

High Harmonic Generation

Diogo Miguez **90057**,Rita Santos **93414**,Thomas Gaehtgens **86809**Grupo **5B**
22 Julho 2021

Resumo – Neste trabalho estudamos o efeito de *High Harmonic Generation* com um laser incidente de comprimento de onda 800 nm, usando os gases Argon, Krypton e Neon. Estudam-se os espectros obtidos por difração em dois pares de fendas de 10 μm e 100 μm de espaçamento e compara-se a resolução de cada um. Foi possível observar as harmónicas ímpares 21 a 27 do Argon e 13 a 23 do Krypton.

1 Introdução Teórica

1.1 Descrição microscópica

O efeito HHG é um processo ótico não linear no qual a frequência do laser se desdobra nos seus múltiplos inteiros ímpares. Este fenómeno é gerado por átomos e moléculas expostas a campos elétricos intensos (perdo de infravermelhos). Um espectro típico de emissão de HH está ilustrado na figura 1. De notar a existência de um *Plateau*, no qual os diferentes harmónicas têm intensidades com semelhante amplitude. A intensidade decresce abruptamente à frequência de "cut-off".

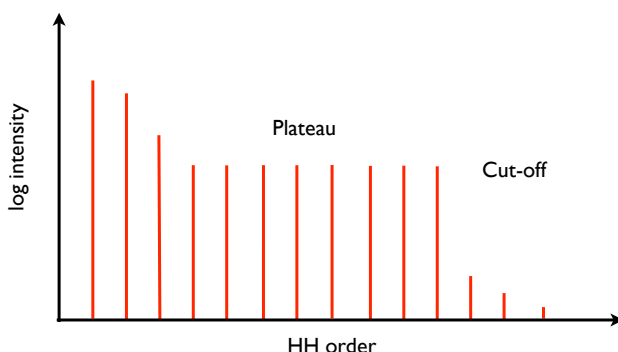


Figura 1 – Espectro típico de HH

O modelo de 3 etapas desenvolvido por Corkum (fig. 2) fornece uma descrição analítica do processo de HHG

[1]. Primeiro, o laser ioniza o átomo por efeito de túnel. De seguida, o eletrão ejetado é acelerado pelo campo do laser. Após meio ciclo ótico, o sinal do campo do laser inverte, o que acelera o eletrão de volta para o ião de onde este saiu. O eletrão é recombinado com o ião inicial e emite um fotão cuja energia é dada pela soma da energia de ionização (I_p) com a energia cinética ganha na interação com o campo.

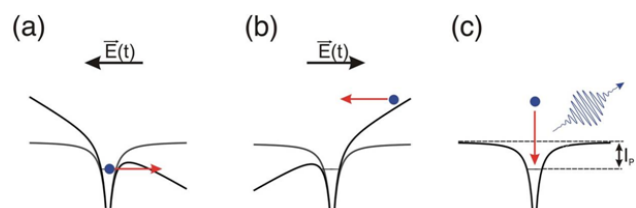


Figura 2 – Modelo de 3 etapas de Corkum

A máxima energia do fotão (cut-off) é dada por 1, com $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega_0^2}$ o potencial de interação com o campo EM e ω_0 a frequência do laser.

$$E_c = I_p + 3.17U_p \quad (1)$$

Só são gerados fotões com energia múltipla da energia dos fotões fundamental. Como os fotões são emitidos com metade da periodicidade do laser, no espaço das frequências estas estarão separadas por $2 \times \omega_L$, logo só se observam harmónicas ímpares.

A resposta de um único átomo aqui descrita leva à geração de HH com reduzida eficiência. A resposta de um conjunto de átomos adiciona-se de forma coerente. Teremos um aumento do sinal das HH se as emissões individuais se adicionarem construtivamente ao longo do percurso de propagação do laser, o que depende de vários parâmetros que estudaremos ao longo deste trabalho.

1.2 Descrição macroscópica

Como mencionado na secção de introdução, o efeito da resposta de cada átomo adiciona-se coerentemente logo procuramos que as respostas individuais de cada átomo se adicionem construtivamente ao longo da propagação do laser (*phase matching*).

Diferentes velocidades de fase originam interferências destrutivas, as quais se podem dever a variados fatores como a dispersão do gás, a dispersão por elétrons livres gerados por ionização no gás, *geometrical phase mismatch* e *atomic phase match*. Equilibrar estas diferentes contribuições é necessário para termos uma adição construtiva do sinal das HH, o que é feito controlando a pressão do gás, a abertura da íris e a atenuação.

2 Esquema da montagem

A montagem experimental encontra-se ilustrada na figura 12. É constituída por um laser de alta intensidade, uma célula de gás (neste trabalho, estudamos a resposta do Argon, Krypton e Neon) e outros diversos componentes que direccionam e condicionam o feixe até atingir um detetor CCD.

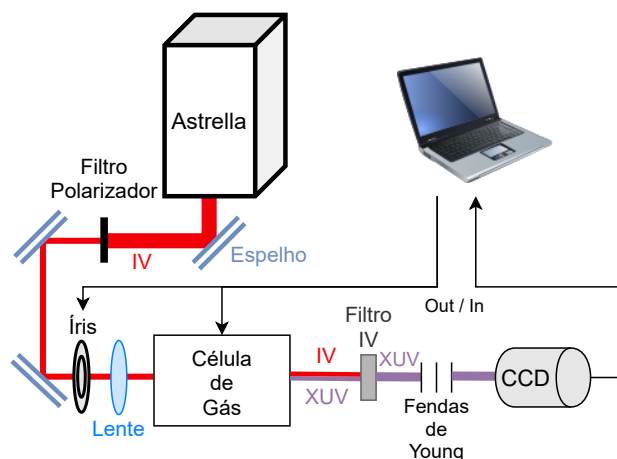


Figura 3 – Esquema de montagem

Utiliza-se um laser de comprimento de onda 800 nm. O feixe passa por um aplicador *Astrella* com uma

frequência de pulso 1kHz, o que corresponde a uma potência do laser de 4.90 W.

No início do trajeto do laser coloca-se a um filtro polarizador que atenua o feixe, que se encontra linearmente polarizado. O parâmetro de atenuação é o ângulo do filtro.

Antes da câmara da célula de gás coloca-se uma íris e uma lente convexa, cujo objetivo é focar o laser na célula de gás para que este tenha energia suficiente para criar harmónicas.

Utilizamos também dois filtros de radiação IV de 100 nm de espessura, colocados após a câmara da célula de gás e antes da *main chamber*, cujo objetivo é filtrar o feixe original (IV) e deixar passar as harmónicas (XUV).

Na *main chamber* colocou-se um conjunto de 3 pares de fendas de Young. O primeiro par, de 200nm de espessura, sabe-se à partida não estar operacional. Estudámos então o segundo par de fendas, com 2 μm de espessura e 10 μm de espaçamento e também o terceiro par de 2 μm de espessura e 100 μm de espaçamento. Todas as fendas têm 100 μm de altura.

No final da *main chamber* colocou-se uma CCD de 1024×1024 px, com 13 $\mu\text{m}/\text{px}$, ligada ao software que permite fazer a aquisição de dados.

Antes da aquisição das harmónicas recorremos a várias bombas de vácuo que atuam dentro da câmara da célula e da *main chamber*, que evitam assim interações do feixe com as moléculas de ar.

Toma-se o eixo z na direção do feixe e os eixos x e y como as direções horizontal e vertical na CCD, respetivamente. A distância z a que as fendas foram colocadas da CCD foi estimada previamente recorrendo à lei $d \sin(\theta) = m\lambda$, com m um inteiro, θ o ângulo entre o feixe e o eixo dos zz e λ o comprimento de onda do laser. Por trigonometria, temos $\tan(\theta) = \frac{x}{z}$. Considerou-se $m=2$ para garantir que se via todo o espectro relevante na CCD. Combinando estes resultados foi possível chegar a uma estimativa da distância de $z = 40\text{cm}$.

3 Resultados e Discussão

3.1 Discussão preliminar

Como referido, a intensidade medida depende de vários parâmetros, sendo portanto necessário optimizá-los de forma a maximizar o número de contagens na CCD. Os parâmetros que aqui serão controlados são a abertura da íris antes da célula de gás, a pressão do gás e a atenuação provocada pelo filtro polarizador.

A abertura da íris é controlada no computador, num

software onde são apresentados *steps* de abertura que variam entre -1024 e +927. Considera-se o raio da íris como parâmetro de abertura. Para fazer a conversão *steps*-raio, a íris foi colocada na abertura máxima (*step* +927), e tirou-se uma fotografia desta com uma régua encostada. Analisou-se a imagem no *ImageJ* e obteve-se um raio de 5.64 ± 0.50 mm. Considerando que no menor *step* possível a abertura é zero, obtém-se a seguinte relação:

$$abertura(raio) = 2.89 \cdot 10^{-3} \cdot (steps + 1024)(mm) \quad (2)$$

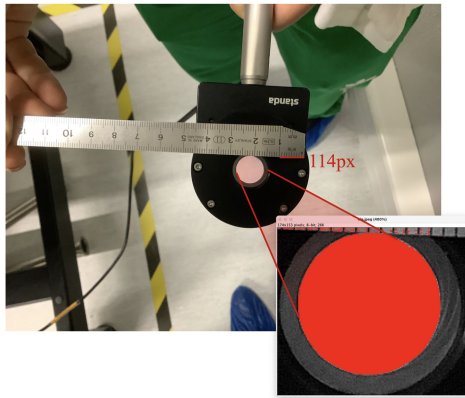


Figura 4 – Determinação do raio da Íris.

Devido a um problema na *CCD*, o tempo de aquisição de dados tornou-se um parâmetro a otimizar, uma vez que não se verificou uma relação linear entre o tempo exposição e o número de contagens registado pela *CCD*. De facto, a partir de um certo tempo, a imagem obtida não continha informação.

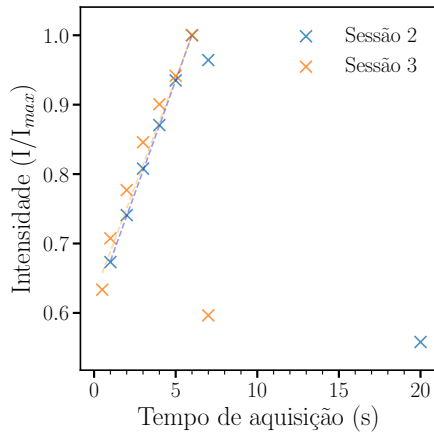


Figura 5 – Variação do número de contagens do *Background*, por sessão.

Desta forma, após ser removido o ruído à imagem do espectro, definiu-se um valor de *threshold* abaixo do qual as contagens registadas eram consideradas ruído, e acima definidas como sendo sinal.

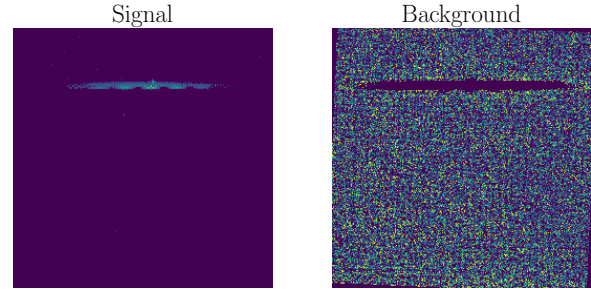


Figura 6 – Imagem de sinal - esquerda - e imagem do ruído - direita.

Analisou-se, para cada gás usado, o espectro com tempo de aquisição associado a um maior rácio imagem/ruído.

3.2 Estimativa de erro

Assumiu-se um erro em z , a distância das fendas à *CCD*, de 1 cm.

A conversão do espaço dos píxeis n para o espaço das frequências, após aplicada a FFT é dada por 3, com erro dado por 4:

$$f_n = \frac{n \cdot c \cdot z}{N_{px} \cdot d \cdot \Delta x} \quad (3) \quad \delta f_n = f_n \frac{\delta z}{z} \quad (4)$$

Para a determinação do centróide e do seu erro utilizou-se 5 e 6 respectivamente, onde $F = [f_1, f_2, \dots, f_n]$ e $Y = [y_1, y_2, \dots, y_n]$ correspondem aos vetores com as n coordenadas dos pontos (f_i, y_i), no espaço das frequências, do pico cujo centróide se está a calcular.

$$f_{cent} = F \cdot \frac{Y}{|Y|^2} \quad (5) \quad \delta f_{cent} = \frac{\delta z}{z} f_{cent} \quad (6)$$

3.3 Argon

3.3.1 Optimização dos parâmetros

Procedeu-se à optimização começando por variar a pressão, a abertura da íris e o ângulo do filtro polarizador. Tendo encontrado os valores óptimos, que correspondem às três primeiras colunas da tabela 1, capturaram-se imagens na CCD para vários tempos de aquisição. Na figura 7 apresenta-se, em função do tempo de aquisição, o rácio entre os números totais de contagens do sinal e do *background*. Escolhe-se o tempo que corresponda a um maior valor deste rácio, que se encontra na última coluna da tabela 1, de forma a maximizarmos o sinal das harmónicas em detrimento do sinal de *background*.

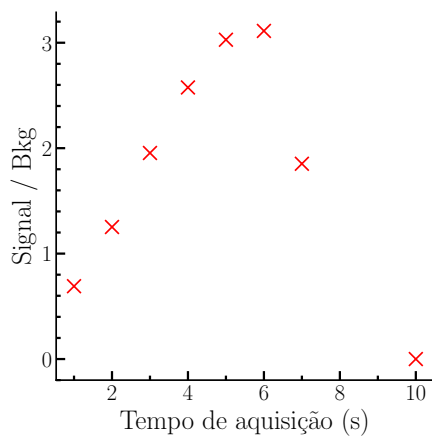


Figura 7 – Rácio entre o sinal e o ruído para cada tempo de aquisição

Pressão	Abertura Íris	Ângulo Filtro Polarizador	Tempo Aq.
14.5 mBa	3.47 mm	50°	6 s

Tabela 1 – Parâmetros ótimos para Argon

Na figura 8 encontra-se a imagem obtida na CCD. Os perfis de intensidade para os espectros obtidos por cada fenda encontram-se em cima na figura 9. Fazendo a transformada de Fourier (FFT) obtemos os espectros em frequência, representados em baixo na figura 9.

É possível confirmar que a fenda 1 não está operacional, dado que não exibe um padrão típico de interferência. Seleccionam-se os picos que poderão ser harmónicas nas figuras 10 e 11, e procede-se à identificação das respetivas harmónicas nas tabelas 2 e 3.

De notar que os picos observados se encontram igualmente espaçados. Para além disso, dentro dos intervalos de erro obtidos, as frequências dos picos escolhidos são de facto múltiplos ímpares da frequência do laser $\nu_{laser} = c/800 \text{ nm}$, ou seja são harmónicas.

No espectro referente à fenda de $d = 10 \text{ }\mu\text{m}$, não se consideram os picos referentes às frequências mais altas, por estas estarem muito espaçadas do pico da única harmónica considerada. Pela análise do artigo [6], considera-se que estes picos de frequência mais alta não têm origem no fenómeno de HHG em estudo. A amplitude destes é muito menor e põe-se a possibilidade de terem origem noutros processos como eventualmente serem devidos à eletrónica do aparato usado.

Comparando os espectros obtidos pelos dois pares de fendas, conclui-se que são concordantes na presença de harmónicas no mesmo intervalo de frequências. No entanto, o espectro 3, que corresponde às fendas com menor espaçamento, possui uma menor resolução, sendo o único pico relevante na verdade uma junção dos picos que se observam no outro espectro. Como a harmónica de maior intensidade no espectro 2 é a 23, é natural que o centróide do pico no espectro 3 corresponda à mesma harmónica.

3.3.2 Padrão de Difração e Espectro HHG (Argon)

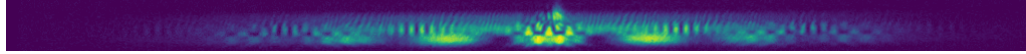


Figura 8 – Espectro obtido para um tempo de aquisição de 6s.

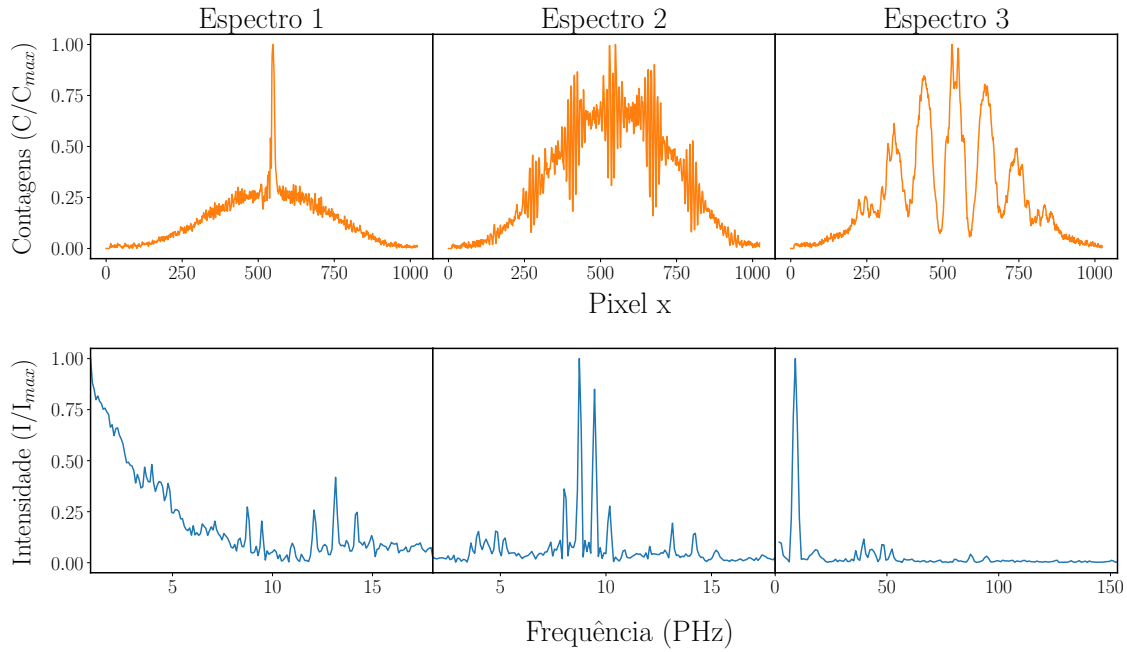


Figura 9 – Espectros obtidos para um tempo de aquisição 6s e para as 3 fendas

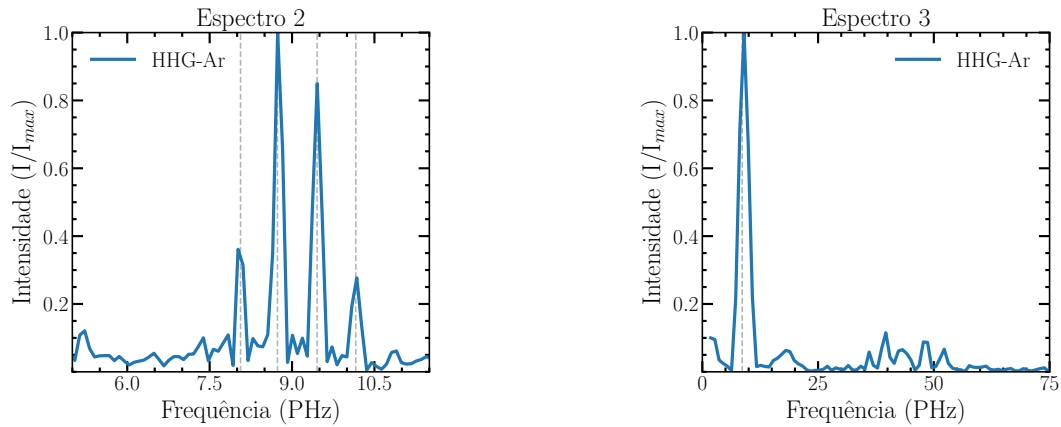


Figura 10 – Seleção de picos no espectro da fenda 2 ($d = 100\mu m$)

Pico #	ν (PHz)	ν/ν_{laser}	Harm.
1	8.06 ± 0.20	21.51 ± 0.54	21
2	8.73 ± 0.22	23.31 ± 0.58	23
3	9.46 ± 0.24	25.23 ± 0.63	25
4	10.2 ± 0.25	27.11 ± 0.68	27

Tabela 2 – Identificação dos picos na fenda 2 ($d = 100\mu m$) com as harmônicas

Figura 11 – Seleção de picos no espectro da fenda 3 ($d = 10\mu m$)

Pico #	ν (PHz)	ν/ν_{laser}	Harm.
1	8.61 ± 0.22	22.98 ± 0.57	23

Tabela 3 – Identificação dos picos na fenda 3 ($d = 10\mu m$) com as harmônicas

3.4 Krypton

3.4.1 Optimização de parâmetros

Procedeu-se de uma forma idêntica à anterior. Os parâmetros ideais encontrados apresentam-se na tabela 4.

Pressão	Abertura Íris	Ângulo Filtro Polarizador	Tempo Aq.
7.0 mBa	3.33 mm	60°	5 s

Tabela 4 – Parâmetros óptimos para Krypton

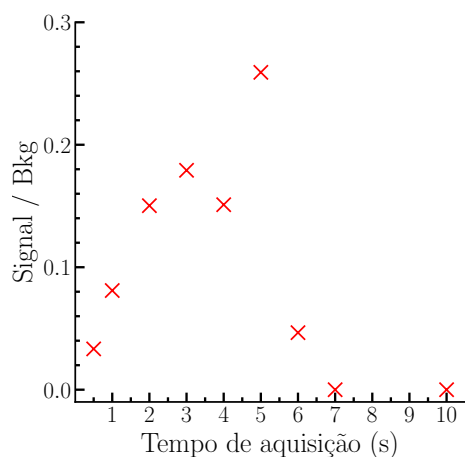


Figura 12 – Rácio entre o sinal e o ruído.

Na figura 13 encontra-se a imagem obtida na CCD. Os perfis de intensidade para os espectros obtidos por cada fenda encontram-se em cima na figura 14. Fazendo a transformada de Fourier (FFT) obtêm-se os espectros em frequência, em baixo na figura 14. Confirma-se novamente que a fenda 1 não está operacional. Selecionam-se os picos que poderão ser harmónicas dos espectros das restantes fendas nas figuras 10 e 11, e procede-se à identificação das respetivas harmónicas nas tabelas 2 e 3. Desta vez, apenas para as harmónicas superior à 17ª é que a frequência é, dentro do intervalo de erros calculado, um múltiplo ímpar de ν_{laser} .

Comparam-se os espectros obtidos pelos dois pares de fendas e, pelos mesmos motivos dados na secção 3.3.1, conclui-se que são novamente concordantes na presença de harmónicas no mesmo intervalo de frequências, e que o espectro 3, com as fendas menos espaçadas, possui uma menor resolução. No entanto, desta vez, como a harmónica mais intensa no espectro 2 é a número 19, é com esta que o pico do espectro 3 é identificado.

3.4.2 Padrão de Difração e Espectro HHG (Krypton)



Figura 13 – Espectro obtido para um tempo de aquisição de 5s.

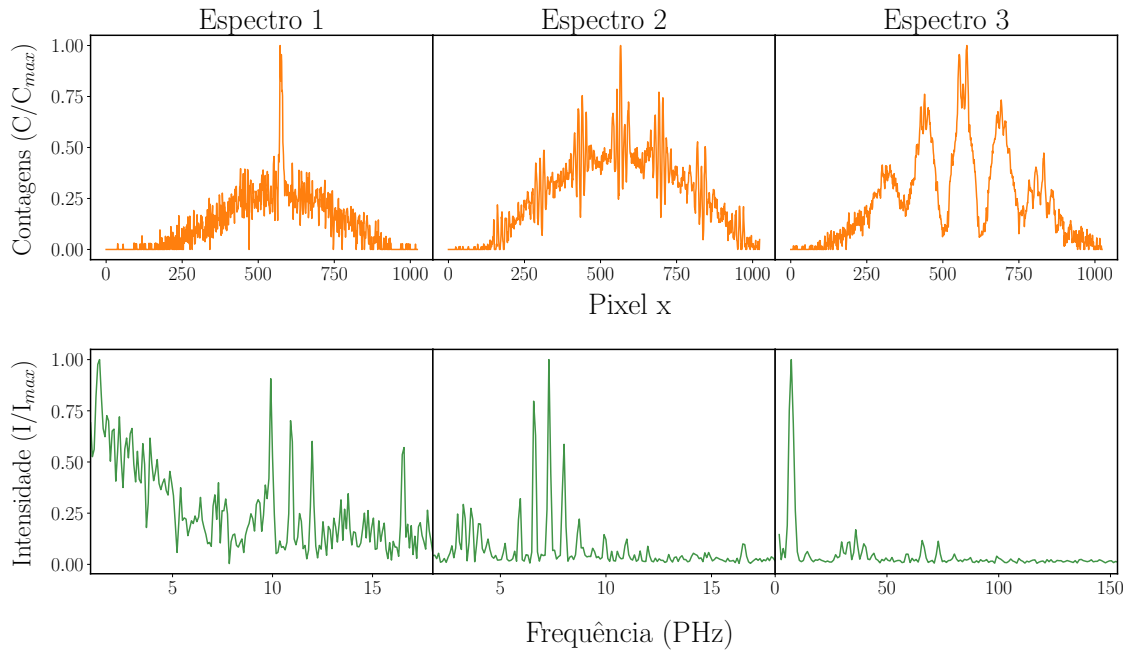


Figura 14 – Espectros obtidos para um tempo de aquisição de 5s e para as fendas de 5 μm , 10 μm , 100 μm respetivamente.

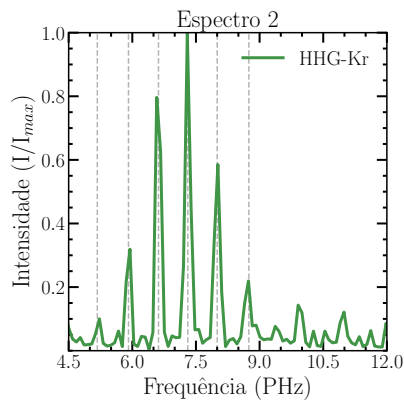


Figura 15 – Seleção de picos no espectro da fenda 2 ($d = 100\mu\text{m}$)

Pico #	ν (PHz)	ν/ν_{laser}	Harm.
1	5.18 ± 0.13	13.80 ± 0.35	13
2	5.91 ± 0.15	15.76 ± 0.39	15
3	6.62 ± 0.17	17.65 ± 0.44	17
4	7.31 ± 0.18	19.49 ± 0.49	19
5	8.00 ± 0.20	21.34 ± 0.53	21
6	8.75 ± 0.22	23.33 ± 0.58	23

Tabela 5 – Identificação dos picos na fenda 2 ($d = 100\mu\text{m}$) com as harmónicas

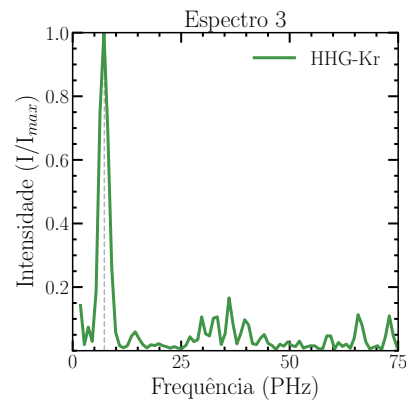


Figura 16 – Seleção de picos no espectro da fenda 3 ($d = 10\mu\text{m}$)

Pico #	ν (PHz)	ν/ν_{laser}	Harm.
1	7.30 ± 0.18	19.46 ± 0.49	19

Tabela 6 – Identificação dos picos na fenda 3 ($d = 10\mu\text{m}$) com as harmónicas

3.5 Neon

3.5.1 Optimização dos parâmetros

Começou-se por variar a pressão, a abertura da íris e o ângulo do filtro polarizador. Tendo encontrado os valores óptimos, atendo às condições da experiência, que correspondem às três primeiras colunas da tabela 7, capturaram-se imagens na CCD para vários tempos de aquisição.

Pressão	Abertura Íris	Ângulo Filtro Polarizador	Tempo Aq.
70.0 mBa	6 mm	38°	2 s

Tabela 7 – Parâmetros ótimos para Neon

Uma vez que o número de contagens para os HH do Neon não foi grande o suficiente para ser visível o padrão de interferência dentro do tempo de aquisição máximo possível, não foi possível obter uma imagem do mesmo.



Figura 17 – HH de Neon.

3.6 Análise comparativa dos 3 gases estudados

Pretende-se nesta secção estabelecer uma comparação entre os valores ótimos dos 3 parâmetros estudados para os 3 gases, Ar, Kr e Ne.

No que toca à pressão, na tabela 8 encontram-se tabelados alguns parâmetros importantes dos 3 elementos, como massa atómica [3], energia de ionização [4] e densidade [5].

Gás	M	$E_{1^{a}ion}$	Densidade	$P_{ótima}$
Krypton	83.80	1350.8	3.7	7.0
Argon	39.95	1520.6	1.7	14.5
Neon	20.18	2080.7	0.9	70.0

Tabela 8 – Parâmetros de cada gás em estudo: A massa molar é apresentada em **g/mol**, a $E_{1^{a}ion}$ em **kJ/mol**, a densidade em **g/L** e a pressão ótima experimental em **mbar**.

Como se pode observar pela análise da tabela 8, para gases mais leves é necessário mais energia para ocorrer ionização. Para além disso, quanto mais diluído é o gás, menos provável é a ionização. Assim, é de esperar que a pressão ótima encontrada experimentalmente seja superior para os gases de menor densidade e mais leves. É de facto essa a tendência que se observa nesta tabela, logo os resultados obtidos estão de acordo com as características de cada gás.

No que toca à atenuação, na tabela 9 podemos verificar que o valor ótimo do ângulo do filtro polarizador é maior para o Krypton, i.e., para os gases com maior 1ª energia de ionização, é necessário deixar passar mais energia pelo filtro para maximizar as contagens na CCD, o que seria de esperar.

Gás	Atenuação (°)
Krypton	60
Argon	50
Neon	38

Tabela 9 – Atenuação experimental ótima obtida para cada gás em estudo.

Relativamente à abertura da íris não é possível concluir dado que os valores obtidos são próximos para os 3 gases. Concluimos assim que o parâmetro com mais efeito no processo de otimização é a pressão do gás.

4 Conclusão

Com este trabalho foi possível observar experimentalmente o espectro de HHG dos gases de Árgon e Krypton e identificar os respetivos harmónicos, que se confirmaram ser ímpares, como previsto pela teoria. O espectro harmónico do gás de Neon não foi observado para os parâmetros utilizados.

Em nenhum dos espectros obtidos foi possível observar o *plateau* esperado.

Constatou-se que a geração de harmónicas era mais sensível à variação da pressão e ao ângulo do filtro polarizador do que à abertura da íris. Verificou-se que quanto mais leve o gás, maior a pressão e o ângulo do atenuador necessários, como esperado teoricamente.

Para o futuro, sugere-se um estudo do regime de funcionamento da CCD, de modo a serem possíveis tempos de aquisição mais longos.

Bibliografia

- [1] P. B. Corkum. “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”. *Physical Review Letters* 71.13 (1993), p. 1994.
- [2] Krause, J. L., Schafer, K. J. Kulander, K. C. (1992). High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.* 68(24): 3535–3538.
- [3] https://www.angelo.edu/faculty/kboudrea/periodic/structure_mass.htm
- [4] https://en.wikipedia.org/wiki/Molar_ionization_energies_of_the_elements
- [5] <https://www.angstromsciences.com/density-elements-chart>
- [6] R. A. Bartels, A. Paul, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and S. Backus, Y. Liu and D. T. Attwood