

Pécsi Tudományegyetem

Fizika Doktori Iskola
Nemlineáris optika és spektroszkópia program

Magas lézerharmonikusok keltése nemesgázklasztereken

Aladi Márk

Témavezető:
Dr. Földes István
Tudományos tanácsadó

PhD értekezés tézisei



Pécs, 2017.

Bevezetés

Mérsékelt lézerintenzitásokon a fényel való kölcsönhatás eredményeként dipólmomentum indukálódik az atomokban és a lézerfrekvencia alacsonyrendű felharmonikusait tartalmazó sugárzás keletkezik, a rendek számával exponenciálisan csökkenő intenzitással. Körülbelül 10^{13} W/cm² fényintenzitás esetén ionizációs folyamatok következtében azonban magasrendű felharmonikusok is keletkeznek, de már közelítőleg azonos erősséggel.

Az optikai magasrendű felharmonikus keltés (angolul High Harmonic Generation, *HHG*) kísérleti megvalósításakor rövid lézerimpulzust gáztargetbe fókuszálunk, amelynek eredményeként a kimenő nyalábban a lézerfrekvencia páratlan rendű magas harmonikusai ($\omega_L, 3\omega_L, 5\omega_L, \dots$) keletkeznek, akár $> 300\omega_L$ megjelenésével is. Ez a technika a rövid impulzusú, koherens extrém-ultraibolya (EUV) források legegyszerűbb előállítása, amellyel gyakorlatilag a teljes spektrális tartomány elérhető a láthatótól a keV energiájú röntgen-tartományig, akár szubfemtosekundumos ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) impulzushosszak formájában is.

A jelenség magyarázata a következő: gázokban lévő atomokban, molekulákban, vagy klaszterekben a nagy térerősség torzítja az atomi Coulomb-potenciált, így az elektronok optikai alagútionizáció révén kvázi szabaddá válnak. Ezután oszcillálnak az ion körül a lézer terében, majd rekombinálódhatnak, kibocsátva többletenergiájukat egy foton formájában. A fotonkibocsátás a lézerperiódus alatt kétszer ismétlődik, a térerősség pozitív és negatív maximumának közelében. Ez az időbeli periodicitás diszkrét spektrumvonalak megjelenését okozza a lézerfrekvencia páratlan többszöröseinek helyén, $2\omega_L$ távolságonként. A széles sávú ($\Delta\omega$) sugárzásnak az időbeli hossza a Fourier-transzformáció szabályai szerint az $1/\Delta\omega \sim 10^{-18}$ s (1 as) tartományba is eshet, amelyre elsőként magyar kutatók hívták fel a figyelmet.

A lézeres magas harmonikuseltetés felfedezése óta beszélhetünk ún. attoszekundumos fizikáról, amely eddig nem látott rövid időskálán teszi lehetővé a különböző molekuláris, atomi folyamatok időfelbontott vizsgálatát. Az elmúlt három évtizedben különféle kísérleti elrendezésekkel igyekeztek javítani a konverziós hatásfokot, amely általánosságban 10^{-7} nagyságrendű, és behatárolja a lehetőségeket az alkalmazások tekintetében. Példaként említhető, hogy az attoszekundumos impulzusok a vízablak tartományban (2.3-4.4 nm) - ahol a biológiai szövetek, sejtek átlátszóvá válnak - egyedülálló spektroszkópai és képalkotási lehetőségeket adnak.

A lézer-gáz kölcsönhatás létrehozásának egyik lehetséges módja, hogy impulzusszelepeken keresztül gázt injektálunk a vákuumba, ún. gázjeteket. Nagy háttérnyomás esetén a gázjetben klaszterek képződhetnek, amelyek több ezer-tízezer atomból álló részecskék, az atomok között Van der Waals kötéssel. A nemesgázok használata a legelterjedtebb, és a klaszterek effektív targetek a HHG folyamat számára.

Tudományos előzmények

Attoszekundumos impulzusokat (100-200 as impulzushosszúságú sorozatokat) jelenleg csak HHG útján lehet előállítani, és az alkalmazások területén probléma az impulzusok alacsony energiája. Gázharmonikusok esetén ennek legfőbb oka az alkalmazható limitált lézerintenzitás, mert egy bizonyos küszöb felett az ionizáció már rontja a HHG folyamat hatásfokát. A kutatások fő iránya ezért a lehető legnagyobb energiájú, legrövidebb, lehetőleg izolált attoszekundumos impulzusok létrehozása.

A gázklaszttereken végzett HHG kísérletek a 90-es évek második felében kezdődtek. Elterjedt volt az a vélekedés, hogy ez a közeg a tökéletes nemlineáris target, átmenet a szilárd- és gázfázis között, rendelkezik a szilárdtesteken keltett plazmaharmonikusok azon tulajdonságával, hogy nem jelentkezik ionizációs limit a közegben. A klaszterek felhasz-

nálásával a magasabb harmonikus rendek és nagyobb konverziós hatások elérése volt a cél.

A széleskörű elterjedés azonban elmaradt, amely több dolognak volt köszönhető: A magas harmonikusok keltés mechanizmusa klaszterekről, mint sokrészecskés rendszerekről bonyolult fizikai probléma és ellentmondásos kísérleti, elméleti eredményekkel bír. Az elektronok a klaszterek nagy atomsűrűsége miatt véges valószínűséggel a szomszédos atomokhoz is rekombinálandóak, amely inkohérens sugárzás kibocsátását eredményezheti. Ugyanakkor az is elképzelhető, hogy egy egész klaszteren értelmezett kollektív hullámfüggvény van jelen, és az elektronok koherensen rekombinálandóak.

A közegben jelenlévő különböző klaszterméretűek az atomokról és klaszterekről keltett harmonikusok kísérleti szétválasztását, valamint az aktuális mechanizmus vizsgálatát nagyban megnehezíti. Emellett az elméleti nézőpontból kedvező homogén és/vagy hosszú klasztertargetek létrehozása sem egyszerű.

A terjedési effektusokat elhanyagolva a lézer-klaszter kölcsönhatások magasabb fotonenergiát, illetve konverziót ígértek a HHG folyamat során, a makroszkópikus tulajdonságok és így a kísérleti megvalósítások azonban nem támasztották alá ezeket az eredményeket. Továbbá az alkalmazott lézerintenzitás sem növelhető klaszterközegekben a kívánt mértékben, az ionizációs limit itt is jelentkezik az atomi közegekhez hasonlóan. Nemrégiben azonban, hogy változtatva a gáz kezdeti, tágulás előtti hőmérsékletét, és így a klaszterek méretét, kimutatható, hogy egy bizonyos mérettartományban valóban nagyobb konverziós hatásfokot adnak a klaszterek.

Klaszterek, mint HHG targetek

A szelep kinyitásakor a vákuumba kilépő, táguló gázsugár izentrópiikus állapotváltozáson megy keresztül. Ennek során a gáznyomás és a hőmérséklet gyorsan csökken, közben a

gáz kondenzálódik. Méretüket elsősorban a nyomással, ill. különböző kondenzációs hatásokkal rendelkező gázok használatával befolyásolhatjuk. Számottevő hatása van továbbá a különböző szelepgeometriák alkalmazásának is. Alapvető elvárás, hogy a szelep és fúvóka ismételt működésekor a lehető leghasonlóbb gázeloszlást kapjuk, ugyanis a nemlineáris kölcsönhatások -, mint a magas harmonikusok keltése - nagyon érzékenyek a kezdőfeltételek kis megváltozására is. Ez hatványozottan igaz klaszterek esetén, amely közeg erős lézertérben erősen nemlineáris viselkedést mutat.

A klasztereződés leírására a fúvókageometria általában egyetlen paraméter segítségével jellemezhető. A de Laval geometria -, ahol a torok felé konvergáló részt egy divergáló rész követi - szuperszónikus gázjetek előállításakor hasznos. Kónikus (kúp alakú) geometria esetén a torok átmérője, és a fúvóka félnyílásszöge releváns. A legegyszerűbb a hengeres geometriájú fúvóka, amelyben főként a kiömlőnyílás átmérője határozza meg az átlagos klaszterméretet. Bizonyos esetekben, például rövidebb kölcsönhatási hossz előállításához előnyös lehet a téglalap alakú nyílással rendelkező fúvókák használata is, amely nagyobb klaszterméretet is adhat a kónikus fúvókákhoz képest.

Kónikus fúvókákat számos cikkben vizsgálták, a de Laval geometria azonban kevesebb figyelmet kapott. Ez részben a bonyolult, csak szikraforgácsolással készíthető geometriának köszönhető, másrészt voltak vizsgálatok, amelyek szerint de Laval geometria esetén lyukas térbeli klasztereloszlás mérhető a fúvóka tengelyére merőleges síkban. Ugyanakkor szimulációs vizsgálatok megmutatták, hogy a de Laval fúvóka bizonyos geometriai arányok mellett jó közelítéssel négyszögalakú (flat-top) sűrűségeloszlást adhat, amely már megfelelő targetet biztosít lézerkölcsönhatások vizsgálatához. A különböző munkákban vizsgált fúvókák között gyakran kis különbségek vannak, amelyek viszont számottevő hatással lehetnek a gázáramlás-, és így a magas harmonikusok tulajdonságaira is.

Célkitűzések

A konverziós hatásfok számottevő növelése klasztertargetek alkalmazásával továbbra is a jövő kihívása, ezért doktori értekezésem egyik célja a klaszteres magas harmonikus-keltés folyamatának részletes kísérleti elemzése volt. Kutatómunkámat az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont hELIOS lézertáborjában végeztem.

Fő céлом volt a klaszterközeg - mint effektív HHG target - tulajdonságainak vizsgálata, és a következő kérdések minél pontosabb megválaszolása. Milyen előnyökkel rendelkezhet a klaszteres közeg az atomos közegekhez képest a harmonikus-keltésben? A magas harmonikus nyalábok mennyiben használhatók a klaszterek tulajdonságainak diagnosztizálására? Milyen információt adhatnak a magas harmonikus spektrumok a klaszterek erős lézertérbeli viselkedéséről?

Mivel a korábban publikált kísérletek nem mindig voltak reprodukálhatók, valamint a saját kísérleteink esetén is tapasztaltuk, hogy a különböző fúvókák eltérő eredményeket adnak, szükséges volt a kísérleti feltételek pontos kézbentartása. Céлом volt ezért egy olyan diagnosztika megépítése is, amely alkalmas a gázjetbeli klasztereloszlás minél pontosabb vizsgálatára és a fúvókák közötti különbség kimutatására.

A dolgozat első részében a klaszteres gázjet közeg tulajdonságait (klaszterméret és -sűrűség) határoztam meg, a második részben pedig a klasztereken keltett magas harmonikus nyalábok spektrális tulajdonságait, konverzióját vizsgáltam.

Alkalmazott módszerek

Lézerforrásként a Coherent Inc. által gyártott Legend Elite HE-USP titán-zafír erősítős rendszer szolgált, amely 4 mJ energiájú és 40 fs hosszúságú impulzusokat adott. A gáztargeten történő lézeres magasharmonikus-keltés vizsgálatára alkalmas kísérleti elrendezés

tervezésében és megépítésében tevékenyen részt vettem. Különböző optikai-, optomechanikai elemek használatával kiépítettem a lézerimpulzusok nyalábvezetését és monitorozását, eljuttatva a magas harmonikusok előállításához és detektálásához épített vákuumrendszerhez. A vákuumrendszer két fő részből, egy kölcsönhatási-, ill. egy detektálási részből tevődik össze. A kölcsönhatási kamrában megterveztem és megépítettem a gázinjektálás rendszerét. Ennek pontos karakterizálását lézeres Rayleigh-szórás diagnosztikával végeztem el. A nagyintenzitású kölcsönhatás eredményeként létrejövő UV sugárzás vizsgálatára alkalmas vákuum-ultraibolya spektrométer már rendelkezésre állt. Illesztettem a kölcsönhatási kamrához, valamint továbbfejlesztettem az infravörös fény spektrométerből való kiszűrésének módszerét.

Lézeres Rayleigh-szórás diagnosztika. A gázjetekben keletkező nemesgázklaszterek eloszlásának térbeli-időbeli vizsgálatához részt vettem a lézeres Rayleigh-szórás diagnosztika felépítésében. Terveztem egy targetmozgató mechanikát, amely lehetővé teszi a klaszterjetek nagy pontosságú, helyfüggő analízisét különböző fúvókageometriák esetén. Az elrendezéssel képet kaphatunk a gázjet különböző síkmetszeteiben lévő klasztermérek kétdimenziós eloszlásáról, és össze is hasonlíthatjuk a különböző fúvókákra jellemző klasztereződést.

A diagnosztika a klaszterek formálódásának viszonylag egyszerű, hatékony mérését teszi lehetővé. Az elrendezésben egy folytonos működésű lézernyalábot fókuszáltam a gázjetbe. A klaszterekről szóródott fényt 90° -ban elhelyezett detektorokkal, egy fotoelektron-sokszorozó modul és egy CCD kamera segítségével monitoroztam. Így lehetséges volt egy térben integrált Rayleigh-szórás jel időfelbontott detektálása, valamint a klaszterek formálódásának térbeli vizsgálata.

Vákuum-ultraibolya spektrométer. A spektrométer hivatott vizsgálni a kölcsönhatási kamrarészben keltett magas harmonikus nyalábok spektrális tulajdonságait. Egy

reflexiós optikai rács a detektor felületére képezi a térben elkülönített hullámhosszkomponenseket. A detektor egy ún. mikrocsatornás lemez, amely a bemenetére érkező alacsony intenzitású ultraibolya nyalábok erősítésére és megjelenítésére szolgál. Felületét mikrocsatornák sokasága alkotja, amelyek a fotoelektron-sokszorozó csövekhez hasonlóan működnek, lehetővé téve a sugárzás térbeli felbontását. Az elektronok a pozitív feszültségre kapcsolt fluoreszcens foszforernyőbe csapódnak, ahol felvillanást keltenek a látható tartományban. A felvillanást, vagyis a spektrumot egy nagy fényerejű objektívvel ellátott CCD kamerába képezzük.

Nanoplazma-modell. A lézer-klaszter kölcsönhatás közben a klaszterek ionizálódnak, amely során ún. nanoplazmáról beszélhetünk. A klaszterek lézertérben való felbomlásának karakterisztikus ideje több paraméter, így a lézerintenzitás függvénye is. Az általunk alkalmazott intenzitás és impulzushossz mellett feltehető, hogy a nanoplazma jó közelítéssel egyben marad a kölcsönhatás közben, és mint közeg meghatározza a magas harmonikus-keltés makroszkópikus tulajdonságait. A nanoplazma optikai tulajdonságait J.W.G. Tisch vizsgálta és a klasszikus Drude-modell alapján határozta meg a diszperziós járulékát.

A kölcsönhatási térfogatban lévő átlagos klaszterméretnek és -sűrűségnek, valamint a harmonikus rendek spektrális eltolódásának viszonyát a nanoplazma-modell keretein belül vizsgáltam. A modell egy diagnosztikai módszer lehet a nanoplazma dinamika elemzésére és segítséget adhat egy konzisztens kép felállításához a klasztereken történő harmonikus-keltésben.

Eredmények (tézispontok)

T1. A Rayleigh-szórás diagnosztikával megmértem a klaszterek térbeli és időbeli eloszlását. Megmutattam, hogy a gázjet térbeli eloszlása erős helyfüggést mutat, a sűrűség-

profil nagymértékben függ a lézer és gázjet pozíciójától. Különböző sűrűségmodulációkat detektáltam a négy vizsgált fúvóka esetén. Kísérletileg igazoltam azon szimulációs eredményeket, miszerint a de Laval fúvókák a pontos geometriai arányoktól függően lyukas, illetve a kölcsönhatások szempontjából elvárt négyszög alakú profillal is rendelkezhetnek. [S4].

T2. Megmutattam, hogy a különböző geometriájú fúvókákban a klaszterméret eltérő hatványfüggvények alapján skálázódik a háttérnyomással. Meghatároztam a klaszterek abszolút méretét különböző fúvókageometriák esetén. Vizsgáltam a klaszterformálódás anyagfüggését argon és xenon gáz használatával. Bizonyos fúvókák esetében az általam meghatározott átlagos klaszterméreték nagymértékben eltértek a széleskörűen használt Hagená-skálázástól. Rámutattam, hogy a Hagená-törvény kondenzációs paramétere elégtelen az anyagfüggés leírására, és hogy a paraméter függhet a fúvókageometriától. Ezen eredmények szerint a Hagená-törvény, ill. az egyetlen anyagfüggő paraméter nem elegendő a lézer-klaszter kölcsönhatások leírásához. [S4].

T3.a Magas harmonikus nyalábok konverziós hatásfokát vizsgáltam különböző kondenzációs hatásfokkal rendelkező gázok esetén a különböző mérettartományban lévő klaszterek hatásának felderítésére. Megállapítottam, hogy a klaszterek növelhetik a HHG konverziót, de az ionizációs küszöb számottevően nem növekszik az atomos közegbeli értékekhez képest. Ezek az eredmények összhangban vannak korábbi kísérletekkel. [S1, S2].

T3.b A legnagyobb klaszterméretet adó xenon jetben megfigyeltem a háttérnyomás növelésével a harmonikus rendek szignifikáns spektrális kiszélesedését, amely összemérhető a harmonikusok távolságával. Ez a klaszterek jelenlétének bizonyítéka. Demonstráltam, hogy a kékeltolódás és kiszélesedés kihasználásával egy kvázi folytonosan hangolható, koherens EUV forrás nyerhető, amely akár röntgen szabadelektron-lézerek magimpulzusaként is alkalmazható. [S1].

T4. Elsőként mutattam meg, hogy viszonylag alacsony lézerintenzitások esetén, amikor a szabad elektronok száma még kicsi, egy a nyomással növekvő vöröseltolódás lép fel a harmonikus rendekben. Ez az eltolódás jóval kisebb, mint az általában domináló, szabad elektronok által okozott kékeltoadódás, és csak a legnagyobb klasztereket adó xenon gázban figyelhető meg.

Az effektust az ún. nanoplasma-modellel magyaráztuk meg, amely az ionizált klaszter optikai tulajdonságait írja le. A magas harmonikus nyalábok terjedése során az ionizált klaszterközeg diszperzóját megbecsültük. Megmutattam, hogy ez az egyszerű modell képes megmagyarázni a növekvő nyomás, tehát növekvő klaszterméret esetén jelentkező vöröseltolódást a harmonikus rendekben. [S2].

T5. Rámutattam, hogy mivel a nanoplasma-modell segítségével analitikusan felírt vöröseltolódás a klasztertarget tulajdonságainak függvénye (klaszterméret, klasztersűrűség), az eltolódás lehetőséget ad a közegbeli klaszterparaméterek, ill. nanoplasma dinamika vizsgálatára. Meghatároztam a klaszterparaméterek lehetséges tartományát, ill. a klaszterméret Rayleigh-szórás diagnosztikával történő meghatározásával nagyságrendi becslést adtam a közegbeli klasztersűrűség értékére. [S3, S4].

A tézispontokhoz kapcsolódó saját publikációk

[S1] **M. Aladi**, and I.B. Földes, „High harmonic generation from atom clusters”, Journal of Physics: Conference Series 508, 012016 (2014).

[S2] **M. Aladi**, I. Márton, P. Rácz, P. Dombi, and I.B. Földes, „High harmonic generation and ionization effects in cluster targets”, High Power Laser Science and Engineering 2, e32 (2014).

[S3] **M. Aladi**, R. Bolla, P. Rácz, and I.B. Földes, „Noble gas clusters and nanoplasmas in high harmonic generation”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 369, 68 (2016).

[S4] **M. Aladi**, R. Bolla, D.E. Cardenas, L. Veisz, and I.B. Földes, „Cluster size distributions in gas jets for different nozzle geometries”, *Journal of Instrumentation* 12, C06020 (2017).

A doktori munkához kapcsolódó konferencia-előadások

[E1] **M. Aladi**, and I.B. Földes, „High Harmonic Generation from atom clusters”, *Plasma Physics by Laser and Applications*, Lecce, 2013.

[E2] **M. Aladi**, and I.B. Földes, „High harmonics generation and ionization effects in cluster targets”, *Conference on High Intensity Laser and attosecond science in Israel*, Tel-Aviv, 2013.

[E3] **Aladi M.**, „Magas harmonikusok keltése ultrarövid lézerpulzusokkal”, *Fizikus Doktoranduszok Konferenciája*, Balatonfenyves, 2014.

[E4] I.B. Földes, and **M. Aladi**, „High harmonics from noble gas clusters”, *17th International Congress on Plasma Physics*, Lisbon, 2014.

[E5] **M. Aladi**, R. Bolla, and I.B. Földes, „Noble Gas Clusters and Nanoplasmas in High Harmonic Generation”, *Photon and fast Ion induced Processes in Atoms, Molecules and Nanostructures*, Debrecen, 2015.

[E6] **M. Aladi**, R. Bolla, and I.B. Földes, „The effect of clusters on the generation of high harmonics”, *42nd EPS Conference on Plasma Physics*, Lisbon, 2015.

[E7] **M. Aladi**, R. Bolla, and I.B. Földes, „High harmonic generation from clusters and monomers”, *Plasma Physics by Laser and Applications*, Frascati, 2015.

[E8] **M. Aladi**, R. Bolla, and I.B. Földes, „Cluster size distributions for different nozzle geometries in noble gas jets”, *2nd European Conference on Plasma Diagnostics*, Bordeaux, 2017.