremos un estudio teórico de la generación de armónicos por medio de pulsos ultracortos, con diferentes tipos de chirp. El análisis radica, principalmente, en clarificar los aspectos físicos tanto del origen del chirp como de la física subyacente en la HHG con este tipo de pulsos, de forma tal que permita una extensión del cut-off. La motivación de este estudio se origina, ya que en la literatura no está reportado con suficiente detalle este tipo de interacción y tampoco se explica el origen físico del chirp en el pulso para lograr una extensión del cut-off en la HHG [36].

El estudio se llevará a cabo por un lado, por medio de un análisis clásico de las energías (Ecuación de Newton), tanto de ionización como de recombinación. También, mediante un análisis clásico, se definirá una función $\Delta(t)$, la cual va a permitir a priori definir que tipos de chirp pueden generar una extensión del cut-off, como así también la región temporal del pulso que lo origina. Por otro lado, se realizará un estudio cuántico utilizando la ecuación 3D-TDSE y un análisis del comportamiento temporal y espectral de la radiación armónica por medio de un análisis tiempo-frecuencia (Wavelet).

4.1.1. Modelos teóricos

Como hemos mencionado antes, el fotón de máxima energía $E_{cut-off}$ está dado por la ecuación (3.7). En la misma, el término de energía ponderomotriz para un

campo eléctrico sinusoidal, de frecuencia ω_0 y amplitud E_0 , se define como:

$$U_P = \frac{E_0^2}{4\omega_0^2} \quad (4.1)$$

Ahora vamos a suponer que tenemos un pulso láser, de ancho temporal τ , cuya frecuencia es variable en el tiempo $\omega(t)$. Esta variación temporal de la frecuencia indica que el pulso posee chirp. Definimos la siguiente función:

$$U(t) = \frac{E(t)^2}{4\omega(t)^2} \quad (4.2)$$

Tenemos que $E(t) = E_0 f(t)$, donde $f(t)$ es la envolvente del pulso y $\omega(t) = \omega_0 + \phi'(t)$, siendo $\phi'(t)$ la función que contiene al chirp del pulso. Es posible esperar que la función dada por la ecuación (4.2), para cierto intervalo de tiempo Δt , tome valores menores, mayores o iguales a la energía ponderomotriz U_P . Para verificar esto definimos la siguiente función:

$$\Delta(t) = \frac{E(t)^2}{4U_P} - \omega(t)^2 \quad (4.3)$$

De esta manera, en concordancia con la ecuación (4.3), si $\Delta(t)$ es negativa entonces $U(t) < U_P$. Por otra lado, si $\Delta(t)$ es positiva entonces $U_P < U(t)$. Por lo tanto, se puede esperar que si $\Delta(t)$ es negativa, el chirp inducido en el pulso no va a lograr un cut-off más grande que el pulso sin chirp. Por el contrario, si $\Delta(t)$ es positiva, en principio, se esperaría que el chirp inducido en el pulso logre una extensión del cut-off.

El estudio de los distintos casos de generación de armónicos con pulsos con chirp, se hizo utilizando He como gas noble, cuyo potencial de ionización I_P es igual a 0.9 a.u. (24.7 eV). La longitud de onda central del láser es de $\lambda_0=800$ nm con una intensidad de $I=10^{15}$ W/cm². Se utilizará un pulso Gaussiano sin chirp para comparar los resultados con los distintos pulsos con chirp. Este pulso tiene la siguiente forma:

$$E(t) = E_0 e^{-2\ln(2)\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2} \cos(\omega_0 t) \quad (4.4)$$

Donde τ_0 es el ancho del pulso, que en este estudio tiene el valor de 3 c.o. (ciclos ópticos), este valor equivale a un ancho de 8 fs, ya que a una longitud de

onda de 800 nm, 1 c.o.=2.66 fs.

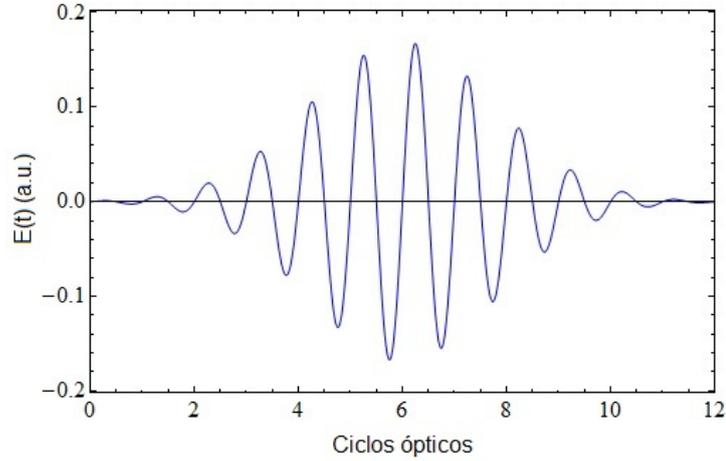


Figura 4.1: Pulso láser sin chirp, el máximo valor del campo eléctrico E_0 es $0,1688a.u.$ que corresponde a una intensidad de $10^{15}W/cm^2$.

En la figura 4.1, se puede observar la forma del pulso láser sin chirp empleado para realizar los cálculos. En el eje de las ordenadas se encuentra el valor del campo eléctrico en unidades atómicas y sobre el eje de las abscisas el ancho del pulso en ciclos ópticos.

4.1.2. Generación de Armónicos con pulsos con chirp lineal, medio dispersivo

En esta sección, estudiaremos la generación de armónicos con pulsos con chirp provenientes de un medio dispersivo. Este estudio, se hará a través del análisis clásico de las energías de ionización y recombinación como así también por medio de la función $\Delta(t)$, definida en la ecuación (4.3).

Como se mostró en la sección 2.31, cuando un pulso limitado por TF atraviesa un medio dispersivo, que puede ser un sistema de prismas, redes de difracción o vidrios y cristales transparentes, se ensancha temporalmente. En estas condiciones su amplitud máxima disminuye de acuerdo a la conservación de la energía, ya que el área bajo el pulso debe permanecer constante. Esto ocurre, debido a que las diferentes frecuencias dentro del pulso viajan a diferentes velocidades. Por otro

lado, el contenido espectral del pulso al atravesar un medio dispersivo no cambia. El parámetro que describe este fenómeno, a primer orden, está dado por la GVD definida en la ecuación (2.29).

Para estudiar la HHG con pulsos con diferentes grado de chirp dispersivo, se utilizó un pulso dado por la ecuación (4.4). La evolución de un pulso gaussiano que atraviesa un medio dispersivo una distancia z , se puede obtener de la ecuación (2.29). La solución a esta ecuación se puede escribir como:

$$E(z, t) = \frac{1}{\sqrt{1 + i4a\alpha z}} e^{-\frac{(t-z/v_g)^2}{1/\alpha + 16a^2 z^2 \alpha}} e^{i\frac{4a\alpha z(t-z/v_g)^2}{1/\alpha + 16a^2 z^2 \alpha}} \quad (4.5)$$

Donde $a = \frac{1}{2} \frac{d^2 k}{d\omega^2}$ y $\alpha = 2\ln(2)/\tau_0^2$. La intensidad del pulso anterior se puede escribir como:

$$I(z, t) = \frac{1}{\sqrt{1 + 16a^2 \alpha^2 z^2}} e^{-2\frac{(t-z/v_g)^2}{1/\alpha + 16a^2 z^2 \alpha}} \quad (4.6)$$

Por medio de esta ecuación, podemos describir como cambia el ancho temporal del pulso $\tau(z)$, a medida que atraviesa el medio dispersivo. Para hacer esto, se toma el ancho temporal a mitad de altura (FWHM). Por lo que se puede escribir a $\tau(z)$ como:

$$\tau(z) = \sqrt{2\ln(2)} \sqrt{\frac{1}{\alpha} + 16a^2 z^2 \alpha} \quad (4.7)$$

De esta manera, podemos obtener el ensanchamiento temporal que sufre un pulso que atraviesa un medio dispersivo de largo L , de la forma:

$$\tau(L) = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{8aL\ln(2)}{\tau_0^2}\right)} \quad (4.8)$$

Teniendo en cuenta la ecuación (4.8), el grado del chirp puede ser expresado como función del producto aL , cuya unidad es fs^2 [90].

Para estudiar el efecto de un pulso con chirp originado en un medio dispersivo en la HHG, variamos el parámetro aL de tal manera de obtener tres diferentes pulsos como se detallan en las figuras 4.3 (a), (b), (c). El grado del chirp de cada uno de esos pulsos es 26.6 fs^2 , 53.3 fs^2 y 88.8 fs^2 respectivamente. Para tener un orden de magnitud de la distancia L que debe atravesar el pulso en un material

óptico para alcanzar los valores propuestos, pongamos como ejemplo una muestra de SF14, cuyo parámetro a vale $0.0888 \frac{fs^2}{\mu m}$ a una longitud de onda de 800 nm. Para calcular este valor es necesario recurrir a la ecuación de Sellmeier [91], donde se obtiene el índice de refracción como función de la longitud de onda, $n(\lambda)$. Para este material, L toma los siguientes valores: $L=300 \mu m$, $L=500 \mu m$ y $L=1000 \mu m$.

Considerando que los tiempos de computo para el caso cuántico, en el caso de pulsos largos, son excesivos, este estudio se llevo a cabo en forma clásica. En la figura 4.2 a la izquierda se observa el pulso sin chirp y a la derecha la simulación clásica, donde en azul se muestran las energías de ionización y en rojo las de recombinación como función del tiempo en ciclos ópticos. Se observa que el valor máximo de energía (cut-off), 190 eV, se encuentra en el medio temporal del pulso, esto es de esperarse ya que la amplitud máxima del campo eléctrico se encuentra allí.

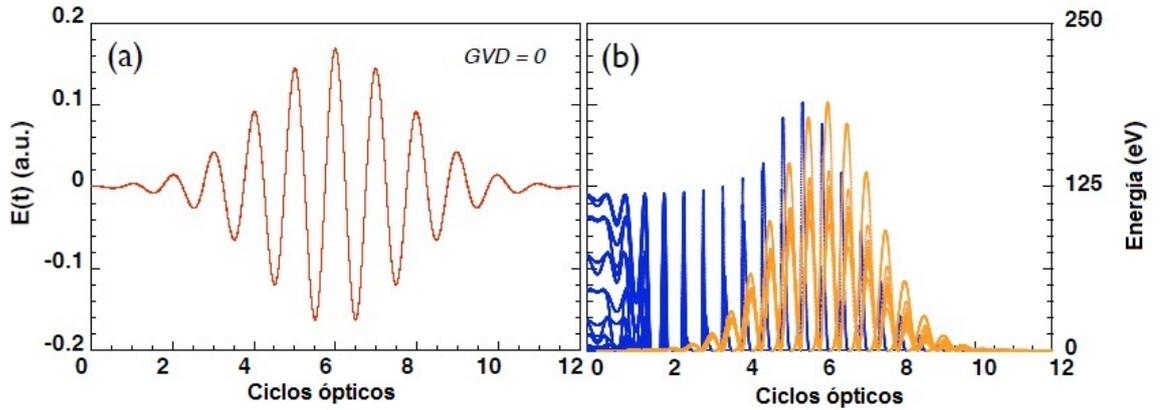


Figura 4.2: La imagen (a) corresponde al pulso sin chirp utilizado para realizar las simulaciones, la intensidad asociada a este pulso es de $10^{15} W/cm^2$ y la longitud de onda es $\lambda=800nm$. La imagen (b) corresponde a las energías clásicas, que resulta de la integración de las ecuaciones de Newton-Lorentz. Donde, en azul se describe la energía de ionización como función del tiempo y en rojo la energía de recombinación. El máximo valor de energía (cut-off) corresponde a 190eV.

En la figura 4.3, se muestran las simulaciones clásicas obtenidas por medio de los tres pulsos con chirp, como así también la gráfica de la función $\Delta(t)$ correspondiente para cada caso. Las simulaciones clásicas de las energías se muestran en las figuras 4.3 (g), (h), (i). En las mismas se observa como el cut-off disminuye

a medida que el pulso posee más chirp, tomando los valores 78 eV, 40 eV y 24 eV. En las figuras 4.3 (d), (e), (f), se graficaron las diferentes funciones $\Delta(t)$. La línea punteada de color violeta indica el valor cero. Se observa que ninguna toma valores positivos para ningún intervalo de tiempo Δt . Estos resultados están en concordancia con los valores del cut-off obtenidos por las simulaciones clásicas. Los resultados anteriores son esperables, ya que, a medida que el pulso posee más chirp, su amplitud disminuye, aunque dentro del pulso las longitudes de ondas se distribuyan de manera diferente.

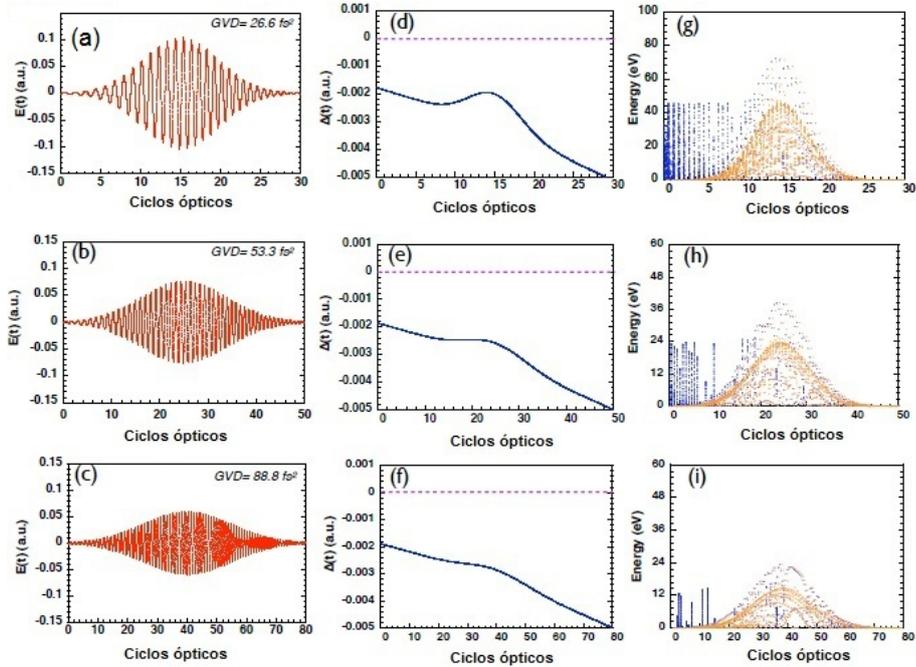


Figura 4.3: Las imágenes (a), (b), (c), representan los diferentes pulsos con chirp variando el parámetro aL . Los correspondientes valores de la función $\Delta(t)$, se muestran en las imágenes (d), (e), (f). Siguiendo el mismo criterio de la figura 4.2, se muestran en las imágenes, (g), (h), (i), el análisis clásicos de las energías.

4.1.3. Generación de Armónicos con pulsos con chirp no-lineal

En esta sección vamos a estudiar la HHG, como en el apartado anterior en He, pero empleando un pulso con chirp dado por la siguiente expresión:

$$E(t) = E_0 \exp[-\ln(2)\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2] \cos(\omega_0 t + bt^2) \quad (4.9)$$

Donde E_0 es la amplitud máxima del campo eléctrico, τ_0 es el ancho temporal (FWHM) y ω_0 es la frecuencia central. El parámetro b determina el grado del chirp. En contrapartida al caso del medio dispersivo, acá asumiremos que la envolvente del pulso no cambia a medida que el parámetro b varia. El análisis lo haremos variando el parámetro b , tomando tres valores distintos. Cabe destacar, que el pulso dado por la ecuación (4.9) corresponde al pulso mas simple para estudiar, ya que el chirp está dado por una función cuadrática de la forma bt^2 .

En la figura 4.4, se muestran los tres pulsos con chirp, dados por la ecuación (4.9), para distintos valores del parámetro b . En la figura 4.4 (a) $b = 0,0005\omega_0$, figura 4.4 (b) $b = 0,001\omega_0$ y en la figura 4.4 (c) $b = 0,0015\omega_0$. La función $\Delta(t)$ para los tres casos, se muestra en las figuras 4.4 (e), (f) y (g) respectivamente. Se observa de las mismas que la función $\Delta(t)$ toma valores positivos en un cierto intervalo de tiempo Δt para los tres casos. Por otro lado, el máximo de la función se va corriendo hacia el lado izquierdo, a medida que el parámetro b aumenta. Siguiendo el razonamiento dado por la ecuación (4.3), es de esperarse que estos pulsos generen un cut-off superior al pulso sin chirp ($b = 0$).

La figura 4.5, muestra un aspecto a destacar en este apartado. En la misma, se observa la TF de los distintos pulsos dados por la figura 4.4, como así también del pulso sin chirp. Se puede ver que a medida que el parámetro b aumenta, el contenido espectral del pulso aumenta. Este incremento genera nuevas frecuencias dentro del pulso que son menores y mayores a ω_0 . En el caso de un chirp originado por un medio dispersivo, esto no ocurre, ya que el contenido espectral del pulso no cambia.

La figura 4.6, muestra el análisis cuántico de la HHG en átomos de He, resolviendo la ecuación de Schrödinger 3D-TDSE y su comparación con el análisis clásico de las energías de recombinación. En las figuras 4.6 (a), (b) y (c), se

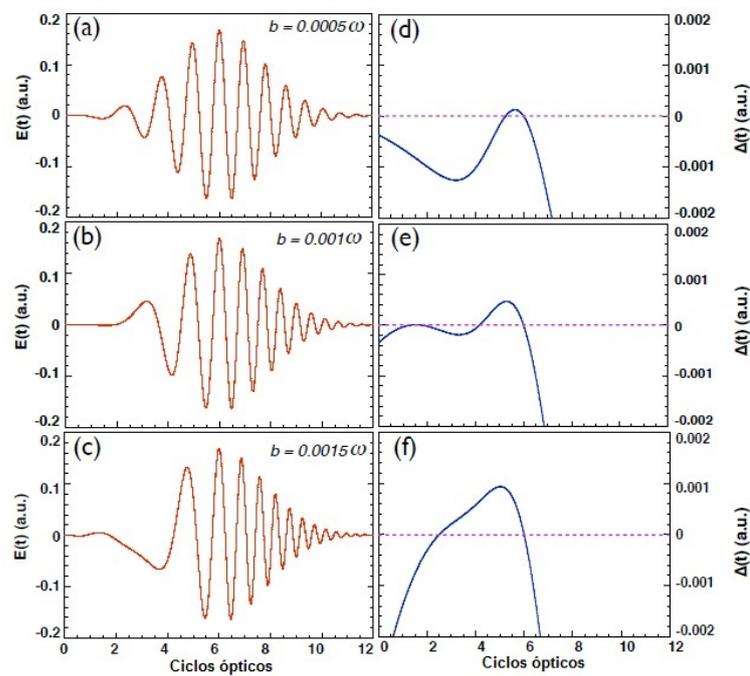


Figura 4.4: En el lado izquierdo se muestran los pulsos con chirp dados por la ecuación (4.9), a una intensidad de $10^{15}W/cm^2$ y para los diferentes valores del parámetro b . Sobre el lado derecho, se encuentra la función $\Delta(t)$ para los diferentes pulsos.

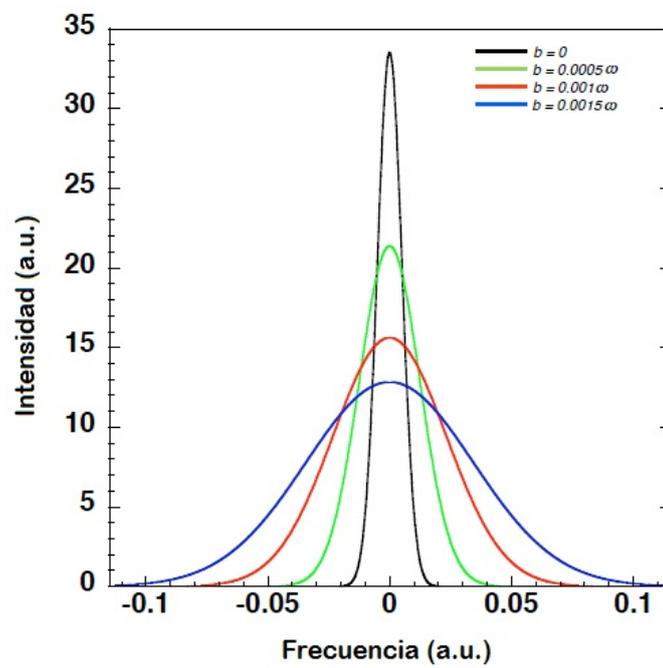


Figura 4.5: Transformada de Fourier para los diferentes pulsos dados en la figura 4.4, ($b = 0,0005\omega_0$ en verde, $b = 0,001\omega_0$ en rojo y $b = 0,0015\omega_0$ en azul). En negro se gráfica la Transformada de Fourier para el pulso sin chirp.

muestra el espectro de armónicos obtenido mediante la resolución de la ecuación 3D-TDSE. La escala en el eje de las ordenadas es logarítmica. Cada uno de los espectros anteriores, corresponde a los pulsos dados en la figura 4.4. En las figuras 4.6 (d), (e), (f), se muestra el análisis tiempo-frecuencia de la generación de armónicos. En el mismo, se observa el instante donde la radiación armónica es emitida en el rango temporal del pulso. La escala de colores (derecha) indica la intensidad de la radiación emitida. Superpuesto al análisis tiempo-frecuencia, se observa el análisis clásico de las energías de recombinación (línea negra). Es fácil observar la concordancia de los resultados clásicos con los cuánticos. La línea punteada indica el valor del cut-off para los dos casos. De los resultados anteriores, se desprende un aumento del cut-off para todos los pulsos propuestos, en relación al pulso sin chirp. Tanto los resultados clásicos como los cuánticos, están en completo acuerdo con los resultados obtenidos por medio de la función $\Delta(t)$, presentados en la figura 4.4. El análisis clásico, confirma que el aumento del cut-off se encuentra en el intervalo temporal donde $\Delta(t)$ toma valores positivos.

Por otro lado, en el caso del pulso con un chirp dado por el parámetro $b = 0,0015\omega_0$, en la figura 4.6 (c), se observa que aunque existe un incremento del cut-off, los máximos dados por el análisis cuántico y el clásico no coinciden como en los dos casos anteriores (punto 1). Esta discrepancia, esta dada por la baja amplitud del campo en la región temporal que ioniza al electrón, siendo esta de $E_0=0.06$ u.a. que equivale a $I = 1,2 \cdot 10^{14}W/cm^2$. Esta intensidad no es lo suficientemente grande para ionizar al electrón por efecto túnel en un átomo de helio.

Para verificar la afirmación del párrafo anterior, se realizó una simulación con el mismo pulso pero con una intensidad mayor, tal que esta no supere el umbral de supresión de barrera y de esta manera no despoblar al átomo. La intensidad máxima fue $1,4 \cdot 10^{15}W/cm^2$. Estos resultados se presentan en la figura 4.7. En la misma, se observa una importante extensión del cut-off en concordancia con los resultados clásicos. El análisis tiempo-frecuencia indica el mismo comportamiento.

Por otro lado, se observan tres diferentes mesetas o plateaus para los distintos intervalos temporales donde el electrón es recombinado. Estas distintas mesetas, indican que existen diferentes eficiencias para la radiación emitida. Para explicar este comportamiento, recurriremos a la ley del cut-off, donde $E_{cut-off} \sim I\lambda^2$,

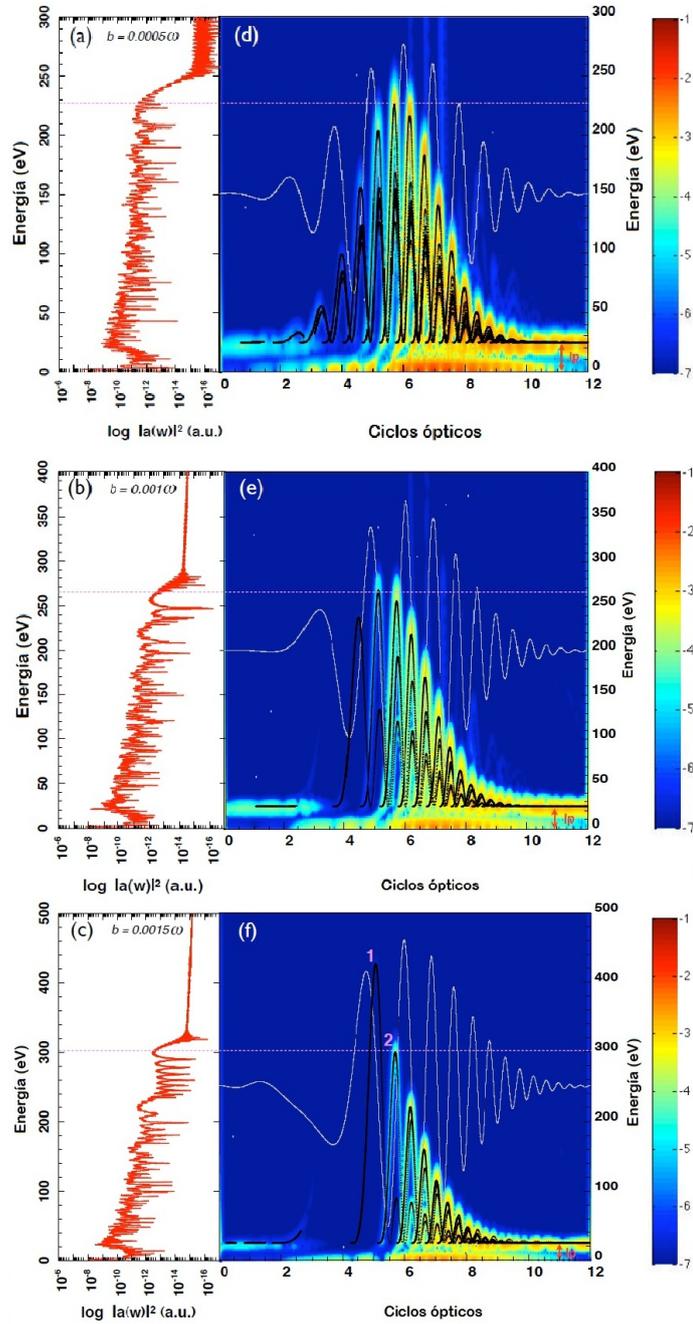


Figura 4.6: Las imágenes (a), (b) y (c) muestran los correspondientes espectros de HHG en átomos de He para los pulsos con chirp dados en la figura 4.4. En (d), (e) y (f) se grafican el análisis tiempo-frecuencia y en líneas negras se superpone el análisis clásico de las energías de recombinación. Con línea gris se muestran los diferentes pulsos con chirp.

la cual nos indica que a mayor longitud de onda mayor energía de los fotones emitidos. Teniendo en cuenta lo anterior, de las figuras 4.6 y 4.7, se observa que el cut-off se obtiene en la región del pulso que posee mayor periodo o lo que es equivalente mayor longitud de onda. Como se comentó en la introducción de la sección 3.2, la eficiencia de la radiación armónica escala con la longitud de onda como $\lambda^{-5,5}$, de esta manera al ser la radiación generada por diferentes λ , la eficiencia de cada radiación no es la misma y en consecuencia no aparece una única meseta, como en el caso de la generación de armónicos utilizando pulsos sin chirp.

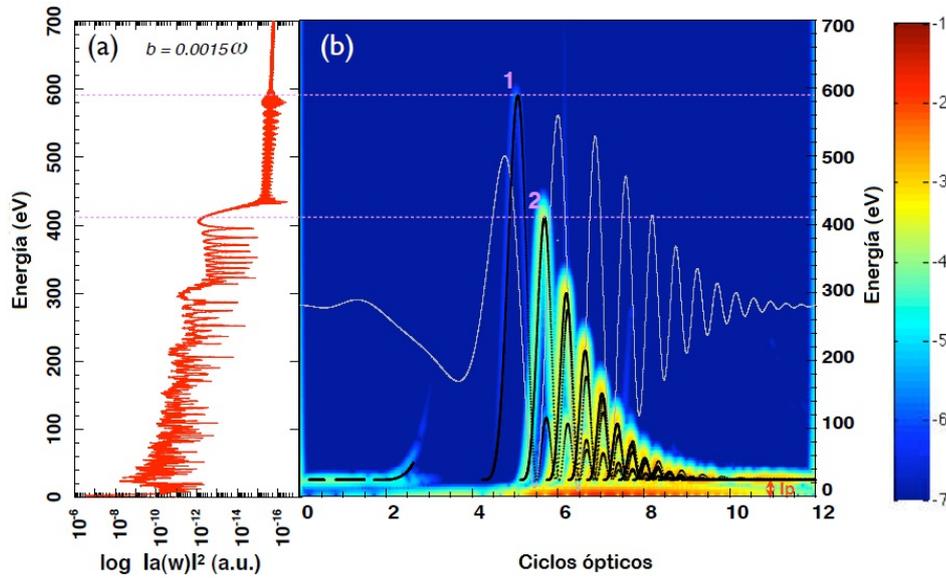


Figura 4.7: En esta figura, se representa lo mismo que en la figura 5 (c),(f), pero en este caso la intensidad es $I = 1,4 \cdot 10^{15} W/cm^2$ ($E_0 = 0,2 a.u.$). Esta intensidad, corresponde al umbral de saturación del átomo de helio.

4.2. Generación de Armónicos con pulsos con chirp dados por auto-modulación de fase

En esta sección, describiremos una propuesta para extender el cut-off, en la HHG con pulsos de varios ciclos ópticos. Estos pulsos, poseen un chirp que se

encuentra dado por el proceso no-lineal conocido como Auto-Modulación de Fase (SPM). Esta propuesta, se desprende de los resultados de la sección anterior, ya que como se mencionó, es necesario que el chirp del pulso se origine en un medio no-lineal para extender el cut-off en la HHG.

Particularmente el análisis lo haremos en átomos de argón, pero es aplicable a otros gases nobles. El estudio se realizará por medio de un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación. Además, por ser un pulso de varios ciclos ópticos, el estudio cuántico se hará utilizando la ecuación 1D-TDSE, ya que esto permite que los tiempos de cómputo sean mucho menores.

4.2.1. Modelos teóricos y obtención de la SPM sobre el pulso

Generalmente la SPM es uno de los fenómenos predominantes en la generación de supercontinuo, ya que permite que el ancho espectral del pulso sea ensanchado enormemente [42]. Por otro lado, el ensanchamiento del contenido espectral permite la generación de pulsos muy cortos, de entre 2 y 1.5 ciclos ópticos (FWHM). Para lograr esto, se utiliza un láser de Titanio Zafiro CPA, el cual generalmente posee un ancho temporal de 30 fs. Este pulso láser es enfocado sobre una guía hueca, la cual posee un gas noble en su interior. Este gas va a funcionar como el medio no-lineal, ensanchando el contenido espectral del pulso. Una vez logrado esto, el pulso es compensado (Limite de Fourier) por medio de *chirp-mirrors* [55], obteniéndose así un pulso energético y muy corto temporalmente.

Como se comentó en la sección 2.3.2, particularmente en la ecuación (2.35), cuando un pulso muy energético se propaga en un medio no-lineal, el índice de refracción depende de la intensidad. Esto origina, entre otros fenómenos, la auto-modulación de fase. La SPM origina sobre el pulso, una fase que depende del tiempo (pulsos con chirp). La obtención de la dependencia temporal de la fase, a medida que el pulso se propaga una distancia z , se extrae de las ecuaciones (2.39) y (2.41). La solución general para la fase $\phi(z, t)$, está dada en forma general por la ecuación (2.42). Las hipótesis de la validez de estas ecuaciones son: 1) la longitud de dispersión L_D debe ser mucho mayor a lo longitud no-lineal L_{NL} , ecuaciones (2.38) y (2.42) respectivamente, 2) la distancia de propagación debe

cumplir $z \ll L_D$ y 3) los tiempos de respuesta del material deben ser comparables al ancho temporal del pulso. Esto último está estrechamente relacionado con el valor del índice de refracción no-lineal n_2 .

Para estudiar la generación de armónicos con pulsos cuyo chirp está dado por la SPM, partimos de un pulso gaussiano con un ancho temporal de 100 fs (FWHM). Se propuso un pulso de estas características, ya que un posible material para generar SPM podrían ser los vidrios o cristales. Estos materiales poseen $n_2 \sim 10^{16} - 10^{15} \text{cm}^2/\text{W}$ que corresponden a tiempos de respuesta del orden de $10^{-15} - 10^{-14} \text{s}$ [1]. Por otro lado otro posible material podrían ser las fibras de cristales fotónicos, las cuales pueden presentar dispersión nula para un amplio rango de longitudes de onda [92]. Si el pulso fuera más corto, se tendría que tener en cuenta el carácter no instantáneo de la interacción, por lo que a la ecuación (2.39) habría que hacerle la corrección correspondiente. La longitud de onda utilizada fue de 800 nm y la intensidad de $I = 10^{14} \text{W}/\text{cm}^2$. Como suponemos que el pulso se encuentra polarizado linealmente la ecuación 1D-TDSE describe correctamente el proceso.

En la figura 4.8, se muestra un posible esquema experimental para producir la generación de armónicos, utilizando pulsos cuyo chirp esta dado por SPM. En la misma se muestra el pulso láser, el cual es enfocado mediante una lente, sobre el material, generando una intensidad I_1 . Esta intensidad debe ser lo suficientemente grande para generar SPM sobre el pulso, ecuación (2.42). Luego de que el pulso se propague en el material de longitud z , es nuevamente colimado por una lente equivalente a la anterior. De esta manera, se obtiene un pulso con chirp, con un mayor ancho espectral y una envolvente que permanece inalterada, ya que hemos supuesto, que la dispersión sobre el pulso es despreciable. El chirp del pulso, $\phi(z, t)$, queda definido a través de la ecuación (2.42). Este nuevo pulso, es enfocado mediante otra lente cuya distancia focal es menor que la anterior, alcanzando una intensidad I_2 que producirá la radiación armónica al interactuar con el gas.

Para estudiar la generación de armónicos con los pulsos anteriormente mencionados, proponemos un pulso gaussiano de la siguiente forma:

$$E(t, z) = E_0 \exp[-\ln(2) \left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2] \cos(\phi(t, z)) \quad (4.10)$$

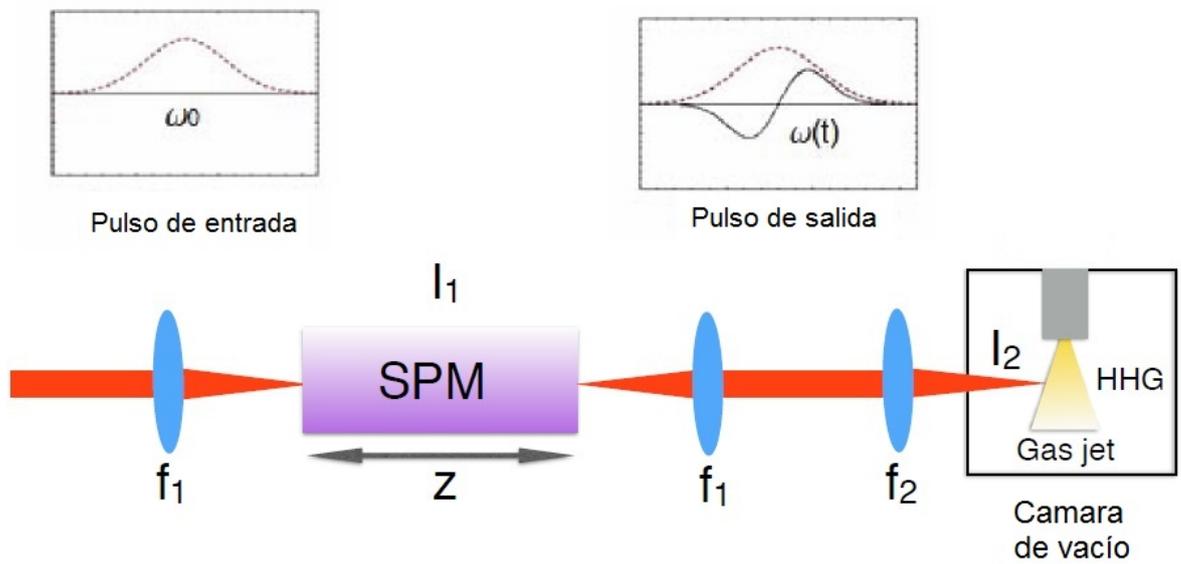


Figura 4.8: Posible experimento para la HHG con pulsos con chirp dado por la SPM. Los paneles insertados contienen, a la entrada, la envolvente del pulso y su frecuencia ω_0 . A la salida, se representa en línea negra la frecuencia instantánea $\omega(t)$.

Donde E_0 es la amplitud máxima del campo, τ_0 es el ancho del pulso y $\phi(t, z)$ es la fase dada por la SPM, que la podemos escribir como:

$$\phi(t, z) = \omega_0 t - \frac{z}{L_{NL}} (\exp[-\ln(2)(\frac{t}{\tau_0})^2])^2 \quad (4.11)$$

La ecuación anterior fue escrita en términos de la longitud de interacción no-lineal L_{NL} , de esta manera se puede prescindir de la elección del material y la intensidad de la radiación. Si tenemos en cuenta la definición de la longitud no-lineal $L_{NL} = \frac{n_0}{n_2 k_0 I_{0m}}$, el producto $n_2 I_{0m}$ es el término más importante. La otra ventaja de escribir la ecuación (4.11) en términos de L_{NL} , yace en que el chirp del pulso se puede escribir en función de z (longitud de propagación), como $z = nL_{NL}$.

Para hacer el análisis, utilizamos tres diferentes longitudes de propagación, $z = 60L_{NL}$, $z = 80L_{NL}$, $z = 100L_{NL}$. En la figura 4.9, se muestran los diferentes pulsos con chirp simulados, como así también el pulso libre de chirp. En la misma, se observa como a medida que z aumenta, el chirp del pulso se va haciendo más pronunciado. También se puede ver, que las longitudes de ondas largas se sitúan en la parte inicial del pulso, mientras que las longitudes de onda cortas en la parte final del mismo.

4.2.2. Resultados

En la figura 4.10, se muestran los espectros de armónicos en diferentes colores. Estos fueron obtenidos por medio de la resolución de la ecuación 1D-TDSE, para los diferentes pulsos con chirp propuestos. En esta figura se muestra, en verde el espectro correspondiente al pulso sin chirp. Todos los resultados corresponden a la HHG obtenida en Ar. Se observa claramente un incremento del cut-off a medida que la longitud de propagación z aumenta, o de manera equivalente a medida que el chirp aumenta. Este incremento, está señalado por flechas negras en unidades de U_P .

Por otro lado, como es esperable, a mayor incremento del cut-off, mayor pérdida en la eficiencia de la generación. Sin embargo, es importante destacar, que la eficiencia para los valores de energías correspondiente a $3,17U_P$ (aproximadamente 40eV), permanecen iguales para todos los casos estudiados. Esta igualdad

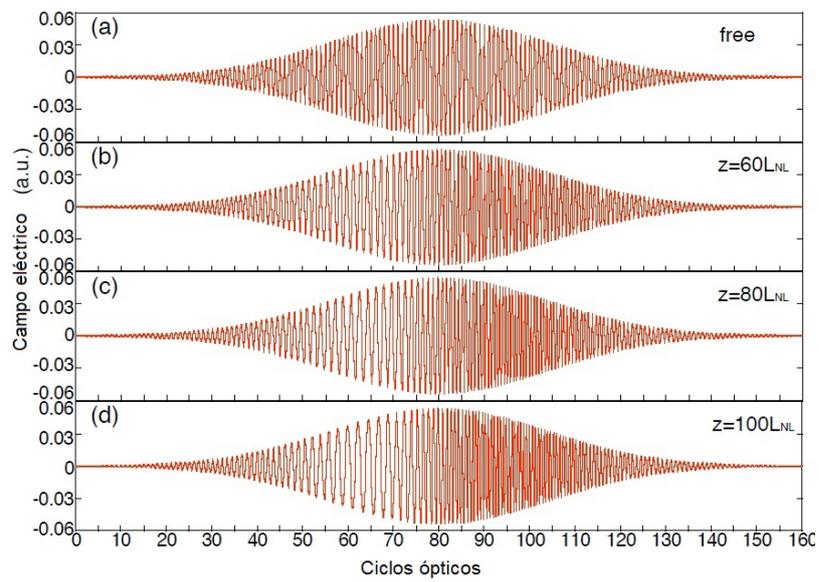


Figura 4.9: Figura (a) pulso libre de chirp. Figuras (b), (c), (d) pulsos con chirp para tres valores diferentes de z . Los periodos mas largos (longitudes de ondas largas), se encuentran sobre la parte inicial del pulso. La amplitud del campo permanece invariante para todos los casos.

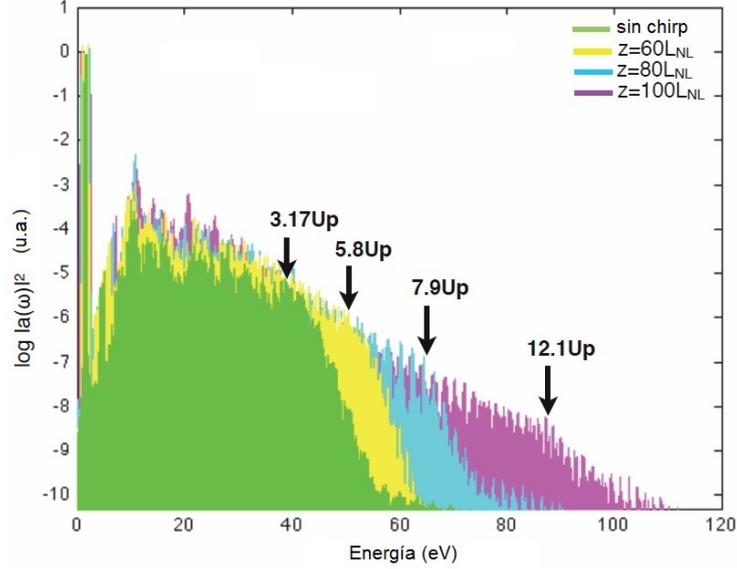


Figura 4.10: Espectro de HHG en argón extraído de la ecuación 1D-TDSE para los diferentes pulsos presentados en la figura 4.9. Las diferentes flechas indican los incrementos del cut-off en unidades de U_P .

en la eficiencia para estos valores de energía, se puede interpretar de la siguiente manera: en el pulso sin chirp, el cut-off es originado por la zona temporal donde se encuentra la mayor amplitud del campo (medio del pulso). Para los pulsos con chirp (figura 4.9), esta región temporal no se vio afectada, por lo que va a producir la misma radiación que el pulso sin chirp y de esta manera la misma eficiencia.

La extensión del cut-off, para los diferentes casos estudiados, puede ser entendida en función de las nuevas longitudes de ondas que aparecen dentro del pulso. En la figura 4.9, se puede observar que a medida que se incrementa z , aparecen longitudes de ondas más largas dentro del pulso.

La ley del cut-off ($I\lambda^2$), indica que un incremento en la longitud de onda origina un incremento del cut-off. Como ya hemos mencionado, a medida que el pulso se propaga una distancia z a una intensidad I_1 dentro del material, el contenido espectral del pulso aumenta. En consecuencia las nuevas frecuencias, mayores y menores a ω_0 , son añadidas en el espectro del pulso. Estas nuevas frecuencias, como mostramos en la sección 4.1.3, deben encontrarse en una región

temporal del pulso tal que permita que el átomo pueda ser ionizado por efecto túnel.

Por otro lado, dada la simetría del pulso gaussiano, la fase $\phi(z, t)$ también va a ser simétrica respecto de ω_0 . En este caso la frecuencia instantánea $\omega(t)$, va a resultar una función asimétrica. Esta asimetría, origina el mismo intervalo de frecuencias mayores y menores a ω_0 . Teniendo en cuenta la ecuación (4.11), podemos escribir a $\omega(t)$ como:

$$\omega(t) = \frac{\partial\phi(t, z)}{\partial t} = \omega_0 + \frac{8\ln(2)tz}{L_{NL}\tau_0^2} (\exp[-\ln(2)(\frac{t}{\tau_0})^2])^2 \quad (4.12)$$

Para comprender mejor lo anteriormente mencionado, se realizó un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación por medio de la integración de las ecuaciones de Newton. Estos resultados se presentan en la figura 4.11. Este estudio clásico muestra, de forma más clara, los fundamentos físicos detrás de la HHG con estos tipos de pulsos. Los resultados obtenidos por este modelo, están en completo acuerdo con las simulaciones cuánticas.

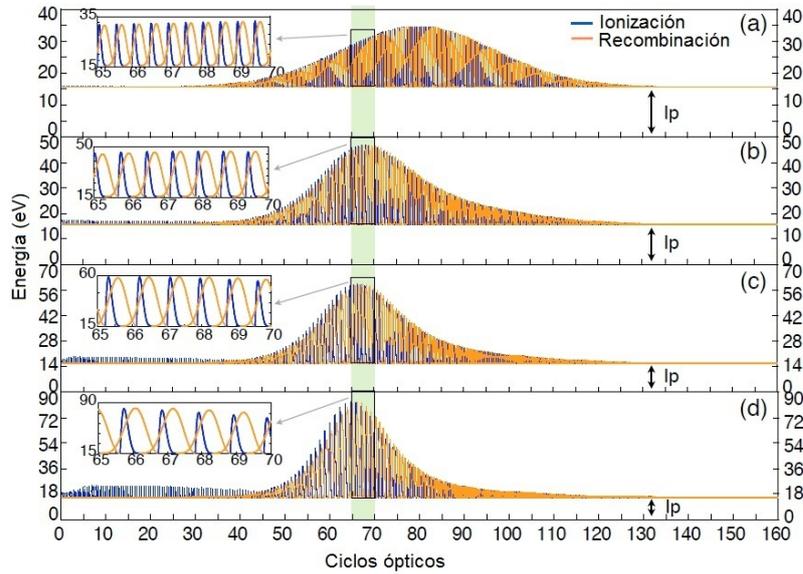


Figura 4.11: Análisis clásico de las energías de ionización-recombinación del electrón, para los diferentes pulsos dados en la figura 4.9. Se muestra el potencial de ionización I_P del argón, cuya valor es $15,7eV$.

De los resultados se observa, que las energías máximas (cut-off) presentan un corrimiento temporal hacia la izquierda del pulso, antes de la amplitud máxima. La posición del máximo de energía, para los tres pulsos con chirp, se encuentran en la misma región temporal. Este hecho significa, que el cut-off para todos los pulsos con chirp, es producido con la misma intensidad.

Por otra parte, una de las desventajas de trabajar con altas intensidades (por debajo del régimen de supresión de barrera) en la HHG, es que se produce demasiado plasma que perjudica la detección de la radiación. Teniendo en cuenta lo anterior, esta extensión del cut-off lograda por los pulsos con chirp, produciría menos plasma debido a que la intensidad a la que se produce la radiación no es la intensidad pico. En consecuencia, lo anterior, mejoraría la eficiencia de la detección de la radiación armónica. Esta afirmación, de todas maneras, debe ser corroborada teniendo en cuenta los efectos de propagación del pulso en el gas (phase-matching), que escapa al objetivo de la tesis [68].

En la figura 4.12, se describe en detalle los resultados del análisis clásico obtenido para el caso en que $z = 100L_{NL}$. La figura (a) muestra el pulso, la figura 4.12 (b) muestra la función $\omega(t)$, dada por la ecuación (4.12) y la figura (c) el correspondiente análisis de las energías de ionización-recombinación. Por medio de esta figura se observa claramente la relación entre el aumento del chirp y el aumento del cut-off por medio de la ley $I\lambda^2$. Si se observa la función $\omega(t)$ se ve que el mínimo está en la misma posición temporal que el máximo de energía, ese mínimo corresponde a la máxima longitud de onda que se puede observar en el pulso (periodo). Por otro lado, es simple deducir como escala el cut-off con la longitud de propagación z , si obtenemos la derivada de la ecuación (4.12) y la igualamos a cero para obtener los tiempos en donde se encuentran el máximo y mínimo llegamos a la siguiente ecuación:

$$t = \pm \frac{\tau_0}{\frac{\sqrt{8}}{2} \ln(2)} \quad (4.13)$$

La cual indica, que la posición de la longitud de onda máxima λ_{max} se encuentra en el mismo tiempo (t), independientemente de la SPM. Este hecho ratifica los resultados clásicos presentados en la figura 4.11, donde el máximo de energía de los pulsos con chirp se encuentra en la misma región temporal. Al reemplazar

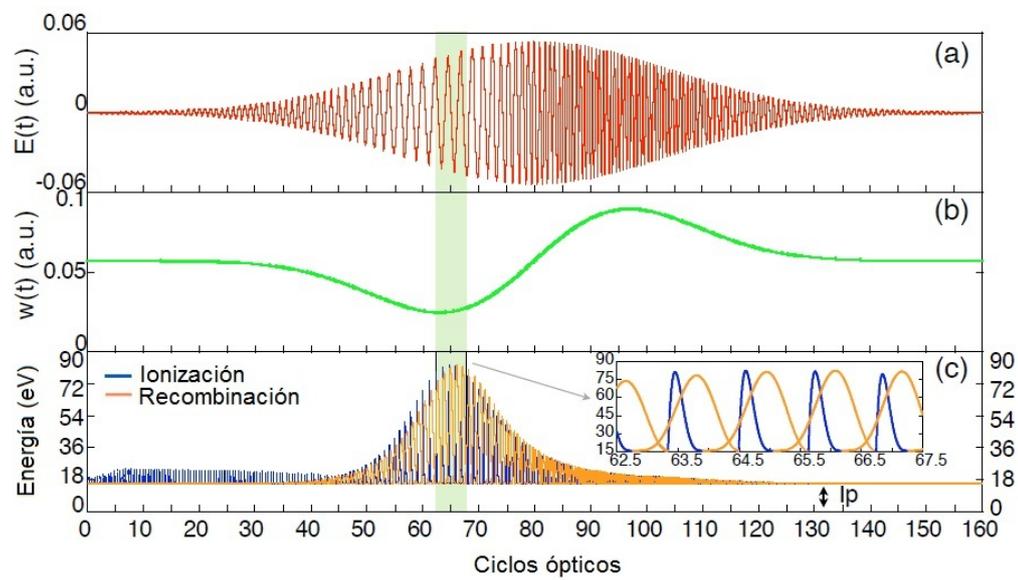


Figura 4.12: Figura (a), pulso con chirp para $z = 100L_{NL}$. En (b) se muestra la frecuencia instantánea $\omega(t)$, como la derivada primera de la fase. (c) análisis clásico de las energías. El cuadro insertado muestra un aumento de la región de máxima energía (cut-off).

la ecuación (4.13) en la ecuación (4.12) es fácil obtener que el valor de λ_{max} es proporcional a z .

4.3. Discusión y Conclusiones

En este capítulo, se ha estudiado la generación de armónicos de alto orden en gases nobles, bajo la aproximación SAE, con diferentes pulsos con chirp.

En la sección 4.1, hemos estudiado el comportamiento del cut-off en la HHG, por medio de pulsos láser con dos tipos diferentes de chirp en átomos de He. Este análisis, fue realizado para determinar que tipos de chirp producen una extensión del cut-off en la HHG. En el primer caso, el chirp del pulso provenía de un medio dispersivo, en el cual su contenido espectral no cambia, pero si su ancho temporal (τ). En el segundo caso, hemos considerado un pulso con chirp, cuya envolvente permanece inalterada a medida que el parámetro del chirp b cambia. Por medio de un análisis de Fourier de estos pulsos, se demostró que a medida que el parámetro b aumenta, el contenido espectral aumenta también. De esta manera, a este tipo de chirp lo denominamos no-lineal.

El efecto del pulso con chirp proveniente de un medio dispersivo (GVD) sobre el cut-off, fue estudiado mediante un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación. Como se ha mostrado en los resultados, este tipo de chirp en el pulso no produce un aumento del cut-off. Esto se debe, a que si bien hay una nueva distribución de las longitudes de ondas sobre el pulso, la intensidad de estas son bajas. En estas condiciones el producto de estas dos cantidades, no supera a $I\lambda^2$, del pulso sin chirp. Lo anterior queda confirmado con la introducción de la función $\Delta(t)$, que nunca toma valores positivos para estos tipos de pulsos.

El segundo análisis, fue llevado a cabo para el pulso dado por la ecuación (4.9): pulso con chirp no-lineal. Mediante los resultados obtenidos con este pulso, se observó que a medida que el parámetro b del chirp aumenta, el cut-off también lo hace. Este estudio, fue corroborado por los tres diferentes tipos de análisis realizados. Los resultados obtenidos del análisis clásico y el cuántico están en completo acuerdo. La función $\Delta(t)$, para este caso, muestra la región temporal del pulso en donde se produce la radiación más energética. Estos resultados también quedan corroborados por el análisis clásico.

En las figuras 4.6 (c) y 4.6 (f), se observa un hecho particular, los resultados cuánticos y clásicos no coinciden. Esta discrepancia se debe, a que la región del pulso que produce el fotón más energético (clásicamente), no es lo suficientemente intensa para producir ionización por efecto túnel sobre el átomo de He. Esta afirmación, se justifica a través de los resultados mostrados en la figura 4.7. Es importante destacar, las distintas mesetas que se forman en los diferentes espectros de armónicos dados por las figuras 4.6 y 4.7. Estas mesetas se producen, porque cada parte del pulso posee una longitud de onda diferente y la eficiencia de la radiación armónica generada por estas longitudes de ondas escala como $\lambda^{-5.5}$. Por otro lado, esto origina que cada región del pulso produzca distinta radiación armónica, aspecto que queda en evidencia por simple inspección de la figura 4.6, al comparar el análisis clásico con el cuántico.

En la sección 4.2, hemos propuesto un pulso con chirp para extender el cut-off en la HHG. Este chirp, proviene del fenómeno no-lineal conocido como auto-modulación de fase, en ingles self-phase-modulation (SPM). El estudio de la HHG con pulsos con chirp dado por la SPM, fue llevado a cabo por medio de la resolución de la ecuación 1D-TDSE en argón, como así también mediante un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación.

Por otro lado en esta sección, demostramos que se puede obtener un gran incremento del cut-off a medida que el chirp del pulso aumenta (figura 4.10). Este aumento del chirp, esta dado por la longitud de propagación z del pulso dentro del material, donde se produce la SPM. La longitud de propagación fue escrita en función de la longitud de interacción no-lineal, tal que $z = nL_{NL}$, de esta manera se puede prescindir del material y la intensidad a la que se produce la SPM, n_2 y I_1 respectivamente (4.11). Mediante el análisis clásico de las energías, se explicó de forma mas detallada, el porqué de esta extensión.

En conclusión, en la sección 4.1 demostramos que para que un pulso con chirp pueda extender el cut-off en la HHG es necesario que el chirp se origine mediante un fenómeno no-lineal, de tal manera que se agreguen nuevas frecuencias al pulso. Estas nuevas frecuencias, deben ser mas bajas que la frecuencia original ω_0 y deben encontrarse en una región del pulso tal que la función $\Delta(t)$ sea positiva. Además, de la condición anterior, la intensidad en esa región debe ser lo suficientemente grande, tal que el átomo pueda ser ionizado por efecto túnel.

En la sección 4.2, mostramos que los pulsos con chirp provenientes del fenómeno no-lineal SPM, cumplen con todos los requisitos dados en la sección 4.1. De esta manera, se propuso un fenómeno real, que pueda originar un chirp sobre el pulso, de tal manera de extender el cut-off en la HHG. Esta extensión del cut-off, es proporcional a la longitud de propagación z dentro del material. Para que lo anterior ocurra, es necesario que la longitud de propagación sea $z \ll L_D$. De esta manera, se desprecia el efecto dispersivo sobre el pulso. Además, es necesario que los tiempos de respuestas del material sean del orden del ancho del pulso, de tal manera que se pueda establecer una interacción instantánea entre el pulso y el material.

Capítulo 5

Generación de armónicos de alto orden por medio de campos inhomogéneos

En este capítulo, se propone analizar la generación de armónicos por medio del refuerzo de campo producido en nano-estructuras metálicas de oro, al ser iluminadas por pulsos láser de moderada intensidad. Como se ha mencionado anteriormente, para que se produzca armónicos de alto orden, es necesario que el pulso láser alcance intensidades del orden de $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2 - 10^{15}\text{W}/\text{cm}^2$ sobre el gas. En el año 2008 Kim presentó un artículo que causó un gran impacto y controversia en la HHG [29]. Generó radiación armónica, por medio del refuerzo de campo cercano producido por una nano-estructura metálica.

Cuando una estructura nanométrica, que en el caso del trabajo de Kim fue una estructura tipo moño (bow-tie), es iluminada por radiación electromagnética con una cierta intensidad I_0 , en los alrededores de la nano-estructura se induce un campo cercano [93–95]. La intensidad de este campo cercano, que es un campo no propagante, es entre 2 y 3 ordenes de magnitud mayor que la intensidad inicial I_0 . La forma de este campo está estrechamente ligada a la geometría de la nano-estructura y oscila con la misma frecuencia que la radiación incidente ω .

Kim propuso que este fenómeno de refuerzo de campo en nano-estructuras, era útil para generar radiación armónica por medio de pulsos láser de femtosegundos,

provenientes de la salida del oscilador en un sistema láser de Titanio-Zafiro. La intensidad utilizada para excitar al arreglo de nano-estructuras fue del orden de 10^{11}W/cm^2 . La ventaja de trabajar con los pulsos que emergen del oscilador, es que la frecuencia de repetición de estos se encuentra en el rango de los MHz, favoreciendo la eficiencia de generación de altos de armónicos. En cambio si se desea amplificar el pulso con la técnica CPA (explicada en la sección 2.1.1), la frecuencia de repetición de estos está en el orden de los KHz, además de que no se necesita un sistema extra (de varios miles de dólares) como un amplificador.

El trabajo de Kim abrió la puerta a un nuevo estudio de la HHG con otro tipo de campos, denominados campos inhomogéneos. Esta inhomogeneidad de los campos está dada por las dimensiones de las estructuras que lo generan, ya que estas se encuentran en el orden de los nanómetros. Una consecuencia de la inhomogeneidad, es que trae aparejado un cambio profundo en la física de la generación de armónicos. Por un lado, se está generando radiación coherente por medio de un campo oscilante local y por el otro, la inhomogeneidad del campo induce un comportamiento distinto en las trayectorias de los electrones que recombinan luego de la ionización, con respecto a un campo espacialmente homogéneo. Los efectos mencionados, originan un apartamiento de la ley del cut-off dada por la ecuación (3.7).

La HHG, así como otros procesos de ionización con campos inhomogéneos fue ampliamente estudiada en diversos trabajos teóricos [38, 96–99]. Por lo general se ha utilizado una aproximación de primer orden para tratar la inhomogeneidad del campo, de la forma:

$$h(x) = 1 + \beta x \tag{5.1}$$

Donde la función $h(x)$ representa la parte inhomogénea espacial del campo eléctrico y β el grado de la inhomogeneidad. En menor medida, también fue estudiada una aproximación a segundo orden de $h(x)$ [100].

En este capítulo analizaremos la generación de armónicos utilizando campos inhomogéneos, realizando un ajuste más detallado de la función $h(x)$. Se mostrará, que mediante el ajuste más riguroso de esta función, se ponen de manifiesto nuevos aspectos del comportamiento de las trayectorias de los electrones que re-

combinan, que en aproximaciones de bajo orden no son observados. Por otro lado, se estudiará el comportamiento de los fotones mas energéticos o cut-off, como función de la longitud de onda en la HHG. Los resultados de este estudio, mostrarán una dependencia distinta a la ley del cut-off ((3.7)) con la longitud de onda. Este comportamiento será explicado, en principio, de manera fenomenológica, para luego ser avalado por los resultados.

Para realizar los estudios anteriormente mencionados, se simulará el refuerzo de campo producido por una nano-estructura tipo moño (bow-tie) de oro, utilizando un programa comercial denominado Rsoft [101]. Este programa posee un paquete (FullWAVE) que emplea la técnica FDTD (finite difference time domain). Con esta técnica fueron realizadas las simulaciones. Una vez obtenido el refuerzo de campo producido por la nano-estructura, se utilizará la ecuación 1D-TDSE para obtener el espectro de armónicos en átomos de argón utilizando la aproximación SAE (single-active-electron). Por otro lado, se llevará a cabo un estudio clásico tanto de las energías de ionización-recombinación, como de las trayectorias de los electrones, integrando las ecuaciones de Newton.

5.1. Refuerzo de campo cercano producido por una nano-estructura metálica

5.1.1. Campo eléctrico producido por un dipolo oscilante

Para entender mejor el fenómeno de refuerzo de campo producido por nano-estructuras metálicas, presentaremos primero el movimiento general de corrientes $\mathbf{J}(\mathbf{x},t)$, que varían con el tiempo de forma sinusoidal con frecuencia ω . El potencial vector $\mathbf{A}(x, t)$, para corrientes de la forma $\mathbf{J}(\mathbf{x},t) = \mathbf{J}(\mathbf{x})e^{i\omega t}$, se puede escribir como:

$$\mathbf{A}(x) = -\frac{\mu_0}{4\pi} \int \mathbf{J}(x') \frac{e^{ik|x-x'|}}{|x-x'|} d^3x' \quad (5.2)$$

La dependencia temporal de la ecuación anterior es sinusoidal. Si la fuente posee dimensiones del orden de d y la longitud de onda es $\lambda = 2\pi c/\omega$. Si consideramos que $d \ll \lambda$, se presentan tres regiones espaciales diferentes.

-
- La zona próxima (estática). $d \ll r \ll \lambda$
 - La zona intermedia (inducción). $d \ll r \simeq \lambda$
 - La zona lejana (radiación). $d \ll \lambda \ll r$

En la zona próxima, los campos son de naturaleza estática, pero oscilan armónicamente como $e^{i\omega t}$. La zona lejana, presenta campos de radiación (ondas electromagnéticas). La zona de inducción es intermedia y el problema debe ser tratado sin aproximaciones.

Describiremos un ejemplo sencillo, pero el más importante, que es el comportamiento de un dipolo oscilante. Si tenemos en cuenta la ecuación (5.2) para el potencial vector, hacemos aproximaciones sobre $|x - x'|$ y desarrollamos en series de Taylor el término exponencial, a primer orden nos queda la siguiente expresión para $\mathbf{A}(x)$.

$$\mathbf{A}(x) = -\frac{\mu_0 e^{ikr}}{4\pi r} \int \mathbf{J}(x') d^3 x' \quad (5.3)$$

La integral anterior puede ser reformulada mediante la integración por partes y teniendo en cuenta la ecuación de continuidad $i\omega\rho = \nabla \cdot \mathbf{J}$, tenemos:

$$\mathbf{A}(x) = -\frac{\mu_0 e^{ikr}}{4\pi r} i\omega \mathbf{p} \quad (5.4)$$

En donde hemos incluidos el momento dipolar eléctrico \mathbf{p} , que se define como:

$$\mathbf{p} = \int x' \rho(x') d^3 x' \quad (5.5)$$

Teniendo en cuenta las relaciones entre el campo magnético \mathbf{B} y el campo eléctrico \mathbf{E} a través del potencial vector \mathbf{A} , $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ y $\mathbf{E} = \frac{ic}{k} \nabla \times \mathbf{B}$, podemos encontrar las expresiones para \mathbf{B} y \mathbf{E} de un dipolo eléctrico oscilante, de la forma:

$$\mathbf{B} = \frac{\mu_0 e^{ikr}}{4\pi r} ck^2 (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \left(1 - \frac{1}{ikr}\right) \quad (5.6)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{4\pi^2} \left[k^2 (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{n} \frac{e^{ikr}}{r} + [3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}] \left(\frac{1}{r^3} - \frac{ik}{r^2} \right) \right] e^{ikr} \quad (5.7)$$

Donde \mathbf{n} es el versor del radio vector r . De las ecuaciones anteriores se tiene que en la zona próxima, $r \ll \lambda$, los campos son estáticos y tienden a:

$$\mathbf{B} = \frac{\mu_0}{4\pi} i\omega(\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \frac{1}{r^2} \quad (5.8)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} [3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}] \frac{1}{r^3} \quad (5.9)$$

El campo eléctrico dado por la ecuación (5.9), es el campo debido a un dipolo eléctrico, pero que oscila temporalmente con el factor $e^{i\omega t}$. El campo magnético \mathbf{B} , claramente, se anula cuando $\omega = 0$. Es de destacar que el campo \mathbf{E} es mas grande que \mathbf{B} en un factor kr , por lo que en la zona próxima los campos son de naturaleza eléctrica.

5.1.2. Movimiento colectivo de los electrones: Plasmones

Para explicar el refuerzo de campo producido por nano-estructuras metálicas es necesario recurrir al termino plasmón.

Se puede definir al plasmón, como la cuasi-partícula asociada a la cuantización clásica (ecuaciones de Maxwell) del movimiento colectivo de los electrones en un plasma (electrones libres), para que se produzca esta cuantización los electrones deben estar confinados espacialmente. El modelo de Drude de los metales (modelo clásico), propone que los electrones dentro de un metal se pueden mover libremente como un gas de electrones. De esta manera, mediante este modelo, al interactuar un pulso láser sobre una estructura metálica, los electrones del mismo se van a mover acompañando la oscilación del campo eléctrico del láser. Si las dimensiones de la estructura metálica son menores que la longitud de onda del láser, el movimiento de las cargas dentro del conductor pueden pensarse por un conjunto de dipolos oscilantes.

Para entender mejor la idea anterior, vamos a presentar directamente los resultados obtenidos mediante la teoría de Mie para partículas esféricas [102].

Suponemos que una onda plana, de amplitud E_0 , frecuencia ω y longitud de onda λ , incide sobre una partícula esférica cuyo radio es r . Si la longitud de onda de la luz incidente λ , es mucho mayor que la esfera, $r \ll \lambda$ es valido

considerar, que el campo eléctrico que actúa sobre la esfera es homogéneo, lo que se conoce como aproximación dipolar. De esta manera, el campo de respuesta \mathbf{E}_{ext} , se desprende de la teoría de Mie a primer orden. Por otro lado, el material de la esfera se caracteriza por una función dieléctrica $\epsilon_r(\omega)$. Esta función, está dada en el modelo de Drude, en la forma:

$$\epsilon_r(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma_e\omega} \quad (5.10)$$

Donde γ_e , es la frecuencia de colisiones de los electrones, que corresponde a un parámetro fenomenológico y ω_p es la frecuencia de plasma, que se define como:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_{ef}}} \quad (5.11)$$

Siendo n_e la densidad de electrones en el medio, con una masa efectiva m_{ef} . Siguiendo la teoría de Mie, el campo \mathbf{E}_{ext} , se puede escribir como:

$$\mathbf{E}_{ext}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0 + \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_m} [3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}] \frac{1}{r^3} \quad (5.12)$$

Donde ϵ_m , es la permitividad relativa respecto del medio. La polarización efectiva de la esfera puede escribirse como:

$$\mathbf{p} = 4\pi\epsilon_0\epsilon_m R^3 \frac{\epsilon_r - \epsilon_m}{\epsilon_r + 2\epsilon_m} \mathbf{E}_0 \quad (5.13)$$

Para el caso de los metales, que son los materiales que implementaremos en este capítulo, la parte real de la permitividad es usualmente negativa. Esto puede llevar a un comportamiento resonante, si el denominador en la ecuación (5.13), tiende a cero. Este comportamiento, se conoce como condición de Fröhlich. En general, este fenómeno, es lo que origina un refuerzo de campo cercano. Para partículas pequeñas en el vacío, esta condición toma la siguiente forma:

$$Re[\epsilon_r(\omega)] = -2 \quad (5.14)$$

Para los metales, la parte imaginaria de $\epsilon_r(\omega)$ nunca es cero, por lo que no existe una singularidad y el refuerzo de campo no tiende a infinito.

Para nano-estructuras con geometrías más complejas, en general, no es posible

encontrar una solución analítica para el refuerzo de campo, por lo que se emplean, métodos numéricos para encontrarlos. Esto se presentará en la sección siguiente.

5.2. Modelos teóricos

5.2.1. Refuerzo de campo producido por una nano-estructura de oro

Para estudiar el refuerzo de campo producido por una nano-estructura de oro, se propuso una geometría tipo moño. Cada nano-estructura que compone el moño, no termina en vértices bien definidos en la zona próxima entre los dos moños, sino que presenta una forma del tipo trapezoidal. En el trabajo de Kim, las simulaciones fueron realizadas asumiendo vértices definidos. Esta geometría de la nano-estructura propuesta, es debido a las condiciones de fabricación, ya que las técnicas litográficas empleadas, poseen un límite en su resolución.

La representación esquemática del campo láser interactuando con la nano-estructura se representa en la figura 5.1(a). En la misma se observa en rojo el pulso láser que incide con dirección de polarización paralela al eje de simetría de la nano-estructura. La forma descrita en el párrafo anterior de la nano-estructura, se observa en perspectiva con color amarillo. En azul, en el medio de las estructuras, se observa una representación del refuerzo de campo eléctrico generado. Como el campo eléctrico cercano tiene componente predominante en la dirección de polarización del láser, se esquematizó un corte del mismo.

Las simulaciones para obtener el refuerzo de campo en esta nano-estructura, fueron realizadas mediante una suite comercial denominada RSoft. Esta suite contiene un paquete que utiliza el método de diferencias finitas conocido como Finite Difference Time Domain (FDTD), que resuelve las ecuaciones de Maxwell dependientes del tiempo cuando el láser interactúa con el material. Las dimensiones de los trapecios fueron: 95nm del lado mayor, 20 nm del lado menor, 185nm de largo y un espesor de 50nm, la distancia entre los mismos fue de 20nm (zona en donde se produce el refuerzo de campo). La longitud de onda del láser utilizado para excitar la nano-estructura fue de 800nm. En la figura 5.1(b) se observa, en un mapa de colores, la intensidad del campo cercano obtenido por

medio de las simulaciones en los bordes de la misma. La figura 5.1(c) muestra un corte, sobre un eje coincidente con la dirección de polarización del láser, del perfil de intensidades obtenido. Se observa un aumento máximo en la intensidad del campo cercano, de 4000 veces la intensidad inicial del láser. Por otro lado, conviene definir un refuerzo de campo efectivo, que se muestra esquematizado con línea roja sobre los resultados dados por la simulación (negro). Esto se debe a que el refuerzo de campo real (medido), dado por una nano-estructura se encuentra por debajo del obtenido por medio de las simulaciones [100].

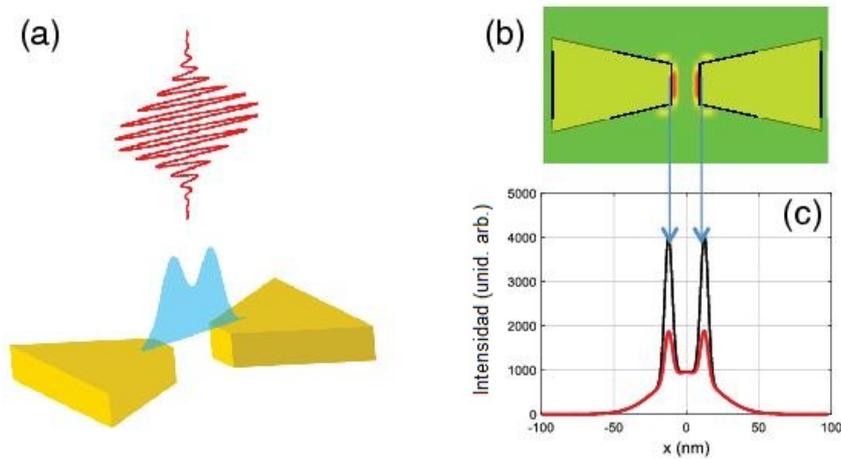


Figura 5.1: Simulación del refuerzo de campo producido por una nano-estructura de oro, utilizando una longitud de onda del láser de 800nm. En la figura (a) se muestra un esquema de la interacción del láser con la nano-estructura, como así también en azul el refuerzo de campo producido. Las figuras (b) y (c) muestran los resultados obtenidos para la intensidad del refuerzo de campo.

La figura 5.2 muestra la función $h(x)$. Esta función determina la variación espacial (inhomogeneidad) del refuerzo de campo eléctrico utilizado para realizar las simulaciones de la generación de armónicos. El eje de las ordenadas se encuentra normalizado en el punto $x=0$, las unidades de la coordenada espacial sobre el eje de las abscisas están en unidades atómicas. La función $h(x)$ representa un ajuste de los resultados obtenidos por las simulaciones (figura 5.1(c)), esta función está compuesta como suma de dos funciones Gaussianas.

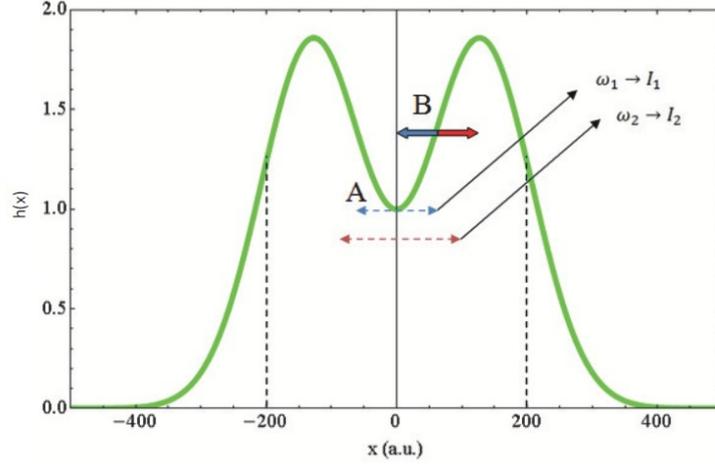


Figura 5.2: Función $h(x)$ normalizada en el punto $x = 0$, la cual representa el termino inhomogéneo del campo eléctrico que interactúa con el gas. Esta función se desprende del ajuste de la simulaciones dadas por la figura 5.1(c).

5.2.2. Ecuación 1D-TDSE para campos inhomogeneos

En esta sección se detallarán las características espaciales y temporales del campo eléctrico, que va a interactuar con el átomo para generar radiación armónica. Se describirán también las ecuaciones a resolver, tanto clásicas como cuánticas, para obtener el espectro de armónicos.

Como se ha descrito anteriormente la radiación armónica está generada por campos estáticos (no propagantes) que oscilan armónicamente con la frecuencia del láser ω . Estos campos eléctricos poseen componentes principalmente en la dirección de polarización del láser, por lo que se puede estudiar el problema en una dimension espacial. Esta forma de generación de armónicos es diferente a la obtenida por un pulso láser, en donde solo se obtiene una variación temporal del campo eléctrico, ya que suponemos que tiene un perfil espacialmente uniforme. De esta manera es necesario una corrección del potencial del láser $V_{láser}(x, t)$ en la ecuación de 1D-TDSE (3.26). Como el pulso láser ya no es el que interactúa con el gas, ya que el mismo tiene una intensidad que es dos o tres ordenes de magnitud menor que la del campo cercano, definiremos el potencial de interacción $V_{int}(x, t)$.

De esta manera escribimos la ecuación 1D-TDSE con:

$$i\frac{\partial\Psi}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} + V_{\text{átomo}}(x) + V_{\text{int}}(x, t)\right]\Psi(x, t) \quad (5.15)$$

Donde el potencial $V_{\text{int}}(x, t)$ se puede escribir de la siguiente manera

$$V_{\text{int}}(x, t) = - \int E(x, t)dx \quad (5.16)$$

Siendo $E(x, t)$ el campo eléctrico oscilante generado por la nano-estructura, que se puede escribir como:

$$E(x, t) = E_0 f(t) h(x) \sin(\omega t) \quad (5.17)$$

Donde E_0 es la amplitud máxima del campo. El término $f(t)\sin(\omega t)$ representa la variación temporal del campo láser, que excita a la nano-estructura, donde $f(t)$ es la envolvente del pulso. La función $h(x)$ representa la forma funcional del campo eléctrico inhomogéneo normalizado (figura 5.2). La dependencia espacial de esta función está dada como suma de dos funciones gaussianas, por lo que la integral (5.16) no tiene solución analítica. Para sortear este problema escribimos a $h(x)$, como una expansión en serie de la siguiente manera

$$h(x) = \sum_i^n b_i x^i \quad (5.18)$$

Para obtener un buen ajuste de la función $h(x)$ desarrollamos la expansión anterior al cuadragésimo orden ($n = 40$), mediante un polinomio de Taylor. La envolvente del pulso $f(t)$, que se utilizó para realizar los estudios fue la siguiente

$$f(t) = \sin^2\left(\frac{\omega t}{2n_p}\right) \quad (5.19)$$

Donde n_p representa el número total de ciclos ópticos del pulso. Para realizar los cálculos se tomó a $n_p = 6$, esto representa un ancho del pulso de 3 ciclos ópticos (FWHM). El estudio del espectro de armónicos se realizó en Ar, por lo que el parámetro a se ajustó empleando el potencial del átomo dado por la ecuación (3.27). El ajuste se hizo de tal manera de hacer coincidir la energía del estado fundamental del Hamiltoniano 1D, con el potencial de ionización del Ar

($I_P = -15,76eV$), de esta manera este parámetro toma el valor de $a = 1,18$.

5.3. Resultados

Para estudiar la generación de armónicos por medio del campo inhomogeneo dado por la figura 5.2, vamos a considerar dos puntos espaciales en donde el electrón es ionizado por el campo eléctrico para luego ser recombinado en el mismo lugar. Estos son, el punto A que se encuentra en la posición $x = 0$ y el punto B que se encuentra en $x = 70(a.u.)$ (figura 5.2).

El estudio de la generación de armónicos, considerando al átomo en el punto A, se realiza para ver, de manera demostrativa, el comportamiento del cut-off con la longitud de onda. El punto B fue estudiado, ya que en esta posición es posible realizar una aproximación del campo a primer orden con una función lineal, descrita por la ecuación (5.1).

En la figura 5.2, se puede observar como el campo eléctrico en el punto A aumenta a ambos lados del mismo. Teniendo en cuenta que el electrón, cuando es ionizado va a experimentar un aumento del campo eléctrico con la posición. Este aumento se va a presentar cuando el electrón se ionice tanto para las coordenadas negativas como para las positivas, ya que el campo crece a ambos lados del punto A. Teniendo en mente lo anterior, se espera que el electrón al ser ionizado en el punto A genere un fotón mas energético (cut-off) al momento de recombinarse que si no existiera un campo inhomogeneo.

Como se ha mencionado anteriormente el cut-off depende de λ^2 en los casos donde el campo es homogéneo. Por otro lado, cuando se trabaja con longitudes de ondas más largas, el electrón viaja más tiempo en el continuo, recorre más distancia. Esto origina, que el paquete o función de onda del electrón se "disperse", disminuyendo la probabilidad de recombinación y de este modo la eficiencia de la generación de armónicos. Una manera de cuantificar el recorrido del electrón en un campo oscilante, es a través del *quiver radius* α_0 [38]. Este parámetro, que es proporcional a $\sqrt{I}\lambda^2$, es un promedio del recorrido de las trayectorias del electrón en el continuo. Como el electrón al aumentar la longitud de onda del láser viaja más distancia, es de esperar que en el campo inhomogeneo, representado por la figura 5.2, aumente su intensidad, de esta manera el electrón va a obtener

una mayor energía cinética al momento de recombinar. La situación anterior, está esquematizada por flechas punteadas de colores sobre el campo $h(x)$ (figura 5.2). De esta manera, si el electrón es ionizado en el punto A, se esperará que el comportamiento del cut-off ya no siga la ley anteriormente mencionada.

Siguiendo con el mismo razonamiento que el párrafo anterior, cuando el electrón es ionizado en el punto B (figura 5.2), este puede moverse hacia las coordenadas negativas o positivas. Como el electrón posee carga negativa, si es ionizado por la parte negativa del campo eléctrico, se va a mover hacia las coordenadas positivas. Por el contrario, si es ionizado por la parte positiva del campo eléctrico, va a moverse hacia las coordenadas negativas. Dependiendo de que zona del pulso ionice al electrón, este va a adquirir mayor o menor intensidad de campo que en el caso del campo homogéneo, ya que en las proximidades del punto B el campo crece en forma monótona. De esta manera, se esperará que la energía de recombinación esté influenciada por la región del pulso que ioniza al electrón.

Para corroborar los razonamientos seguidos en los párrafos anteriores, simulamos por medio del análisis clásico las energías de ionización-recombinación, la generación de armónicos en el punto B (figura 5.2). Las simulaciones fueron realizadas empleando una longitud de onda de 800 nm, con esta longitud de onda el movimiento del electrón se encuentra en las cercanías del punto B, en este caso se puede considerar la inhomogeneidad del campo como una función lineal de la forma (5.1). La intensidad utilizada fue de 10^{14} W/cm². Para tener un orden de magnitud del valor del desplazamiento del electrón alrededor del punto B, estimamos el valor del *quiver radius* a ± 16 a.u.

En la figura 5.3(a) se observa el pulso láser utilizado para realizar las simulaciones, la envolvente del mismo está descrita por la ecuación (5.19). Se utilizó un pulso de 3 ciclos de FWHM, correspondiente a $n_p = 6$.

La figura 5.3(b) muestra el análisis clásico de las energías de ionización-recombinación. Las flechas en colores en la figura 5.3(a) muestran la zona temporal del campo eléctrico, donde es ionizado y recombinado el electrón. A cada flecha en la figura 5.3(a) le corresponde una flecha del mismo color en los resultados presentados en la figura 5.3(b). Teniendo en cuenta lo comentado anteriormente, cuando el electrón es ionizado por la parte negativa del campo eléctrico, este se mueve hacia las coordenadas positivas. Como el campo es creciente en esa direc-

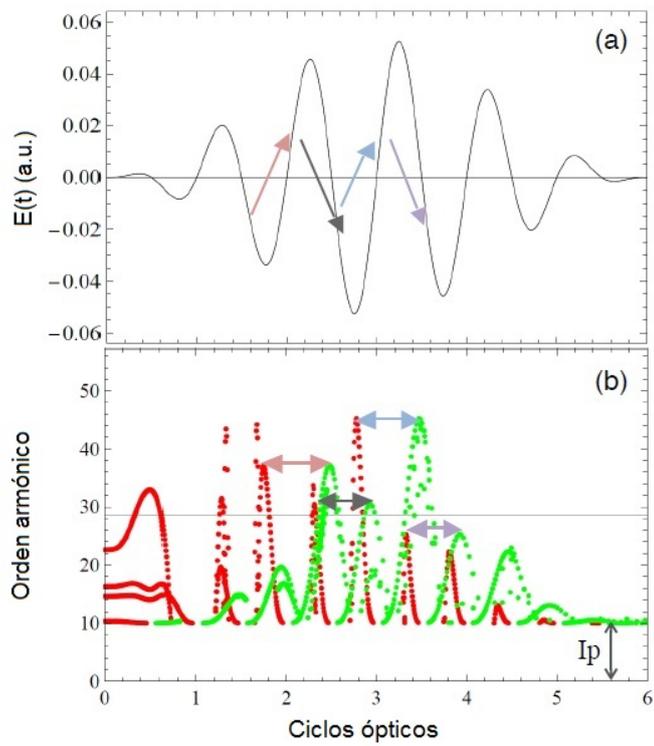


Figura 5.3: La figura (a) muestra el pulso láser utilizado para realizar las simulaciones, las flechas de colores indican la zona temporal donde el electrón es ionizado y recombinado. La figura (b) muestra los resultados clásicos obtenidos en el punto B, a cada flecha le corresponde otra flecha del mismo color en la figura (a).

ción el electrón va a experimentar una intensidad mayor. Por otro lado, cuando el electrón es ionizado por la parte positiva del campo (figura 5.3(a)), ocurre lo contrario.

Estos resultados pueden apreciarse en la figura 5.3(b), en donde se observa un "desdoblamiento" de las energías de ionización-recombinación. Esta es una de las diferencias entre campos homogéneos e inhomogéneos. Para observar un aumento del cut-off con respecto al caso homogéneo, es necesario tener en cuenta el sentido del movimiento del electrón o de manera equivalente en que región temporal es ionizado.

Para comprender mejor lo mencionado anteriormente, tomemos como ejemplo la parte del pulso que ioniza al electrón marcada con la flecha roja. Si miramos la figura 5.2, permite inferir que el electrón va a experimentar mayor intensidad ya que se mueve para el lado del campo creciente. Los resultados se muestran, también con flecha roja, en la figura 5.3(b). Por el contrario, cuando el electrón es ionizado en la zona marcada por la flecha negra, este va a disminuir su intensidad, los resultados se muestran también en la figura 5.3(b). Se observa claramente una diferencia de energías de recombinación para los dos casos, el *rojo* genera un fotón mas energético que el *negro*. Si no existiera un campo inhomogéneo las dos energías de recombinación serian prácticamente iguales. Resultados similares fueron presentados por Shaaran y colaboradores [98].

El estudio de la HHG cuando el electrón es ionizado en el punto B, fue realizado para avalar las hipótesis sobre el movimiento del electrón en el continuo en un campo inhomogéneo. A continuación se presentará un estudio del comportamiento del cut-off a medida que la longitud de onda del láser, que excita a la nanopartícula, varia. El estudio se realizó en el punto A ($x=0$) de la figura 5.2, en donde el campo eléctrico crece a ambos lados del mismo. La intensidad en dicho punto es de 10^{14} w/cm² y el pulso utilizado es el dado por la figura 5.3(a).

Para estudiar la variación del cut-off con λ , se realizaron cuatro simulaciones mediante la ecuación 1D-TDSE con los siguientes valores de λ ; 800, 1100, 1300 y 1500nm. Los resultados de los espectros de armónicos se observan en la figura 5.4. Se puede apreciar que a medida que la longitud de onda del láser aumenta, se generan fotones cada vez mas energéticos (cut-off). Esto está de acuerdo en un aumento del cut-off con la longitud de onda, como se ha comentado anteriormente.

Sin embargo si se observa con mas detalle, el aumento del cut-off originado por la variación de λ sobrepasa al dado por la ley del cut-off (3.7). Para $\lambda = 800\text{nm}$ figura 5.4(a), no existe una diferencia de energías apreciable con relación al caso homogéneo. Esto es debido, a la pequeña variación espacial que experimenta el electrón en el continuo a esa longitud de onda. Si se observa la figura 5.2, en las cercanías del punto A el campo eléctrico no cambia de forma apreciable. Por el contrario para $\lambda = 1100, 1300, 1500\text{nm}$ (figura (b), (c) y (d)), se observa un notable apartamiento de la ley del cut-off, pues se obtienen energías, en función de la energía ponderomotriz U_P , cada vez más elevadas, $5,17U_P$, $8,47U_P$ y $9,8U_P$ respectivamente. Estos resultados se pueden interpretar teniendo en cuenta que el electron pasa mas tiempo en el continuo (se aleja mas del punto de ionización) a longitudes de ondas largas, lo que origina que experimente un campo eléctrico cada vez mayor (Figura 5.2). Los resultados anteriores muestran un apartamiento claro con respecto de la ley del cut-off.

Para complementar estos resultados, se ha realizado un análisis clásico, por medio de la integración de las ecuaciones de Newton, de las energías de ionización-recombinación para los mismos parámetros. Estos resultados se presentan en la figura 5.5, se observa una excelente concordancia con los resultados obtenidos por medio de la ecuación 1D-TDSE. Con estos resultados, se pone de manifiesto la simplicidad y exactitud del modelo de los tres pasos, para describir el proceso de HHG bajo distintos campos de excitación.

A continuación (figura 5.6) se estudió la dependencia del cut-off con la longitud de onda del láser λ , para un gran intervalo de valores, que van desde $0,7\mu\text{m}$ a $4\mu\text{m}$. Los cálculos realizados fueron llevados a cabo a través del análisis clásico, ya que como se mostró en las figuras 5.4 y 5.5, los resultados clásicos y cuánticos presentan una gran concordancia.

En la figura 5.6 se presentan los resultados obtenidos. Se pueden observar cuatro regiones bien diferentes (I-IV), en cuanto al comportamiento del cut-off con λ . Con línea negra se representa el comportamiento inhomogéneo y en líneas rojas el comportamiento homogéneo. En la región I, hasta una longitud de onda de 1100nm , el comportamiento del cut-off es similar al caso homogéneo (λ^2). Esto es debido al pequeño desplazamiento que presenta el electrón, alrededor del punto de ionización, para esas longitudes de onda. En la región II, se observa un brusco

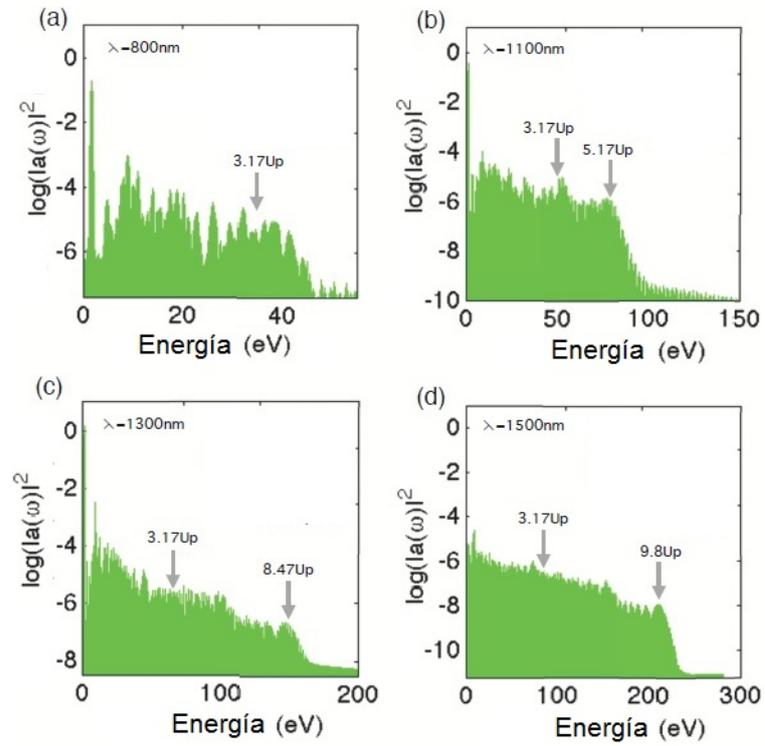


Figura 5.4: Simulaciones cuánticas realizadas bajo la ecuación 1D-TDSE utilizando el pulso representado por la figura 5.3(a). Se muestra los espectros de armónicos para las cuatro longitudes de onda λ utilizadas: (a)800nm, (b)1100nm, (c)1300nm, (d)1500nm. La intensidad del láser empleada fue de 10^{14} W/cm^2 .

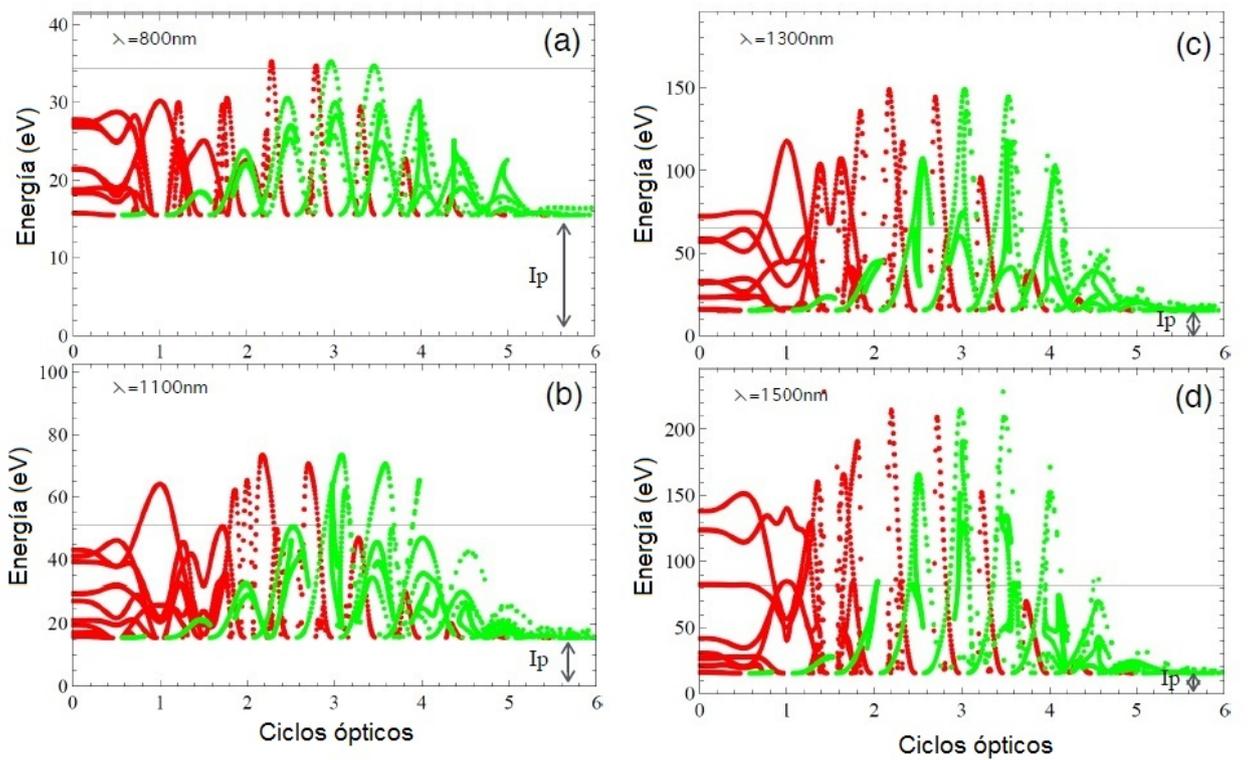


Figura 5.5: Simulaciones clásicas de energías de ionización (rojo) y recombinación (verde), para los mismos parámetros que las simulaciones cuánticas, figura 5.4. Se puede observar en cada gráfica, la línea negra que representa el cut-off del campo homogéneo.

aumento del cut-off con λ , esta dependencia está en el orden de λ^3 . Los resultados de esta región ya fueron presentados en la figura 5.4 y se originan por el aumento del campo eléctrico a medida que el electrón recorre mas distancia en el continuo. La región III (de 1600nm a 3000nm), aunque muestra un aumento del cut-off con respecto al caso homogéneo, la dependencia con λ es menor que la dada por la ley del cut-off (3.7). Para entender este comportamiento, tenemos que remitirnos a la figura 5.2. En la misma podemos ver que la función $h(x)$ está delimitada, alcanza un máximo en cierta posición ($\sim \pm 125$ a.u.), para luego decrecer de manera exponencial. Esto origina un cierto limite o valor máximo en la energía que puede adquirir el electrón. De esta manera, a medida que aumenta la longitud de onda, las trayectorias de los electrones en el continuo ya no presentan el mismo comportamiento que para el caso homogéneo.

Finalmente se muestra la región IV, definida para λ mayores a 3000nm, se puede apreciar que el cut-off alcanza un valor asintótico o de saturación. Para comprender el origen del comportamiento de esta región se realizó un análisis clásico de las trayectorias de los electrones, para dos longitudes de ondas; $\lambda=3000$ nm y $\lambda=4000$ nm. Los resultados se presentan en las figuras 5.7 (a) y 5.7(b) respectivamente. Como puede verse de las mismas solo una porción menor de las trayectorias recombinan (vuelven a la posición original, $x=0$). Esto significa que la eficiencia de la HHG para grandes longitudes de ondas, bajo este campo inhomogeneo, será muy baja. Esto podría beneficiar a un fenómeno conocido en ingles como above-threshold ionization (ATI), este fenómeno estudia el comportamiento de las trayectorias que no recombinan [77].

Observando las figuras 5.7, vemos que aparece un hecho muy llamativo en el comportamiento de las trayectorias que recombinan. Estas nunca superan un valor aproximado de ± 200 a.u. Este umbral es independiente de la longitud de onda de láser empleada para excitar a la nano-estructura y esta estrechamente relacionado con las características de la función $h(x)$. En la figura 5.2, en líneas punteadas negras, se señala la región espacial que confina a los electrones. Estos resultados marcan una gran diferencia con respecto a la generación de armónicos con campos homogéneos, en donde el desplazamiento del electrón era proporcional a λ^2 (quiver radius α_0).

Por medio del párrafo anterior, el valor máximo de la energía que alcanza

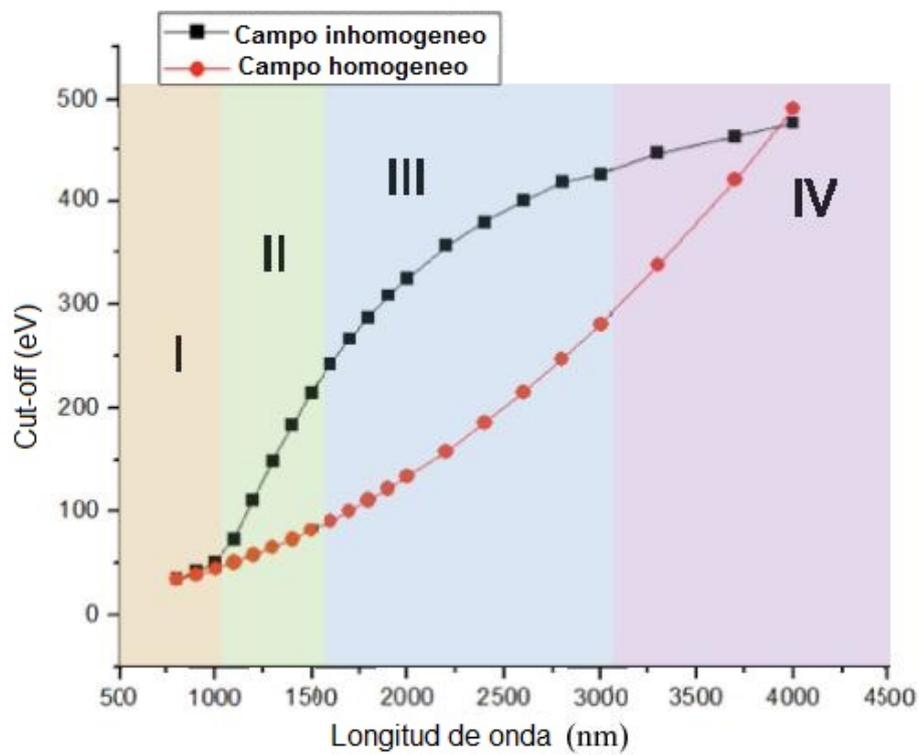


Figura 5.6: Dependencia de cut-off como función de la longitud de onda λ , mediante el análisis clásico de las energías para el campo inhomogeneo (negro). En línea roja se muestra el comportamiento de la ley clásica del cut-off (3.7).

la HHG (región IV), queda explicado por el confinamiento que sufre el electrón a través del campo eléctrico acotado espacialmente. En el caso homogéneo, no existe un confinamiento espacial y la energía de la radiación depende, como se ha mencionado antes, de λ^2 . Para el campo eléctrico $h(x)$ estudiado, el máximo valor en la energía de la radiación toma un valor aproximado de 500eV.

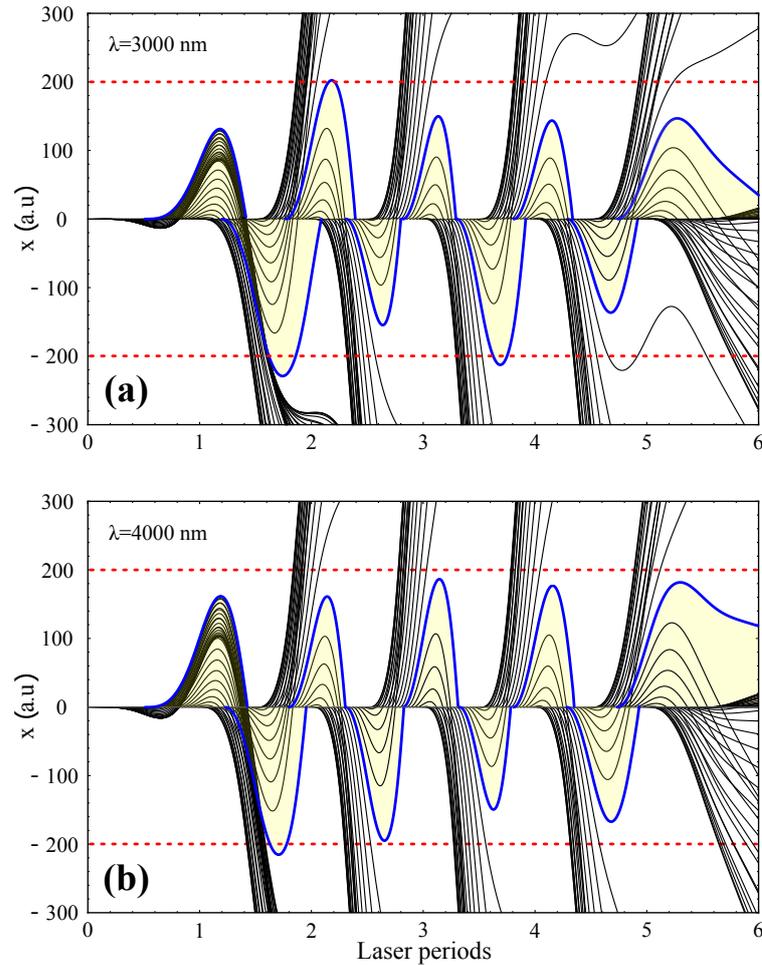


Figura 5.7: Análisis clásico de las trayectorias para el campo inhomogéneo. La figura (a) muestra los resultados para $\lambda = 3000nm$ y la figura (b) el caso para $\lambda = 4000nm$. Se observa que las trayectorias que recombinan nunca superan, aproximadamente, el rango espacial $\pm 200a.u.$.

5.4. Discusión y Conclusiones

En este capítulo se ha estudiado teóricamente la generación de armónicos en átomos de argón, por medio del campo eléctrico producido por una nano-estructura de oro, al ser excitada por un pulso láser de algunos ciclos ópticos.

En este análisis, se utilizó una aproximación que posee un buen grado de exactitud del refuerzo de campo cercano creado por la nano-estructura de oro tipo moño. Esta aproximación (figura 5.2), permitió deducir de manera cualitativa, el comportamiento de las trayectorias de los electrones luego de ser ionizados por el campo. De esta manera, se pudo vislumbrar ciertos aspectos de la generación de armónicos bajo campos inhomogéneos, que permanecían ocultos utilizando una aproximación a primer orden del refuerzo de campo (5.1).

El primer análisis, se realizó teniendo en cuenta el punto B en la figura 5.2. Este punto, iluminado con determinadas longitudes de ondas (quiver radius α_0), puede ser considerado como una función lineal de la forma (5.1). A través de este análisis, pudimos reproducir resultados ya publicados por Shaaran *et.al.* [98], en donde se originaba un *desdoblamiento* de las energías de ionización-recombinación por medio de un análisis de las *quantum-orbit*. Este fenómeno depende de la región temporal del pulso donde se ioniza el electrón. Por otro lado, este análisis permitió corroborar nuestra idea cualitativa del comportamiento de las trayectoria de los electrones bajo campos inhomogéneos.

El segundo análisis fue realizado en el punto A de la figura 5.2, en la posición $x=0$. Se analizó el comportamiento del cut-off con la longitud de onda central del pulso láser λ , que excita a la nano-partícula. Los resultados que se obtuvieron presentan un gran apartamiento de la ley del cut-off dado por la ecuación (3.7). Para una cierto intervalo de λ , que va de 1100nm a 1600nm, se observa que el cut-off escala con λ^3 . Para explicar este comportamiento, se debe tener en cuenta el incremento del campo eléctrico producido a ambos lados del punto A. El siguiente resultado importante que se obtuvo mediante el análisis, fue que las trayectorias de los electrones que recombinan están confinadas espacialmente, independientemente de la longitud de onda de excitación. Este confinamiento, se origina por las características del campo $h(x)$ dado figura 5.2, en donde existe una limitación espacial del mismo.

En conclusión, se han obtenidos resultados nuevos en la generación de armónicos bajo campos inhomogéneos. Estos resultados se originan teniendo en cuenta un mejor ajuste del refuerzo de campo generado por la nano-estructura. Por un lado, por primera vez, se ha mostrado que el cut-off puede escalar con una longitud de onda mayor que λ^2 . Por otro lado, en campos inhomogéneos generados por nano-estructuras, las trayectorias de los electrones que recombinan están limitadas espacialmente. Esta limitación o confinamiento, es independiente de la longitud de onda de excitación y depende fuertemente de las características del campo de la nano-estructura $h(x)$.

Capítulo 6

Síntesis de un pulso de un ciclo para la generación de armónicos

En los últimos años, se ha logrado un gran avance en la generación de pulsos, de alrededor de dos ciclos de FWHM, para el estudio de la HHG. Estos pulsos poseen longitudes de ondas entre $0.8\text{-}2\ \mu\text{m}$ [103–107]. El interés en generar pulsos de longitudes de onda largas, es que permite obtener fotones más energéticos (ecuación (3.7)). La desventaja de utilizar estas longitudes de onda en el proceso de la HHG, es que la eficiencia de la generación decrece como $\lambda^{-5,5}$ [72, 73].

Por otro lado, la posibilidad de generar pulsos de pocos ciclos, permite la obtención de pulsos de attosegundos aislados, como se explicará en la sección siguiente. Estos pulsos aislados son indispensable, si se desea realizar experimentos cronológicos del comportamiento de distintos fenómenos naturales [21–24].

En este capítulo, proponemos la síntesis de cuatro pulsos de aproximadamente un ciclo óptico de FWHM, para el estudio de la HHG. Estos pulsos, sobre el espectro de armónicos, van a presentar ventajas tanto en la eficiencia del proceso como en la obtención de fotones mas energéticos. Para lograr esta síntesis, proponemos un esquema experimental (interferómetro de dos ramas) donde un pulso gaussiano de una longitud de onda λ_0 inicial, es dividido en dos pulsos de igual amplitud. Estos pulsos, en cada rama, atraviesan diferentes medios dispersivos hasta sumarse de nuevo. Por otro lado, cada uno de estos pulsos, antes de reencontrarse, son reflejados por espejos que van a diferir en numero en su paridad.

De esta manera, se logra un desfase entre los pulsos de π .

Los cuatro pulsos sintetizados, van a poseer cierta *asimetría* en un ciclo del pulso. Esto quiere decir, que la región temporal que ioniza al electrón va a ser diferente a la que permite la recombinación. Esta *asimetría*, causa un comportamiento diferente en las trayectorias de los electrones que recombinan, en relación a un pulso sinusoidal puro. En varios trabajos previos, se han propuesto diferentes síntesis de pulsos que poseen *asimetría* en un ciclo [34, 35, 108]. En esos trabajos se presenta una mejora en la eficiencia de la generación de HHG, como así también un aumento del cut-off. Un caso especial es el trabajo *Ideal Waveform* o *Perfect Wave* [109], en donde se propone un pulso *ideal*, que origina la trayectoria de recombinación más energética posible en un ciclo. Este trabajo fue corroborado experimentalmente, mediante una mezcla de pulsos con diferentes frecuencias [110].

El estudio de la HHG con los pulsos sintetizados, se llevará a cabo mediante la resolución de la ecuación de Schrödinger 3D-TDSE en átomos de Ar, como así también por medio de un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación y un análisis Wavelet de la radiación emitida.

6.1. Generación de armónicos con pulsos de pocos ciclos: Attosegundos

Cuando se trabaja con pulsos muy cortos, es decir, de algunos pocos ciclos ópticos de FWHM en la generación de armónicos, es necesario que los mismos poseen la fase estabilizada. Esta técnica de control de la fase del pulso (CEP), fue descrita en la sección 2.1.2. Si la CEP entre un pulso y el siguiente, a la hora de interactuar con el gas no estuviera controlada, la interacción de dos pulsos consecutivos sería diferente, por lo que el espectro de armónicos presentaría variaciones [111, 112].

La importancia de trabajar con pulsos de pocos ciclos en la HHG, es la posibilidad de generar pulsos de attosegundos ($10^{-18}s$) aislados. Los pulsos de varios ciclos ópticos, originan un tren de pulsos de attosegundos cada medio ciclo del pulso láser. Esto queda evidenciando en la ecuación (3.16), en donde se originan

varios eventos (emisión armónica), ya que el pulso posee varios ciclos.

Al tener un pulso de pocos ciclos, se originaran pocos eventos de emisión armónica, de modo que dependiendo del pulso podrían ser: dos, tres o cuatro, según el caso. Esto origina una estructura de interferencia de la radiación no tan definida como en el caso de un pulso de varios ciclos, por lo que el espectro de armónicos, presentará una región continua de radiación.

Para entender mejor el análisis anterior, en la figura 6.1 se presentan gráficamente los dos ejemplos mencionados. En la parte superior se observa un espectro de armónicos originado con un pulso de varios ciclos ópticos, donde es posible apreciar que los armónicos quedan bien diferenciados (picos impares). A la derecha de la imagen, se muestra la Transformada de Fourier del espectro de armónicos, en donde se visualiza el tren de pulsos de attosegundos resultante. Estos pulsos ocurren cada medio ciclo del láser. Por el contrario, en las figuras de abajo, se muestra el espectro de armónicos obtenido por un pulso de pocos ciclos. De esta figura, se observa que en la región del cut-off el espectro es continuo. Esta particularidad implica, que ocurre solo un evento de ionización-recombinación en el proceso de generación, que origina la máxima energía del fotón (desaparece la estructura de interferencia).

Para obtener un pulso de attosegundos aislado, no alcanza solamente con generar la radiación mediante pulsos de pocos ciclos. Lo que ocurre es que a ordenes bajos, el espectro contiene picos bien definidos. Para sortear este problema, se utiliza un filtro espectral pasaalto, sintonizado en la región donde el espectro de armónicos es un continuo (línea continua roja en la figura 6.1) [24]. Este filtro, generalmente suele ser una película de aluminio o zirconio [113, 114]. Luego de filtrar el espectro, a la derecha de la figura se observa el pulso de attosegundos aislado.

6.2. Síntesis de los pulsos

Para la síntesis de los pulsos, se propone el esquema experimental mostrado en la figura 6.2 (a). En la misma, se observa la suma de dos pulsos con diferentes grado de chirp dado por la GVD y un desfase entre ellos de π . Para realizar el estudio, se sintetizaron cuatro pulsos variando el grado y el signo del chirp.

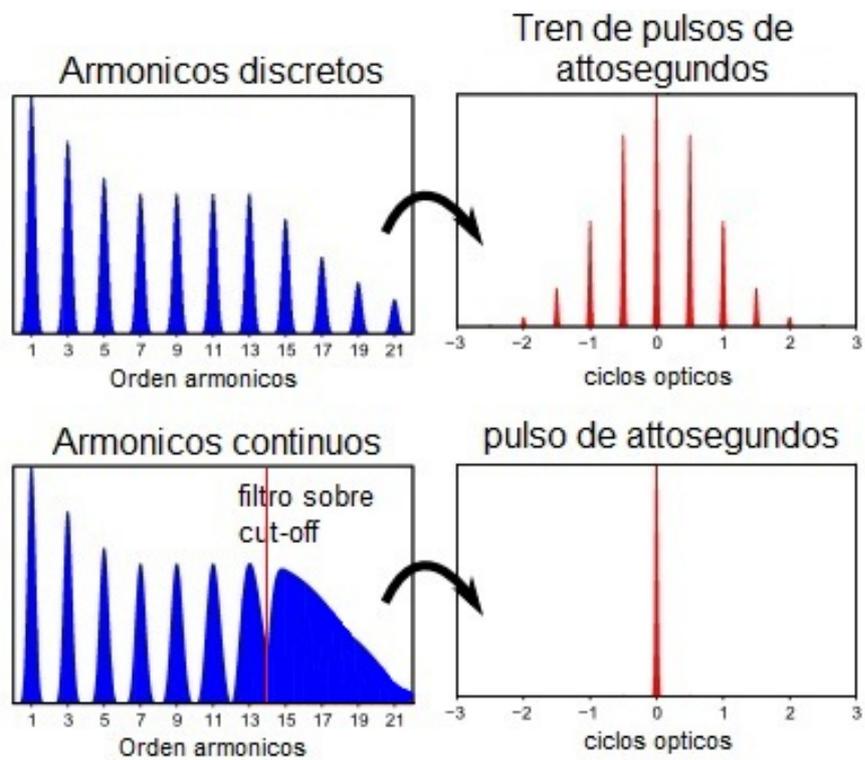


Figura 6.1: Espectro de armónicos obtenidos con pulsos con diferentes anchos temporales. Las imágenes superiores muestran un espectro obtenido por un pulso de varios ciclos, como así también su TF (tren de attosegundos). La imágenes inferiores, muestran la síntesis de un pulso de attosegundo, obtenido por medio de un pulso de pocos ciclos. En línea roja se señala la región espectral que fue filtrada (filtro pasa-alto).

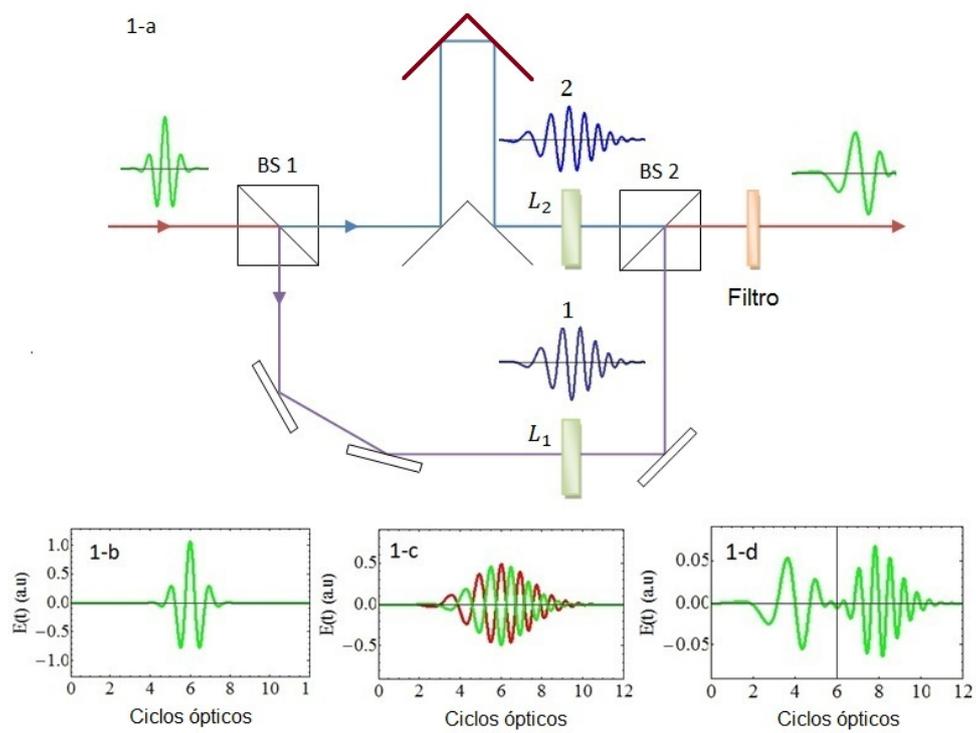


Figura 6.2: (a) Esquema experimental propuesto para la síntesis de los pulsos. (b) pulso inicial, (c) superposición de dos pulsos que originan la síntesis, (d) síntesis del pulso antes de atravesar un filtro espectral.

Inicialmente, se tiene un pulso Gaussiano de un ciclo óptico de FWHM y una longitud de onda λ_0 (figura 6.2(b)). Este pulso, es dividido en dos pulsos de igual amplitud, por medio de un beam splitter (BS1), pulso 1 y pulso 2. El pulso 1 atraviesa un medio dispersivo de longitud L_1 y es reflejado por medio de un numero impar de espejos. El pulso 2, atraviesa un medio de longitud L_2 y recorre la misma distancia que el pulso 1, pero es reflejado por un numero par de espejos (en magenta se muestra un espejo móvil, que permite ajustar los caminos de las ramas). Esta disparidad entre el numero de espejos, origina un cambio de fase en π entre ellos. Finalmente, los pulsos son nuevamente superpuestos sobre un segundo beam splitter (BS2). Esta superposición se esquematiza en la figura 6.2(c). En la figura 6.2(d), se muestra la suma real de los dos pulsos. En la misma, se observan dos zonas temporales bien definidas, con diferentes longitudes de onda. La particularidad obtenida en el pulso resultante es consecuencia del chirp que se introdujo en los pulsos mediante los diferentes medios dispersivos. La primera zona temporal, posee una longitud de onda aproximada de $\lambda = 1,5\lambda_0$. La segunda zona, posee una longitud de onda menor que λ_0 , pero para el caso de nuestro estudio no es relevante, ya que, siguiendo la ley del cut-off, las longitudes de ondas bajas generan fotones menos energéticos. De todos modos, para prescindir de las altas frecuencias, proponemos incluir un filtro espectral *ideal*, de tal manera que filtre estas longitudes de ondas cortas.

En la figura 6.3(a), se presenta el análisis tiempo-frecuencia (Wavelet) del pulso (figura 6.3(c)). El eje de las ordenadas corresponde a la frecuencia en unidades arbitrarias, mientras sobre el eje de las abscisas se representa el tiempo, en ciclos ópticos. De esta manera, mediante la figura 6.3(a), se puede observar claramente las diferentes regiones temporales del pulso y sus respectivas frecuencias. En la Figura 6.3(b), se muestra el filtro ideal (línea punteada roja), sobre el análisis wavelet. Dado que los dos pulsos poseen un gran ancho de banda, sus espectros se superponen, y no es posible filtrar totalmente la región temporal de altas frecuencias, sin afectar a la región de bajas frecuencias. El pulso resultante, luego de ser filtrado, se presenta en líneas rojas en la figura 6.3(d). En el mismo, se observa una clara disminución de la amplitud del campo en la región de altas frecuencias. El campo eléctrico en esta región, no posee suficiente amplitud para ionizar al átomo por efecto túnel, efecto que ya fue presentado en la figura 4.7.

De esta manera, la región de altas frecuencias no va a influir en el espectro de armónicos.

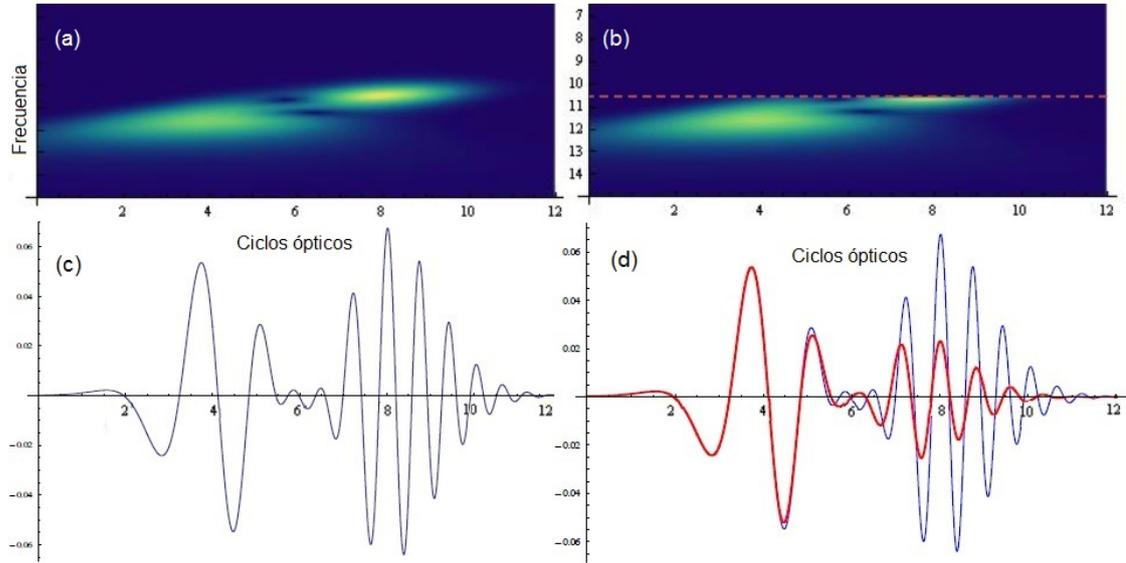


Figura 6.3: Pulso sintetizado y su análisis wavelet (izquierda). Las imágenes a la derecha, muestran el filtro espectral (línea punteada roja) sobre el análisis wavelet y el pulso luego de ser filtrado (rojo).

Teniendo en cuenta lo discutido en el párrafo anterior, las simulaciones con los diferentes pulsos sintetizados se realizarán en la ventana temporal que presenta las frecuencias mas bajas. Los cuatro pulsos sintetizados se muestran en la figura 6.4. Cada uno de estos pulsos, se obtuvo variando las longitudes de los medios dispersivo L_1 y L_2 , y el signo del chirp. El medio dispersivo para realizar los cálculos en este caso, corresponde a un vidrio de SF14. Para los pulsos mostrados por las figuras 6.4(a) y (b), las diferentes longitudes del medio fueron $L_1=25 \mu m$ y $L_2=30 \mu m$. El signo del chirp para el pulso (a) fue positivo y para el pulso (b) negativo. Para los pulsos representados en (c) y (d), las longitudes utilizadas para el calculo fueron $L_1=20 \mu m$ y $L_2=30 \mu m$, mientras que la variación en el signo del chirp, se efectuó de la misma manera que en (a) y (b).

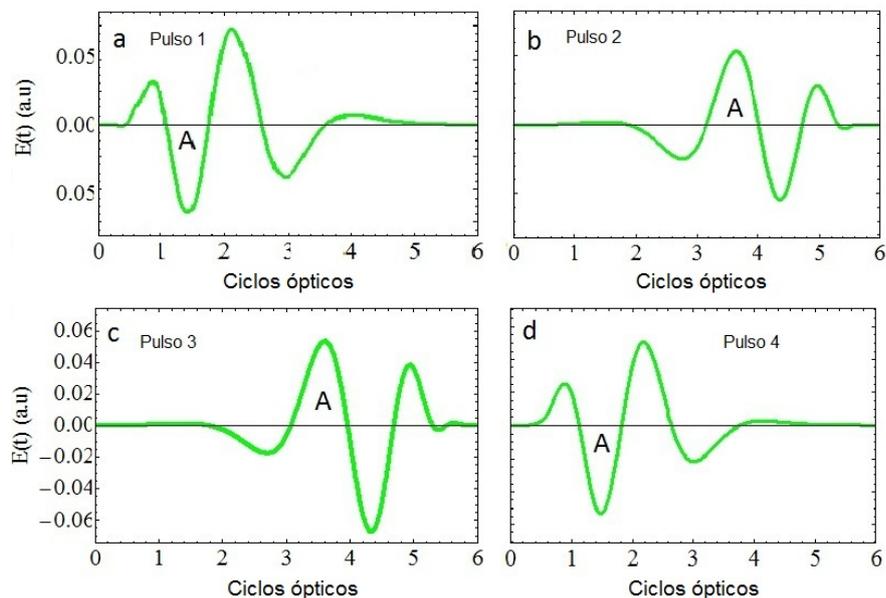


Figura 6.4: Los cuatro pulsos sintetizado para el estudio de la generación de armónicos.

6.3. Resultados

El proceso propuesto de síntesis de los pulsos no necesita de un medio no-lineal para su obtención, por lo que la intensidad de los pulsos no es un parámetro relevante. Para estudiar la generación de armónicos, se fijó el valor del campo en 0.053 a.u., que corresponde a la región A (figura 6.4) en los pulsos. En estas regiones temporales, el átomo es ionizado, mientras que en la otra región, el electrón es recombinado emitiendo un fotón. El valor de la amplitud máxima de campo propuesto, corresponde a una intensidad de $10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$.

Los resultados obtenidos por medio de la ecuación de Schrödinger (3D-TDSE), pueden observarse en la figura 6.5. En la misma, en rojo, se observa el espectro de armónicos obtenido por medio de los pulsos de la figura 6.4. Al pulso de la figura 6.4(a), le corresponde el espectro de la figura 6.5(a), los demás espectros, representados en las figuras (b), (c) y (d) siguen la misma relación. También, en la figura 6.5(a), se muestra en negro el espectro de armónicos correspondiente al pulso *original* (800 nm) a la misma intensidad que los pulsos sintetizados,

$10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$. Se observa en todos los espectros, un notable incremento del cut-off en relación al pulso con una longitud de onda de 800 nm (rojo). Este resultado es de esperarse, ya que siguiendo la ley del cut-off (3.7), los pulsos que fueron sintetizados poseen una longitud de onda aproximada de $\lambda \simeq 1,5\lambda_0$, correspondiente a $\lambda=1200$ nm. Es de destacar, que los espectros obtenidos por los pulsos 1 y 3 poseen un incremento en el cut-off, que excede al estimado para un pulso con una longitud de onda de $\lambda=1200$ nm. Esto es consecuencia, de la *asimetría* entre la región del pulso que ioniza al átomo, con respecto a la región que permite la recombinación.

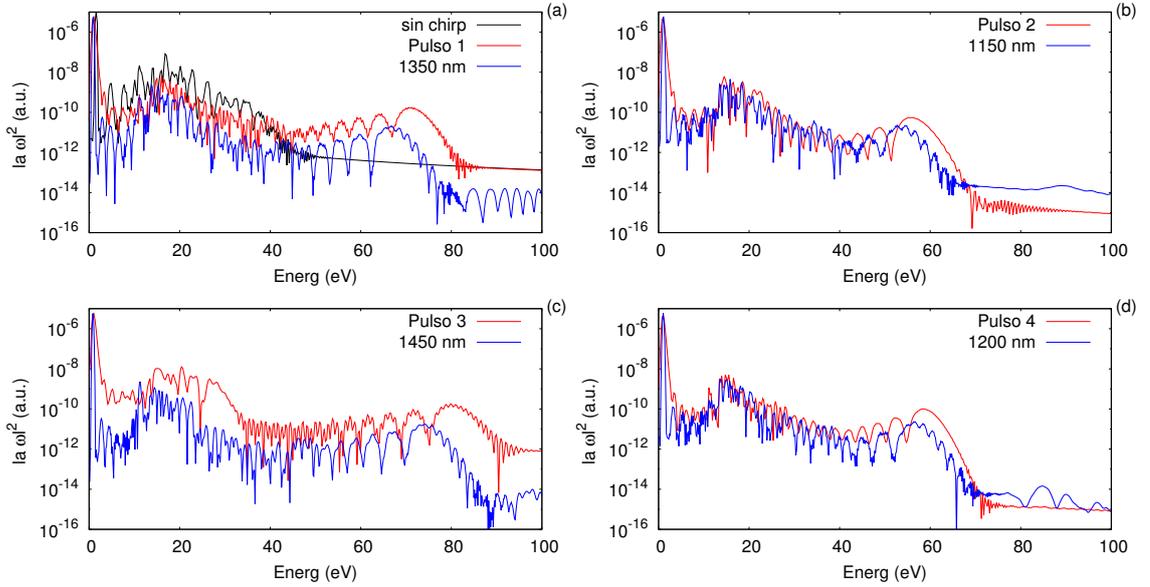


Figura 6.5: Espectro de armónicos obtenidos por medio de la ecuación 3D-TDSE, para los cuatro pulsos sintetizados (rojo). En azul, se observan los espectros equivalentes que originan el mismo cut-off. En negro (a), se muestra el espectro de armónicos para $\lambda = 800\text{nm}$.

Por otro lado, se analizó la eficiencia de la generación de armónicos, para los pulsos sintetizados. Para lograr esto, se comparó la eficiencia de cada uno de los espectros obtenidos, por un espectro equivalente. La *equivalencia* de los diferentes espectros se obtuvo, comparando el cut-off que genera un pulso sinusoidal, a una determinada longitud de onda, con el obtenido por el pulso sintetizado. Esto se

realizó, por simple inspección, mediante el análisis clásico de las energías para cada uno de los casos.

Cada uno de estos espectros a longitud de onda fija, se muestran en azul en la figura 6.5. Se observa, que todos los pulsos sintetizados poseen una mayor eficiencia que sus pulsos equivalentes. Es de destacar, que para los pulso 1 y 3, que son los pulsos que poseen un cut-off mas elevado, la eficiencia es mayor, estando su mejoría en alrededor de un orden de magnitud respecto a sus pulsos equivalentes.

Para explicar la mejora en la eficiencia de la generación de armónicos para los pulsos sintetizados propuestos, se analizó el tiempo de vuelo del electrón en el continuo τ_V por medio del análisis clásico de las energías de ionización-recombinación. Es bien sabido que la eficiencia depende de la *dispersión* que sufre el paquete de ondas en el continuo. Esta dispersión está estrechamente ligada al tiempo de vuelo $\tau_V \propto \lambda$ [110]. Cuando el electrón pasa mas tiempo en el continuo, la probabilidad de que ocurra la recombinación es menor. En general, la eficiencia de la generación depende de $\lambda^{-5.5}$. Los resultados del análisis clásico se muestran en la figura 6.6. En puntos rojos se muestra el instante donde el electrón es ionizado y en verde donde es recombinado. El tiempo está expresado en ciclos ópticos a una longitud de onda de 800 nm, que corresponde a 2.66 fs. Se observa, de estos resultados, una clara correspondencia con los resultados cuánticos, presentados previamente en la figura 6.5.

Los estudios de la eficiencia, fueron realizados considerando el tiempo de vuelo de las trayectorias que generan el cut-off, que se indica con flechas en la figura 6.6. Estos tiempos de vuelo, fueron comparados con los correspondientes tiempos de vuelo de las trayectorias de los pulsos equivalentes. Para un pulso sinusoidal puro, el tiempo de vuelo de la trayectoria mas energética, es aproximadamente $\tau_V = 0,75T$, siendo T el periodo del pulso (figura 3.6).

En la tabla 6.1, se muestran los tiempos de vuelo para todos los pulsos estudiados, tanto los sintetizados como sus equivalentes. Se observa, que los tiempos de vuelo para los pulsos sintetizados siempre son menores que los dados por los pulsos equivalentes. Particularmente, los pulsos 1 y 3, muestran una mejor eficiencia en relación a sus pulsos equivalentes (figura 6.5), ya que los tiempos de vuelo difieren de forma apreciable. Esta diferencia de los tiempos de vuelo, explica la

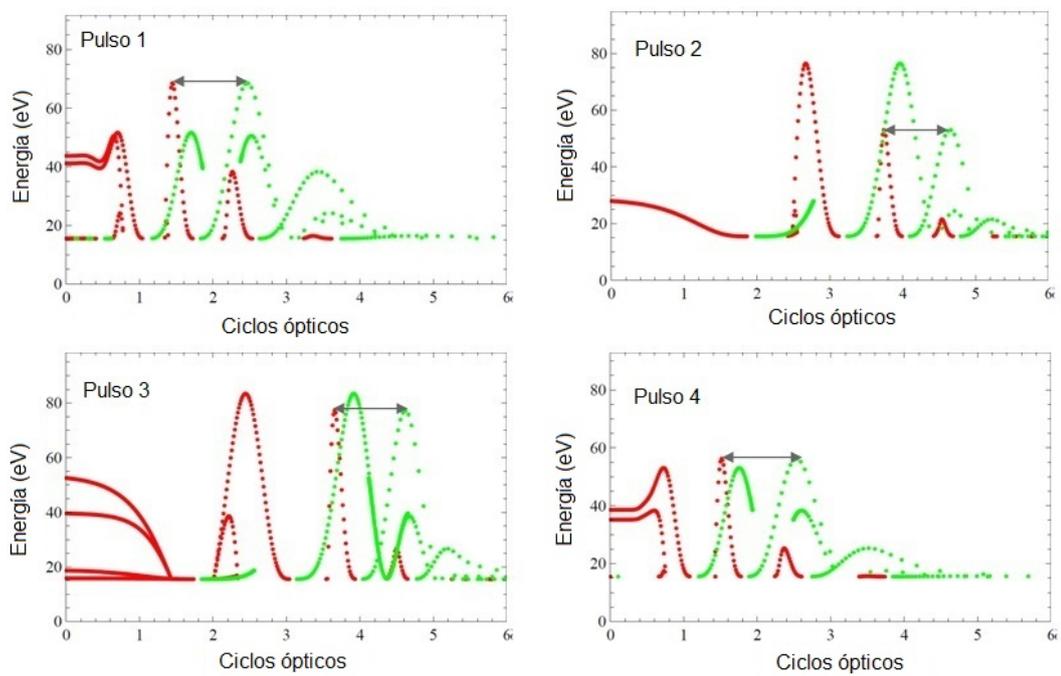


Figura 6.6: Análisis clásico de las energías de ionización-recombinación para los cuatro pulsos sintetizados. La flecha negra en cada imagen, indica el tiempo de vuelo τ_V .

mejora en la eficiencia del espectro de armónico, para los pulsos sintetizados.

$\tau_V(fs)$	Pulsos sintetizados	Pulsos equivalentes
Pulso 1 \equiv 1350nm	2.70 fs	3.29 fs
Pulso 2 \equiv 1150nm	2.33 fs	2.80 fs
Pulso 3 \equiv 1450nm	2.38 fs	3.53 fs
Pulso 4 \equiv 1200nm	2.68 fs	2.93 fs

Tabla 6.1: Tiempos de vuelos de las trayectorias (cut-off), para los pulsos sintetizados y equivalentes

Por otro lado, se ha realizado un análisis wavelet de la radiación armónica emitida. Los resultados se muestran en la figura 6.7. En escala de colores, se representa la intensidad de la radiación armónica emitida. Este análisis permite ver el instante donde se emiten los fotones con diferentes energías. En línea negra, se superponen los diferentes análisis clásicos de las energías de recombinación. Se observa, una gran concordancia con los resultados presentados por el análisis cuántico (figura 6.5).

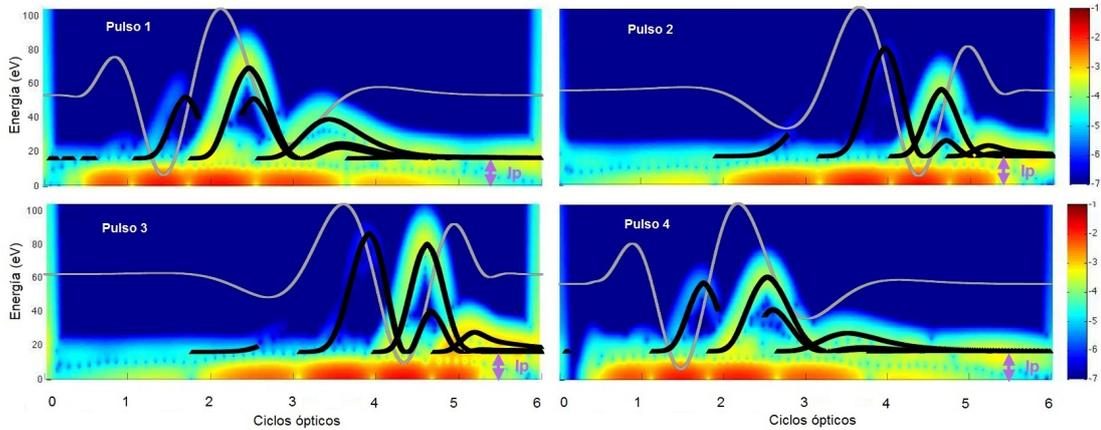


Figura 6.7: Análisis Wavelet de la HHG, para los cuatro pulsos sintetizados.

Por último, como corolario, se presenta en la figura 6.8 los pulsos de attosegundos obtenidos por medio de los espectros de armónicos generados por los pulsos 1 y 3, que mostraron una extensión del cut-off mayor, como así también una mejor eficiencia. En las figuras 6.8(a) y 6.8(b), se muestran los espectros de

armónicos obtenidos por los pulsos 1 y 3 respectivamente. El filtro espectral (región azul) se encuentra en la región continua de máxima energía, ya que como se comentó en la sección 6.1, es necesario un espectro continuo para obtener un pulso de attosegundos aislado. Las figuras 6.8(c) y 6.8(d), muestran los pulsos 1 y 3, la intensidad de los pulsos de attosegundos y el instante donde son emitidos. Si se observa en detalle la figura 6.7 (pulsos 1 y 3), se aprecia que los tiempos en donde la radiación armónica (que genera los fotones más energéticos) es emitida, corresponden al instante en que los pulsos de attosegundos son generados.

Por otro lado, el ancho temporal de los pulsos de attosegundos (representados en azul en las figuras 6.8(c) y (d)) varía notablemente de un espectro al otro. Para el primer espectro, se obtuvo un pulso de 490 as de FWHM y para el segundo espectro un pulso de 260 as de FWHM. En principio, esto es debido al mayor ancho espectral que se obtiene en el espectro de armónicos representado en la figura 6.8(b) en relación al espectro dado por la figura 6.8(a). Es de destacar, que los pulsos presentados están limitados por Transformada de Fourier. Un estudio más detallado debería tener en cuenta la fase y el chirp intrínseco que poseen los pulsos de attosegundos por las características de su generación [115, 116], pero este estudio escapa a los objetivos de la presente tesis.

6.4. Discusión y Conclusiones

En este capítulo, se presentó una técnica que permite sintetizar cuatro pulsos de aproximadamente un ciclo óptico y cierto grado de chirp. Estos pulsos fueron utilizados, para estudiar las características del espectro de HHG en argón, mediante un análisis cuántico (ecuación 3D-TDSE y análisis Wavelet) y un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación.

Para obtener los diferentes pulsos, se propuso un pulso inicial gaussiano, de una longitud de onda λ_0 y un ancho temporal de un ciclo óptico (FWHM). Mediante un beam splitter, los pulsos fueron separados en dos pulsos (pulso 1 y pulso 2) de igual amplitud, para luego atravesar un conjunto de espejos y medios dispersivos. Luego de recorrer la misma distancia, los pulsos se "sumaron" nuevamente. El número de espejos para cada pulso (1 y 2) debía diferir en su paridad, de esta manera, se lograba un cambio de fase en π entre ellos. Los pulsos sintetizados,

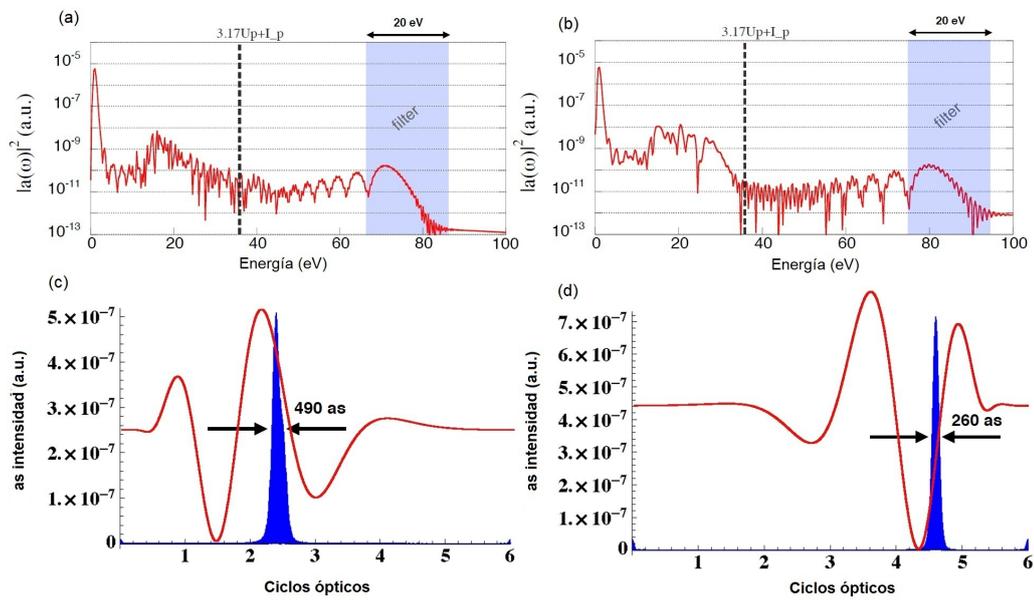


Figura 6.8: Las figuras (a) y (b) muestran los espectros de armónicos obtenidos por medio de los pulsos 1 y 3 respectivamente, con azul se representa la región espectral filtrada. Las figuras (c) y (c) muestran los pulsos de attosegundos obtenidos luego de filtrar la radiación de bajas frecuencias.

presentan dos zonas temporales bien definidas (figura 6.3). Una región se pudo caracterizar con una longitud de onda de $\lambda \simeq 1,5\lambda_0$ y la otra con $\lambda \simeq 0,65\lambda_0$. Para nuestro estudio, solamente importó la región con mayor longitud de onda, por lo que se propuso un filtro espectral ideal para reducir/eliminar la otra región. Esto permitió, que los estudios fueran llevados a cabo teniendo en cuenta solamente la región de mayor longitud de onda (figura 6.4).

La técnica presentada para sintetizar los pulsos, es independiente de la longitud de onda. Por lo que en principio, se podrían obtener pulsos con longitudes de onda mayores o menores a una cierta λ_0 , sin utilizar ningún medio no-lineal.

Los pulsos sintetizados, presentan un gran aumento del cut-off con respecto al pulso original de longitud de onda $\lambda_0 = 800$ nm, calculados a la misma intensidad. En principio es esperable este aumento del cut-off, ya que los pulsos sintetizados presentan una longitud de onda de aproximadamente $\lambda = 1,5\lambda_0$. Debido a la asimetría de los pulsos, entre la región de ionización y la de recombinación, los espectros de HHG generados por los pulsos 1 y 3, presentan un incremento del cut-off que supera al pulso con una longitud de onda $\lambda = 1,5\lambda_0$. Estos resultados se presentan en la figura 6.5.

Por otro lado, se observó en todos los casos estudiados una mejora en la eficiencia de la generación de armónicos, con respecto a un pulso *equivalente* sinusoidal (figura 6.5). Para explicar este comportamiento, se realizó un estudio del tiempo de vuelo de las trayectorias en el continuo (τ_V), por medio de un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación, y se comparó con los tiempos de vuelo de las trayectorias para los pulsos equivalentes. Estos resultados se presentan en la tabla 6.1, en donde se observa que los tiempos de vuelo de los pulsos sintetizados, son siempre menores a los tiempos de vuelo de los pulsos equivalentes.

En conclusión, se propone un posible experimento para sintetizar pulsos de aproximadamente un ciclo óptico de FWHM, con cierto grado de chirp y una longitud de onda aproximada de $\lambda = 1,5\lambda_0$, partiendo de un pulso gaussiano de longitud de onda λ_0 . Estos pulsos, presentan una mejora en la eficiencia de la generación de armónicos, como así también un incremento notable en el cut-off.

Capítulo 7

Conclusiones y perspectivas futuras

En la presente tesis, se realizó un estudio teórico de la generación de armónicos de alto orden en gases nobles (argón y helio), bajo la aproximación SAE (single-active-electron), utilizando diferentes campos para excitar a los átomos.

Se estudió, principalmente, como es afectado el espectro de armónicos para los distintos campos propuestos. Por otro lado, se realizó un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación y la trayectorias de los electrones. Esto permitió una mejor interpretación de los resultados.

El tratamiento del problema fue realizado resolviendo la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo, en una y tres dimensiones espaciales (1D-TDSE y 3D-TDSE). Los diferentes cálculos clásicos, fueron realizados por integración de la ecuaciones de Newton-Lorentz. Se realizó además, un análisis tiempo-frecuencia (wavelet) para completar el tratamiento.

Esta tesis, comienza con el estudio de la generación de armónicos con pulsos con chirp. En la primera parte, se analizó cual debe ser el origen del chirp para lograr una extensión del cut-off, respecto a un pulso sin chirp. Para lograrlo, por un lado, se estudió la dependencia del cut-off, mediante un análisis clásico, de un pulso cuyo chirp se origina mediante un medio dispersivo. Se observó, que a medida que el chirp del pulso aumentaba, la amplitud máxima del campo disminuía (efecto característico de los medios dispersivos). Esto origina una disminución del cut-off para los pulsos con chirp propuestos. Por otro lado, se propuso un pulso con chirp dado por una función simple (4.9), cuya fase es de la forma bt^2 y su

amplitud permanece constante a medida que el parámetro b cambia. Mediante este pulso, se analizó el comportamiento del cut-off y se observó que el mismo aumentaba con el parámetro b . Por otro lado, por medio de la TF del pulso, se mostró que el contenido espectral se incrementaba a medida que el parámetro b aumenta. En base a estos resultados, se concluyó que el chirp del pulso debe generarse a través de algún fenómeno no-lineal, que hace que se generen nuevas frecuencias en el mismo. Estas frecuencias, deben ser menores que la frecuencia original del láser ω_0 (ley del cut-off (3.7)) y deben encontrarse en una región temporal del pulso, tal que su amplitud sea lo suficientemente grande para ionizar al átomo por efecto túnel.

Teniendo en cuenta las conclusiones presentadas por el párrafo anterior, en la segunda parte del capítulo 4, se propuso el fenómeno no-lineal SPM (2.42), para generar el chirp del pulso. Por un lado, se presenta una posible forma de generar estos pulso en el laboratorio. Para estudiar la HHG, se utilizaron pulsos de varios ciclos ópticos (100fs) de ancho temporal, ya que para que se produzca el fenómeno de SPM en cristales, es necesario que los pulsos poseen anchos temporales del orden de los tiempos de respuesta del material. Los resultados obtenidos, concuerdan con las conclusiones presentadas en la primera parte del capítulo. Por otro lado, se observó que el aumento del cut-off depende linealmente de la longitud de propagación z .

En el capítulo 5, se estudió la HHG en átomos de argón utilizando un campo inhomogéneo. Para este fin se propuso emplear el refuerzo de campo eléctrico cercano, producido por una nano-estructura de oro al ser iluminada por un pulso láser. La geometría de la nano-estructura fue tipo moño (bow-tie) y la forma espacial del campo eléctrico generado por esta, presenta una importante inhomogeneidad. Particularmente, en este caso, se estudió la dependencia del cut-off con la longitud de onda del láser que excita a la nano-estructura. Mediante un tratamiento tanto cuántico como clásico de la interacción entre el campo y el átomo, se observó que la dependencia del cut-off con la longitud de onda se apartaba drásticamente con respecto al caso homogéneo. Esta discrepancia, fue explicada en función del comportamiento de las trayectorias de los electrones en el continuo. Por otro lado, se observó que las trayectorias de los electrones que recombinan, que son los que emiten la radiación armónica, están limitadas espacialmente por

la forma del campo eléctrico. Este resultado también difiere respecto al caso homogéneo, en donde no hay restricciones espaciales al movimiento del electrón. Este comportamiento, tanto del cut-off como de la trayectoria de los electrones en campos inhomogéneos, se presenta, hasta donde sabemos, por primera vez.

Finalmente, en el capítulo 6, se propone un método experimental para sintetizar pulsos de aproximadamente un ciclo óptico de ancho temporal, para el estudio de la HHG. Para llevarlo a cabo, se parte de un pulso de un ciclo óptico a una dada longitud de onda λ_0 . Luego de dividir el pulso en dos (por medio de un *beam splitter*), mediante una serie de espejos, se le provoca un desfase entre ellos de π . Luego, se los hace atravesar diferentes medios dispersivos, hasta que finalmente son sumados. Como resultados, se obtiene un pulso con una longitud de onda aproximada de $\lambda = 1,5\lambda_0$ y cierto grado de chirp. Un posible esquema de este proceso, se representa en la figura 6.2. Con este tipo de pulsos se realizó un estudio de la HHG en átomos de Ar, por medio de la ecuación de Schrödinger 3D-TDSE y un análisis clásico de las energías de ionización-recombinación. El resultado fue que se observó un incremento del cut-off, con respecto al pulso original, para todos los pulsos sintetizados. Por otro lado, comparando el espectro de armónicos de estos pulsos, con los espectros dado por pulsos equivalentes (pulsos sinusoidales que generan el mismo cut-off), se observó una mejora en la eficiencia de aproximadamente un orden de magnitud en los pulsos sintetizados. Esta mejora, fue explicada en términos del cambio en los tiempos de vuelo del electrón, mediante un análisis clásico.

En base a los resultados presentados en esta tesis, las perspectivas de futuros trabajos radican principalmente en estudios teóricos de la propagación de los pulsos en el gas, que genera la radiación armónica (condiciones de *Phase Matching*) [117], ya que solamente se ha estudiado la respuesta de un solo átomo y en un estudio completo de la HHG deben contemplarse los efectos de propagación [68]. Además, para el pulso cuyo chirp se originó por la SPM, se analizará el efecto dispersivo del material (GVD), como así también ordenes más elevados de la respuesta no-lineal (*self-steepening*) [118]. Por último, se intentará realizar los diferentes experimentos propuestos en esta tesis, en algunos laboratorios con los que ya se ha iniciado colaboraciones. Entre estos, podemos mencionar al: Centro de Láseres Pulsados Ultracortos Ultraintensos (CLPU), Salamanca (España) y el

laboratorio de Attosegundos del Max-Born Institute, Berlin (Alemania).

Bibliografía

- [1] Jean-Claude Diels and Wolfgang Rudolph. *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic press, 2006. [1](#), [57](#)
- [2] Thomas Brabec and Ferenc Krausz. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. *Reviews of Modern Physics*, 72(2):545, 2000. [1](#), [24](#)
- [3] D Kremp, Th Bornath, M Bonitz, and M Schlanges. Quantum kinetic theory of plasmas in strong laser fields. *Physical Review E*, 60(4):4725, 1999. [1](#)
- [4] Pierre Jaeglé. *Coherent sources of XUV radiation*. Springer, 2006. [1](#)
- [5] Jorge J Rocca. Table-top soft x-ray lasers. *Review of Scientific Instruments*, 70(10):3799–3827, 1999. [1](#)
- [6] T Ditmire, ET Gumbrell, RA Smith, JWG Tisch, DD Meyerhofer, and MHR Hutchinson. Spatial coherence measurement of soft x-ray radiation produced by high order harmonic generation. *Physical review letters*, 77(23):4756, 1996. [1](#)
- [7] M Bellini, C Lyngå, A Tozzi, MB Gaarde, TW Hänsch, Anne L’Huillier, and C-G Wahlström. Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses. *Physical Review Letters*, 81(2):297, 1998. [1](#)
- [8] Carsten Winterfeldt, Christian Spielmann, and Gustav Gerber. Colloquium: Optimal control of high-harmonic generation. *Reviews of Modern Physics*, 80(1):117, 2008. [1](#), [2](#), [28](#)

- [9] J - J Macklin, JD Kmetec, and CL Gordon III. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses. *Physical Review Letters*, 70(6):766, 1993. [1](#), [28](#)
- [10] Tenio Popmintchev, Ming-Chang Chen, Dimitar Popmintchev, Paul Arpin, Susannah Brown, Skirmantas Ališauskas, Giedrius Andriukaitis, Tadas Balčiunas, Oliver D Mücke, Audrius Pugzlys, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the kev x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *science*, 336(6086):1287–1291, 2012. [1](#), [28](#)
- [11] A McPherson, G Gibson, H Jara, U Johann, Ting S Luk, IA McIntyre, Keith Boyer, and Charles K Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *JOSA B*, 4(4):595–601, 1987. [1](#)
- [12] A L’Huillier, KJ Schafer, and KC Kulander. Higher-order harmonic generation in xenon at 1064 nm: The role of phase matching. *Physical review letters*, 66(17):2200, 1991. [2](#), [28](#)
- [13] M Ferray, Anne L’Huillier, XF Li, LA Lompre, G Mainfray, and C Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3):L31, 1988. [2](#), [28](#)
- [14] Jeffrey L Krause, Kenneth J Schafer, and Kenneth C Kulander. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Physical Review Letters*, 68(24):3535, 1992. [2](#), [24](#), [26](#), [30](#), [31](#)
- [15] Paul B Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71(13):1994, 1993. [2](#), [30](#), [31](#)
- [16] Maciej Lewenstein, Ph Balcou, M Yu Ivanov, Anne L’huillier, and Paul B Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3):2117, 1994. [2](#), [36](#)
- [17] Gerd Schneider. Cryo x-ray microscopy with high spatial resolution in amplitude and phase contrast. *Ultramicroscopy*, 75(2):85–104, 1998. [2](#)

-
- [18] Eiji J Takahashi, Tsuneto Kanai, Kenichi L Ishikawa, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa. Coherent water window x ray by phase-matched high-order harmonic generation in neutral media. *Physical review letters*, 101(25):253901, 2008. [2](#)
- [19] Ariel J Paul. *Coherent eww light from high-order harmonic generation: Enhancement and applications to lensless diffractive imaging*. PhD thesis, University of Colorado at Boulder, 2007. [2](#)
- [20] Harun H Solak and Yasin Ekinici. Bit-array patterns with density over 1 tbit/ in. 2 fabricated by extreme ultraviolet interference lithography. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, 25(6):2123–2126, 2007. [2](#)
- [21] Ferenc Krausz and Misha Ivanov. Attosecond physics. *Reviews of Modern Physics*, 81(1):163, 2009. [2](#), [90](#)
- [22] Katsumi Midorikawa. High-order harmonic generation and attosecond science. *Japanese Journal of Applied Physics*, 50(9R):090001, 2011. [2](#), [90](#)
- [23] Giuseppe Sansone, E Benedetti, Francesca Calegari, Caterina Vozzi, Lorenzo Avaldi, Roberto Flammini, Luca Poletto, P Villoresi, C Altucci, R Velotta, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 314(5798):443–446, 2006. [2](#), [90](#)
- [24] Ferenc Krausz and Mark I Stockman. Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing. *Nature Photonics*, 8(3):205–213, 2014. [3](#), [90](#), [92](#)
- [25] M Hentschel, R Kienberger, Ch Spielmann, Georg A Reider, N Milosevic, Thomas Brabec, Paul Corkum, Ulrich Heinzmann, Markus Drescher, and Ferenc Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, 414(6863):509–513, 2001. [3](#)
- [26] Adrian L Cavalieri, Norbert Müller, Th Uphues, Vladislav S Yakovlev, Andrius Baltuška, Balint Horvath, B Schmidt, L Blümel, R Holzwarth,

-
- S Hendel, et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*, 449(7165):1029–1032, 2007. [3](#)
- [27] Martin Schultze, Adrian Wirth, Ivanka Grguras, Matthias Uiberacker, Thorsten Uphues, Aart J Verhoef, Justin Gagnon, M Hofstetter, U Kleineberg, Eleftherios Goulielmakis, et al. State-of-the-art attosecond metrology. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 184(3):68–77, 2011. [3](#)
- [28] Kun Zhao, Qi Zhang, Michael Chini, Yi Wu, Xiaowei Wang, and Zenghu Chang. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Optics letters*, 37(18):3891–3893, 2012. [3](#)
- [29] Seungchul Kim, Jonghan Jin, Young-Jin Kim, In-Yong Park, Yunseok Kim, and Seung-Woo Kim. High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement. *Nature*, 453(7196):757–760, 2008. [3](#), [68](#)
- [30] M Sivi, M Duwe, B Abel, and C Ropers. Nanostructure-enhanced atomic line emission. *Nature*, 485(7397):E1–E3, 2012. [3](#)
- [31] E Cormier and M Lewenstein. Optimizing the efficiency in high order harmonic generation optimization by two-color fields. *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 12(2):227–233, 2000. [3](#)
- [32] E Constant, D Garzella, P Breger, E Mével, Ch Dorrer, C Le Blanc, F Salin, and P Agostini. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment. *Physical Review Letters*, 82(8):1668, 1999. [3](#), [28](#)
- [33] A Sanpera, M Protopapas, JB Watson, K Burnett, and PL Knight. High harmonic generation efficiency. In *Ultrafast Processes in Spectroscopy*, pages 295–298. Springer, 1996. [3](#)
- [34] I Jong Kim, Chul Min Kim, Hyung Taek Kim, Gae Hwang Lee, Yong Soo Lee, Ju Yun Park, David Jaeyun Cho, and Chang Hee Nam. Highly efficient high-harmonic generation in an orthogonally polarized two-color laser field. *Physical review letters*, 94(24):243901, 2005. [3](#), [91](#)

-
- [35] JA Pérez-Hernández, DJ Hoffmann, A Zair, LE Chipperfield, L Plaja, C Ruiz, JP Marangos, and L Roso. Extension of the cut-off in high-harmonic generation using two delayed pulses of the same colour. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 42(13):134004, 2009. [3](#), [43](#), [91](#)
- [36] Juan J Carrera and Shih-I Chu. Extension of high-order harmonic generation cutoff via coherent control of intense few-cycle chirped laser pulses. *Physical Review A*, 75(3):033807, 2007. [3](#), [43](#), [44](#)
- [37] Tenio Popmintchev, Ming-Chang Chen, Alon Bahabad, Michael Gerrity, Pavel Sidorenko, Oren Cohen, Ivan P Christov, Margaret M Murnane, and Henry C Kapteyn. Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard x-ray regions of the spectrum. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 106(26):10516–10521, 2009. [3](#)
- [38] MF Ciappina, J Biegert, R Quidant, and M Lewenstein. High-order-harmonic generation from inhomogeneous fields. *Physical Review A*, 85(3):033828, 2012. [3](#), [69](#), [78](#)
- [39] Claude Rulliere et al. *Femtosecond laser pulses*. Springer, 2005. [5](#), [6](#), [7](#)
- [40] Sergei A Akhmanov, Viktor A Vysloukh, and Anatolii S Chirkin. Optics of femtosecond laser pulses. *Moscow Izdatel Nauka*, 1988. [5](#)
- [41] Rick Trebino. *Frequency-resolved optical gating: the measurement of ultrashort laser pulses*. Springer Science & Business Media, 2012. [5](#)
- [42] Robert R Alfano et al. The supercontinuum laser source. 1989. [6](#), [56](#)
- [43] RL Fork, BI Greene, and CHARLES V Shank. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. *Applied Physics Letters*, 38(9):671–672, 1981. [6](#)
- [44] Herman A Haus. Mode-locking of lasers. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 6(6):1173–1185, 2000. [6](#)
- [45] AJ DeMaria, DA Stetser, and H Heynau. Self mode-locking of lasers with saturable absorbers. *Applied Physics Letters*, 8(7):174–176, 1966. [6](#)

-
- [46] RS Tucker, U Koren, G Raybon, CA Burrus, BI Miller, Thomas L Koch, and G Eisenstein. 40 ghz active mode-locking in a 1.5 μm monolithic extended-cavity laser. *Electronics letters*, 25(10):621–622, 1989. 6
- [47] Kenji Sato, Koichi Wakita, Isamu Kotaka, Yasuhiro Kondo, Mitsuo Yamamoto, and Atsushi Takada. Monolithic strained-ingaasp multiple-quantum-well lasers with integrated electroabsorption modulators for active mode locking. *Applied physics letters*, 65(1):1–3, 1994. 6
- [48] Donna Strickland and Gerard Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics communications*, 55(6):447–449, 1985. 7
- [49] P Maine, D Strickland, P Bado, M Pessot, and G Mourou. Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification. *IEEE Journal of Quantum electronics*, 24(2):398–403, 1988. 7
- [50] Michael D Perry, Gerard Mourou, et al. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers. *Science-AAAS-Weekly Paper Edition-including Guide to Scientific Information*, 264(5161):917–923, 1994. 7
- [51] O Martinez. 3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: Application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 23(1):59–64, 1987. 7
- [52] OE Martinez, JP Gordon, and RL Fork. Negative group-velocity dispersion using refraction. *JOSA A*, 1(10):1003–1006, 1984. 7
- [53] RL Fork, OE Martinez, and JP Gordon. Negative dispersion using pairs of prisms. *Optics letters*, 9(5):150–152, 1984. 7
- [54] David J Jones, Scott A Diddams, Jinendra K Ranka, Andrew Stentz, Robert S Windeler, John L Hall, and Steven T Cundiff. Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science*, 288(5466):635–639, 2000. 8
- [55] CP Hauri, W Kornelis, FW Helbing, A Heinrich, Arnaud Couairon, André Mysyrowicz, Jens Biegert, and Ursulla Keller. Generation of intense,

- carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 79(6):673–677, 2004. [8](#), [56](#)
- [56] Andrius Baltuška, Takao Fuji, and Takayoshi Kobayashi. Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers. *Physical review letters*, 88(13):133901, 2002. [8](#)
- [57] GG Paulus, F Grasbon, H Walther, P Villoresi, M Nisoli, S Stagira, E Priori, and S De Silvestri. Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. *Nature*, 414(6860):182–184, 2001. [8](#)
- [58] SE Irvine, P Dombi, Gy Farkas, and AY Elezzabi. Influence of the carrier-envelope phase of few-cycle pulses on ponderomotive surface-plasmon electron acceleration. *Physical review letters*, 97(14):146801, 2006. [8](#)
- [59] Björn Piglosiewicz, Slawa Schmidt, Doo Jae Park, Jan Vogelsang, Petra Groß, Cristian Manzoni, Paolo Farinello, Giulio Cerullo, and Christoph Lienau. Carrier-envelope phase effects on the strong-field photoemission of electrons from metallic nanostructures. *Nature Photonics*, 8(1):37–42, 2014. [8](#)
- [60] Mauro Nisoli, Giuseppe Sansone, S Stagira, S De Silvestri, C Vozzi, M Pascolini, L Poletto, P Villoresi, and G Tondello. Effects of carrier-envelope phase differences of few-optical-cycle light pulses in single-shot high-order-harmonic spectra. *Physical review letters*, 91(21):213905, 2003. [8](#)
- [61] Mihai Gavrila. Atoms in intense laser fields. 1992. [24](#), [26](#)
- [62] M Protopapas, Christoph H Keitel, and Peter L Knight. Atomic physics with super-high intensity lasers. *Reports on Progress in Physics*, 60(4):389, 1997. [24](#)
- [63] V.P. Delone N.B., Krainov. *Multiphoton Processes in Atoms*. Springer-Verlag, 1994. [24](#), [26](#)
- [64] LV Keldysh et al. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, 20(5):1307–1314, 1965. [24](#)

- [65] M Büttiker and R Landauer. Traversal time for tunneling. *Physical Review Letters*, 49(23):1739, 1982. [24](#)
- [66] Louis-Andre Lompré, Gerard Mainfray, Claude Manus, and J Thebault. Multiphoton ionization of rare gases by a tunable-wavelength 30-psec laser pulse at 1.06 μm . *Physical Review A*, 15(4):1604, 1977. [26](#)
- [67] Anne l’Huillier, LA Lompre, G Mainfray, and C Manus. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53 μm . *Physical Review A*, 27(5):2503, 1983. [26](#)
- [68] Carlos Hernández García. *Coherent attosecond light sources based on high-order harmonic generation: influence of the propagation effects*. PhD thesis, Universidad de Salamanca, 2013. [27](#), [63](#), [107](#)
- [69] J Itatani, D Zeidler, J Levesque, Michael Spanner, DM Villeneuve, and PB Corkum. Controlling high harmonic generation with molecular wave packets. *Physical review letters*, 94(12):123902, 2005. [28](#)
- [70] Tsuneto Kanai, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai. Quantum interference during high-order harmonic generation from aligned molecules. *Nature*, 435(7041):470–474, 2005. [28](#)
- [71] Zenghu Chang, Andy Rundquist, Haiwen Wang, Margaret M Murnane, and Henry C Kapteyn. Generation of coherent soft x rays at 2.7 nm using high harmonics. *Physical Review Letters*, 79(16):2967, 1997. [28](#)
- [72] J Tate, T Auguste, HG Muller, P Salieres, P Agostini, and LF DiMauro. Scaling of wave-packet dynamics in an intense midinfrared field. *Physical Review Letters*, 98(1):013901, 2007. [30](#), [90](#)
- [73] P Colosimo, G Doumy, CI Blaga, J Wheeler, C Hauri, F Catoire, J Tate, R Chirla, AM March, GG Paulus, et al. Scaling strong-field interactions towards the classical limit. *Nature Physics*, 4(5):386–389, 2008. [30](#), [90](#)
- [74] JA Pérez-Hernández, L Roso, and L Plaja. Harmonic generation beyond the strong-field approximation: the physics behind the short-wave-infrared scaling laws. *Optics express*, 17(12):9891–9903, 2009. [30](#)

-
- [75] Kenichi L Ishikawa. High-harmonic generation. In *Advances in Solid State Lasers Development and Applications*. InTech, 2010. 35
- [76] Ciprian Constantin Chirilă. *Analysis of the strong field approximation for harmonic generation and multiphoton ionization in intense ultrashort laser pulses*. PhD thesis, Durham University, 2004. 36
- [77] Thomas Brabec and Henry Kapteyn. *Strong field laser physics*, volume 134. Springer, 2008. 36, 38, 39, 41, 85
- [78] Q Su and JH Eberly. Model atom for multiphoton physics. *Physical Review A*, 44(9):5997, 1991. 39
- [79] Kenneth J Schafer and Kenneth C Kulander. High harmonic generation from ultrafast pump lasers. *Physical Review Letters*, 78(4):638, 1997. 39
- [80] Jean-Michel Combes, Alexander Grossmann, and Philippe Tchamitchian. *Wavelets: Time-Frequency Methods and Phase Space Proceedings of the International Conference, Marseille, France, December 14–18, 1987*. Springer Science & Business Media, 2012. 42
- [81] Charles K Chui. *An introduction to wavelets*. Elsevier, 2016. 42
- [82] Philippe Antoine, Bernard Piraux, and Alfred Maquet. Time profile of harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field. *Physical Review A*, 51(3):R1750, 1995. 42
- [83] Xiao-Min Tong and Shih-I Chu. Probing the spectral and temporal structures of high-order harmonic generation in intense laser pulses. *Physical Review A*, 61(2):021802, 2000. 42
- [84] Zhinan Zeng, Ya Cheng, Xiaohong Song, Ruxin Li, and Zhizhan Xu. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field. *Physical review letters*, 98(20):203901, 2007. 43
- [85] A Husakou, S-J Im, and J Herrmann. Theory of plasmon-enhanced high-order harmonic generation in the vicinity of metal nanostructures in noble gases. *Physical Review A*, 83(4):043839, 2011. 43

- [86] Jie Wu, Gang-Tai Zhang, Chang-Long Xia, and Xue-Shen Liu. Control of the high-order harmonics cutoff and attosecond pulse generation through the combination of a chirped fundamental laser and a subharmonic laser field. *Physical Review A*, 82(1):013411, 2010. [44](#)
- [87] Hongchuan Du and Bitao Hu. Propagation effects of isolated attosecond pulse generation with a multicycle chirped and chirped-free two-color field. *Physical Review A*, 84(2):023817, 2011. [44](#)
- [88] Peng-Cheng Li, Xiao-Xin Zhou, Guo-Li Wang, and Zeng-Xiu Zhao. Isolated sub-30-as pulse generation of an he+ ion by an intense few-cycle chirped laser and its high-order harmonic pulses. *Physical Review A*, 80(5):053825, 2009. [44](#)
- [89] Junjie Xu, Bin Zeng, and Yongli Yu. Extension of harmonic cutoff in a multicycle chirped pulse combined with a chirp-free pulse. *Physical Review A*, 82(5):053822, 2010. [44](#)
- [90] M Rosete-Aguilar, FC Estrada-Silva, NC Bruce, CJ Román-Moreno, and R Ortega-Martínez. Calculation of temporal spreading of ultrashort pulses propagating through optical glasses. *Revista mexicana de física*, 54(2):141–148, 2008. [47](#)
- [91] Berge Tatian. Fitting refractive-index data with the sellmeier dispersion formula. *Applied optics*, 23(24):4477–4485, 1984. [48](#)
- [92] Federica Poli, Annamaria Cucinotta, and Stefano Selleri. *Photonic crystal fibers: properties and applications*, volume 102. Springer Science & Business Media, 2007. [57](#)
- [93] Feng Wang and Y Ron Shen. General properties of local plasmons in metal nanostructures. *Physical review letters*, 97(20):206806, 2006. [68](#)
- [94] Mark I Stockman, Sergey V Faleev, and David J Bergman. Coherent control of femtosecond energy localization in nanosystems. *Physical Review Letters*, 88(6):067402, 2002. [68](#)

-
- [95] In-Yong Park, Seungchul Kim, Joonhee Choi, Dong-Hyub Lee, Young-Jin Kim, Matthias F Kling, Mark I Stockman, and Seung-Woo Kim. Plasmonic generation of ultrashort extreme-ultraviolet light pulses. *Nature Photonics*, 5(11):677–681, 2011. [68](#)
- [96] Jianghua Luo, Yang Li, Zhe Wang, Qingbin Zhang, and Peixiang Lu. Ultra-short isolated attosecond emission in mid-infrared inhomogeneous fields without cep stabilization. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 46(14):145602, 2013. [69](#)
- [97] JA Pérez-Hernández, MF Ciappina, M Lewenstein, L Roso, and A Zair. Beyond carbon k-edge harmonic emission using a spatial and temporal synthesized laser field. *Physical review letters*, 110(5):053001, 2013. [69](#)
- [98] T Shaaran, MF Ciappina, and M Lewenstein. Quantum-orbit analysis of high-order-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement. *Physical Review A*, 86(2):023408, 2012. [69](#), [81](#), [88](#)
- [99] I Yavuz. Gas population effects in harmonic emission by plasmonic fields. *Physical Review A*, 87(5):053815, 2013. [69](#)
- [100] MF Ciappina, Srdjan S Acimović, T Shaaran, J Biegert, R Quidant, and M Lewenstein. Enhancement of high harmonic generation by confining electron motion in plasmonic nanostructures. *Optics express*, 20(24):26261–26274, 2012. [69](#), [75](#)
- [101] CAD Rsoft Photonic. Suite, version 8.0 (2007). [70](#)
- [102] Craig F Bohren and Donald R Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley & Sons, 2008. [72](#)
- [103] Bruno E Schmidt, Pierre Béjot, Mathieu Giguère, Andrew D Shiner, Carlos Trallero-Herrero, Éric Bisson, Jérôme Kasparian, Jean-Pierre Wolf, David M Villeneuve, Jean-Claude Kieffer, et al. Compression of 1.8 μ m laser pulses to sub two optical cycles with bulk material. *Applied Physics Letters*, 96(12):121109, 2010. [90](#)

- [104] S Driever, D Bigourd, N Fedorov, M Cornet, M Arnold, F Burgy, S Montant, S Petit, D Descamps, E Cormier, et al. Tunable 1.6–2 μ m near infrared few-cycle pulse generation by filamentation. *Applied Physics Letters*, 102(19):191119, 2013. [90](#)
- [105] D Brida, C Manzoni, G Cirimi, M Marangoni, S Bonora, P Villoresi, S De Silvestri, and G Cerullo. Few-optical-cycle pulses tunable from the visible to the mid-infrared by optical parametric amplifiers. *Journal of Optics*, 12(1):013001, 2009. [90](#)
- [106] Günther Krauss, Sebastian Lohss, Tobias Hanke, Alexander Sell, Stefan Eggert, Rupert Huber, and Alfred Leitenstorfer. Synthesis of a single cycle of light with compact erbium-doped fibre technology. *Nature Photonics*, 4(1):33–36, 2010. [90](#)
- [107] Shu-Wei Huang, Giovanni Cirimi, Jeffrey Moses, Kyung-Han Hong, Siddharth Bhardwaj, Jonathan R Birge, Li-Jin Chen, Enbang Li, Benjamin J Eggleton, Giulio Cerullo, et al. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics. *Nature photonics*, 5(8):475–479, 2011. [90](#)
- [108] Pengfei Wei, Jing Miao, Zhinan Zeng, Chuang Li, Xiaochun Ge, Ruxin Li, and Zhizhan Xu. Selective enhancement of a single harmonic emission in a driving laser field with subcycle waveform control. *Physical review letters*, 110(23):233903, 2013. [91](#)
- [109] LE Chipperfield, JS Robinson, JWG Tisch, and JP Marangos. Ideal waveform to generate the maximum possible electron recollision energy for any given oscillation period. *Physical review letters*, 102(6):063003, 2009. [91](#)
- [110] Stefan Haessler, T Balčiunas, Guangyu Fan, G Andriukaitis, A Pugžlys, A Baltuška, T Witting, R Squibb, A Zair, John WG Tisch, et al. Optimization of quantum trajectories driven by strong-field waveforms. *Physical Review X*, 4(2):021028, 2014. [91](#), [99](#)

- [111] G Sansone, C Vozzi, S Stagira, and M Nisoli. Nonadiabatic quantum path analysis of high-order harmonic generation: Role of the carrier-envelope phase on short and long paths. *Physical Review A*, 70(1):013411, 2004. [91](#)
- [112] CA Haworth, LE Chipperfield, JS Robinson, PL Knight, JP Marangos, and JWG Tisch. Half-cycle cutoffs in harmonic spectra and robust carrier-envelope phase retrieval. *Nature Physics*, 3(1):52–57, 2007. [91](#)
- [113] Mark Mero, Fabio Frassetto, Paolo Villoresi, Luca Poletto, and Katalin Varjú. Compression methods for xuv attosecond pulses. *Optics express*, 19(23):23420–23428, 2011. [92](#)
- [114] Nariyuki Saito, Nobuhisa Ishii, Teruto Kanai, Shuntaro Watanabe, and Jiro Itatani. Attosecond streaking measurement of extreme ultraviolet pulses using a long-wavelength electric field. *Scientific reports*, 6:35594, 2016. [92](#)
- [115] Dong Hyuk Ko, Kyung Taec Kim, Juyun Park, Jae-hwan Lee, and Chang Hee Nam. Attosecond chirp compensation over broadband high-order harmonics to generate near transform-limited 63 as pulses. *New Journal of Physics*, 12(6):063008, 2010. [102](#)
- [116] Kyung Taec Kim, Chul Min Kim, Moon-Gu Baik, G Umesh, and Chang Hee Nam. Single sub- 50- attosecond pulse generation from chirp-compensated harmonic radiation using material dispersion. *Physical Review A*, 69(5):051805, 2004. [102](#)
- [117] KB Dinh and LV Dao. Phase-matched high order harmonic generation and application, 2013. [107](#)
- [118] Thomas Brabec and Ferenc Krausz. Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime. *Physical Review Letters*, 78(17):3282, 1997. [107](#)