

Magasrendű felharmonikusok keltésének kontrollja nemesgázatomokon és klasztereken

DOKTORI DISSZERTÁCIÓ

Bódi Balázs

Témavezető: Dombi Péter
Wigner Fizikai Kutatóközpont

2020

Pécsi Tudományegyetem, Fizika Doktori Iskola
Lézerfizika, nemlineáris optika és spektroszkópia program



Tartalomjegyzék

Rövidítések	1
1. Motiváció és témamegjelölés	2
2. Attofizikai bevezető	5
2.1. Ultrarövid lézerimpulzusok	5
2.1.1. Titán-zafír lézerek	5
2.1.2. Elektromos tér leírása	7
2.1.3. Vivő-burkoló fázis	8
2.1.4. A diszperzió hatása	9
2.1.5. A fényhullám-szintetizátor technológia	9
2.2. Fotoionizációs folyamatok	12
2.3. Magasrendű felharmonikusok keltése	13
2.3.1. Három lépéses modell	14
2.3.2. Lewenstein-féle erős tér közelítés	14
2.3.3. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet	15
2.3.4. Szokásos felharmonikuseltési módszerek	16
2.3.5. HHG fázisillesztés	18
2.4. Femtoszekundumos impulzusok diagnosztikája	22
2.4.1. Autokorreláció	22
2.4.2. FROG	23
2.4.3. SPIDER	25
2.5. Fotoionizációs elektronspektroszkópia és XUV spektroszkópia	25
2.5.1. Repülési idő spektrométer	25
2.5.2. XUV spektrométer	26
2.6. Attoszekundumos impulzusok diagnosztikája	27

2.6.1.	Attoszekundumos autokorreláció	27
2.6.2.	RABITT	28
2.6.3.	Attoszekundumos sávkamera	28
2.7.	Magasharmonikus-keltés klasztereken	30
3.	Attoszekundumos impulzuskeltés optimalizálása	32
3.1.	Fényhullám-szintetizátor modellezése	32
3.1.1.	Elrendezés, csatornák	36
3.1.2.	Genetikus algoritmus	37
3.1.3.	Klasszikus visszatérési idő	39
3.2.	Hangolható késleltetésű attoszekundumos kettősimpulzusok keltése .	39
3.3.	Célfüggvények hatása az eredményekre, a konvergencia javítása . . .	46
3.3.1.	Konvergencia javítása	46
3.3.2.	Célfüggvény hatása	48
3.3.3.	Legrövidebb attoimpulzusok tulajdonságai	49
3.4.	Attoimpulzusok központi hullámhosszának hangolása	50
3.4.1.	Attoimpulzusok központi hullámhosszának hangolása spektrális szűréssel	50
3.4.2.	Attoimpulzusok központi hullámhosszának hangolása optima- lizációval	52
3.5.	Összefoglalás	54
4.	Magasrendű felharmonikus-keltés klasztereken	56
4.1.	Kísérleti elrendezés	56
4.2.	Nemesgázklaszterek előállítása	59
4.3.	Polarizáció és határellipticitás	60
4.4.	Eredmények	63
	Tézisek	69
	Köszönetnyilvánítás	72
	Irodalomjegyzék	73

Rövidítések

AC – **aut**ocorrelation, autokorreláció, a jelet önmagával való összehasonlítás diagnosztikája

CEP – **carrier envelope phase**, vivő-burkoló fázis (keves ciklusú impulzusok)

HHG – **high order harmonic generation**, magasrendű felharmonikusok keltése

MCP – **microchannel plate**, mikrocsatornás elektrondetektor térbeli felbontással

SFA – **strong field approximation** [1, 2], erős lézertérrel feltételező modell az ionizált elektron újraütkezésének számolására

TDSE – **time dependent Schrödinger equation**, módszerek az időfüggő Schrödinger egyenlet numerikus megoldására

XUV – **extreme ultra violet**, az UV sugárzás legmagasabb frekvenciájú tartománya, 10 nm – 124 nm

1. fejezet

Motiváció és témamegjelölés

A lézer megjelenésével egy olyan kompakt, intenzív, koherens és jól irányítható fényforrás vált elérhetővé az emberiség számára, amely óriási tudományos és műszaki haladást tett lehetővé az elmúlt hat évtizedben. A lézerek egyre növekvő intenzitása nem csak új ipari alkalmazásokat tett lehetővé, hanem a tudományos kutatásban is megjelent egy új és azóta is virágzó kutatási terület, a nemlineáris optika [3]. A klasszikus nemlineáris folyamatokban mérhető jel általában az intenzitás n -edik hatványával skálázódik, ahol n a nemlinearitás foka, ezért erősebb fényforrásokkal több nagyságrend jelnövekedést lehet elérni. A fényforrások további fejlődése és az impulzusüzemű lézerek újabb lehetőségeket nyitottak, így jöttek létre a lézer által indukált „strong-field physics” kutatások, azaz a nagy térerősségek fizikája. Az ebbe a körbe tartozó kölcsönhatások vizsgálatakor a lézerfény elektromos térerőssége nagyobb az elektronokra ható, az atomi potenciálból származtatható térerősségnél és az elektron-elektron kölcsönhatásnál.

Elég nagy intenzitás esetén gázatomokon több látható/infravörös tartománybeli foton hatására ionizáció történhet, ezt többfotonos emisszióknak nevezik és a tudományterület egy tipikus jelensége. Olyan folyamatot is megfigyeltek, mikor a gázatom leggyengébben kötött elektronja több foton elnyel egyidejűleg, mint amennyire a kilépéshez minimálisan szükség van. Ekkor az energiafelesleg az elektron mozgási energiáját növeli, ez a küszöb feletti ionizáció 1979-ben felfedezett folyamata [4]. Még nagyobb térerősségek esetén, amikor a lézertér az atomi potenciált már igen jelentős mértékben torzítja, a kvantummechanikából jól ismert alagútemisszióval is kiléphetnek elektronok.

A dolgozat központi témája a magasrendű felharmonikusok keltése (HHG), ami

a *strong-field* témakör egy ma is népszerű kutatási iránya és alkalmazása. Ezen folyamathoz egy erősített femtoszekundumos lézernyalábot fókuszálnak gázközegbe, ahol az atomból kilépő elektron a lézer terében gyorsul, majd visszatérve leadja az energiáját, hogy koherens ún. XUV (extrém ultraibolya tartománybeli) fotonokat keltsen. Az így keltett nagy sávszélességű, koherens fény megfelelően spektrális szűrésével attoszekundumos impulzusvonulat, vagy akár különálló (a szakirodalomban: „izolált”) attoszekundumos impulzus is kelthető.

Olyan keltő impulzus esetén ami néhány optikai ciklusnál hosszabb, csak különféle ötletekkel (pl. polarizációs kapuzás [5]) tudtak előállítani izolált attoimpulzust, ezek nélkül annak minden félciklusa kelt egy attoszekundumos impulzust, ez az impulzusvonulat.

Az atomok és molekulák elektronszerkezetének átrendeződése jellemzően az attoszekundumos időskálán történik, ezért kiemelkedő fontosságú, hogy a felharmonikuskelteessel létrejött egy olyan eszköz, mellyel ezen elektronok dinamikája vizsgálható [6–8]. Az impulzusvonulat több attoszekundumos impulzust is tartalmaz, így nehéz megállapítani, hogy ezek közül melyik milyen állapotba vitte az atomi (vagy molekuláris) rendszert, emiatt kiemelkedő fontosságú az izolált attoszekundumos impulzusok keltése (az atto-impulzusvonulattal szemben). Az időbontott, ún. pumpa-szonda kísérletekhez pedig jól használható lenne olyan attoszekundumos kettősimpulzus is, amelyben hangolható az impulzusok közti késleltetés (3. Fejezet).

A fentebb leírt érvek miatt van nagy jelentősége az optikailag előállított, ciklushossznál rövidebb impulzusoknak is. Ez volt a célja annak a kísérletnek [9], ahol egy koherens, szélessávú (fehér) fényforrást spektrális nyalábosztókkal választottak szét spektrális csatornákra (színekre), majd amplitúdó- és fázisbeli módosítás után egyesítették. Az ún. fényhullám-szintetizátor eszközzel így, optikai úton előállított ciklushossznál rövidebb impulzusokat a 2. fejezetben bemutatott sávkamera felvételhez használták, de az impulzus rövidege miatt HHG keltésre is alkalmas, hiszen izolált attoimpulzus kelthető vele. Engem ez az ötlet motivált a módszer szimulációs környezetben való vizsgálatára: milyen impulzusformák nyerhetők, ha a fényszintetizátor kimenetével magasrendű felharmonikusokat keltünk? Mennyire rövid impulzust lehet kelteni egy ilyen eszközzel?

Az attoszekundumos tudományterület egy másik fontos kérdése, hogy mi történik, ha – az általában használt – atomos gázközeg helyett klaszterekbe tömörülő

gázt használunk a felharmomikusok előállításához. Korábbi kutatások már kimutatták [10, 11], hogy így nagyobb intenzitás érhető el és egyes források szerint [10, 12] a letörési energia (vagyis a legnagyobb, felharmomikuskeléssel előállított fotonenergia) is megnövelhető. Az eddigi kutatások során tisztázatlan kérdés maradt viszont az, hogy hogyan történik meg a folyamat, vagyis hol rekombinálódhat a visszatérő elektron.

Korábbi kutatások [13] alapján felmerült, hogy a rekombináció nem csak a lézer által ionizált atomon rekombinálódhat (ún. „atom-to-itself” mechanizmus), hanem az ion töltésének delokalizációjával egy kisebb, szomszédos környezetben is („atom-to-neighbour”), vagy akár az egész klaszteren („cluster-to-itself”).

Vizsgálatom során különböző klaszterméretek esetén mértem a HHG hatásfokának lecsengését a keltő tér ellipticitásának függvényében, melyből a határellipticitás fogalmának bevezetése után vontam le következtetést a rekombinációs mechanizmusra, melyet egy egyszerű elméleti modell is alátámasztott. A kísérleteimhez rendelkezésemre állt egy erősített femtoszekundumos lézerrendszer, egy magasharmonikuskelésre alkalmas vákuumkamra-elrendezés és a szükséges optikai elemek.

A dolgozat felépítését tekintve a 2. fejezetben irodalmi áttekintést adok a vizsgált témakörhöz az ultragyors optika alapvetéseitől a magasharmonikus-kelés történetén és elméletén át a mérési-karakterizálási módszerekig. A 3. fejezet a fényhullám-szintetizátor modellezésével kapcsolatos eredményeimet, a 4. fejezetben pedig a klasztereken történő magasharmonikuskelésre vonatkozó kísérleteimet fejtem ki részletesen. A dolgozat végén tézispontokba gyűjtve foglalom össze az eredményeimet.

2. fejezet

Attófizikai bevezető

Ebben a fejezetben áttekintem az általam kutatott tudományterületek irodalmát. Az elején ultrarövid lézerimpulzusok tulajdonságait és az általam modellezett fényhullám-szintetizátor eszközt és a fotoionizációs folyamatokat mutatom be. Ezt követően a disszertáció alapvető technikáját, a magasharmonikus-keltést tárgyalom a fenomenológiai bevezetéstől az elméleti háttéren keresztül gyakorlati megvalósításig (kísérleti problémákkal), majd az ultrarövid impulzusok karakterizálási módszereit sorolom fel femto- és attoszekundumra különválasztva. A fejezet végén a klasztereken történő magasharmonikus-keltés irodalmába nyújtok betekintést.

2.1. Ultrarövid lézerimpulzusok

Ultrarövid impulzusnak hívják a néhány tíz pikoszekundumnál rövidebb impulzusokat. Ebben a dolgozatban 100 femtoszekundumnál rövidebb impulzusok vizsgálatával foglalkozom, egészen 50 attoszekundumig, ezért áttekintem az ezek előállításához szükséges lézerfizikai hátteret.

2.1.1. Titán-zafír lézerek

Az ultragyors tudomány egyik leggyakrabban használt technológiája a titán-zafír (Ti:Sa) lézeren alapul, melynek erősítő közege egy Ti^{3+} ionokkal adalékolt zafírkristály (Al_2O_3) [14, 15]. Mivel a Ti:Sa kristály abszorpciója a 450 – 600 nm tartományban jelentős, ezért hatékonyan lehet optikailag pumpálni argonion (514 nm), frekvenciakétszerezett Nd:YAG (532 nm) és Nd:YLF (526 nm) lézerekkel. Titán-zafír

oszcillátor esetén folytonos, erősítőknél pedig impulzusüzemű a pumpálás.

A Ti:Sa kristály emissziós spektrumának középhullámhossza 800 nm körüli, szélessége pedig a vibronikus átmeneteknek köszönhetően rendkívül nagy. Emiatt a módusszinkronizált (szélessávú) működés közben a lézer sugárzásának egy része a látható tartományba esik. A széles spektrumú impulzus transzformációkorlátozott esetben kevés optikai ciklusú is lehet (az optikai periódus 800 nm-es hullámhosszra $T = 2,67$ fs). Az általam használt Ti:Sa oszcillátorok tipikusan 80 MHz körüli ismétlési frekvenciával működtek, egy impulzusba néhány nJ nagyságrendű energia jutott a maximálisan használható 5 – 10 W körüli pumpálóteljesítmény mellett. Noha egy ilyen impulzus rövidege miatt a csúcshintenzitás fókuszálás nélkül is elérheti a 10^8 W/cm²-et, tipikus fókuszálás mellett pedig négy nagyságrenddel¹ többet, nemlineáris folyamatoknál ennél nagyobb intenzitásra is lehet szükség. A dolgozat fő témájaként tárgyalt magasharmonikus-keltéshez legalább 10^{13} W/cm² intenzitás szükséges, de tipikusan inkább a 10^{14} W/cm² – 10^{15} W/cm² nagyságrendű intenzitást használnak.

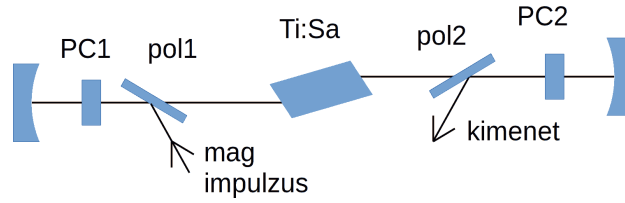
Erre a követelményre nyújtanak megoldást a lézererősítő rendszerek. Működésük alapelvét tekintve hasonlóan működnek mint egy oszcillátor, melyben a populációinverziót egy másik lézer (pumpáló lézer) hozza létre. Szükséges hozzá egy rövid magimpulzus (oszcillátorból), amit az erősítőközegben létrehozott populációinverzió és indukált emisszió felerősít. Megvalósítását, a lézerarchitektúrát tekintve regeneratív vagy többutas (multipass) erősítők léteznek. Ez előbbi lényege, hogy gyors optikai kapcsolókkal a megfelelő időpillanatban engedje be a magimpulzust és csatolja ki az erősített impulzust (ld. 2.1 ábra). A többutas erősítőben az erősített nyalábot többször visszairányítják a pumpált kristályra, így az 1-1 lépésben a kristály különböző részein erősödik indukált emisszióval.

Az erősítőben levő optikai elemeket károsíthatná a lézer elektromos tere, ezért rácspárral növelik a magnyaláb impulzushosszát, hogy kisebb legyen az energiaáramsűrűsége, és ne roncsolja az erősítő optikai felületeit². A kicsatolás után egy rácscs kompresszor kompenzálja a diszperziót.

A titán-zafír és a fentebb leírt lézererősítés (chirped pulse amplification, CPA) technológiának számos alkalmazása van a nagyintenzitású kísérleteken túl is. A CPA technológián alapuló szemműtéteket a 2018-es fizikai Nobel-díj kapcsán is megemlégették, valamint számtalan egyéb alkalmazása létezik a kétfotonos mikroszkópiá-

¹Egy tipikus rövid fókuszálásnál, pl. $f = 30$ cm-es gyűjtőlencse esetén.

²Nobel díj 2018: D. Strickland és G. Mourou, CPA lézer erősítés.



2.1. ábra. A regeneratív erősítő sematikus rajza. A Ti:Sa a pumpált kristályt jelzi, itt erősödik a nyaláb minden átmenetkor. A magimpulzus becsatolása a pol1 polarizációs optikán történik, és a PC1 Pockels-cella forgatja el a polarizációját függőlegesre. A kimenetet hasonlóan a PC2 Pockels-cella irányítja: a megfelelő időpontban 90° -kal elfordítja a polarizációját, így a pol2 kicsatolja a nyalábot a rezonátorból.

ban, különböző időbontott vizsgálatokban, a spektroszkópiában, a femtokémiában, plazmafizikában, lézeres részecskegyorsításban, frekvenciametrológiában és az alább részletesen is bemutatandó attoszekundumos fizikában.

2.1.2. Elektromos tér leírása

A femtoszekundumos lézerimpulzus elektromos tere felírható komplex alakban, mint $\hat{E}(t) = E_0(t)e^{-i\Phi(t)}$, tehát minden t időpillanathoz tartozik egy E_0 amplitúdó és egy $\Phi(t)$ fázis. Az elektromos tér természetesen fizikai mennyiség, így a komplex alak valós része mérhető mint elektromos tér: $E(t) = \text{Re}(\hat{E}(t))$. A komplex forma a számolást teszi egyszerűbbé sok esetben, például a Fourier transzformációt, melyre sok esetben szükség van. A spektrális téramplitúdó tehát az ω körfrekvencia függvényében felírható:

$$\hat{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \hat{E}(t)e^{-i\omega t} dt = \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t)e^{-i\omega t - i\Phi(t)} dt \quad (2.1)$$

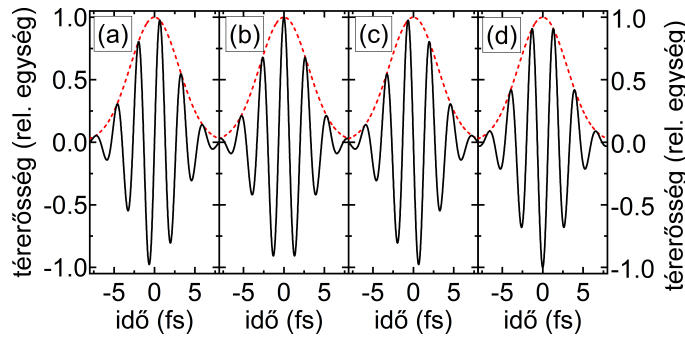
A spektrális intenzitás ennek négyzetével arányos: $I = \frac{cn\varepsilon_0}{2}|E|^2$, ahol c a fénysebesség, n a közeg törésmutatója és ε_0 a vákuum permittivitása. A kutatásaimat bemutató fejezetekben hivatkozok a lézer központi hullámhosszára is, melyet szokás $\lambda_c = \frac{2\pi c}{\omega_c}$ módon meghatározni, ahol c a vákuumbeli fénysebesség és ω_c a központi körfrekvencia:

$$\omega_c = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \omega I(\omega) d\omega}{\int_{-\infty}^{\infty} I(\omega) d\omega}. \quad (2.2)$$

2.1.3. Vivő-burkoló fázis

A vivő-burkoló fázis (carrier envelope phase, CEP) egy lézerimpulzus burkolójához képest a vivőhullám fázisa, tehát a komplex elektromos teret $\hat{E}(t)e^{-i\omega t} = E_0(t)e^{-i\omega t - i\Phi_{\text{CEP}}}$ alakban felírva a Φ_{CEP} a vivő burkoló fázis, ahol $E_0(t)$ a vivőhullám ω frekvenciájához képest lassan változó burkoló (csúcsértékkel $t = 0$ -ban). Egy sok ciklusú impulzusnál a burkoló csúcsánál a térerősség abszolútértékének lokális maximumai egymáshoz közeli értékeket vesznek fel, például egy 800 nm központi hullámhosszú, 50 fs (19 ciklus) hosszú impulzus esetén a második legnagyobb csúcs csak kb. ezrelékkal kisebb mint az abszolút maximum.

Kevés ciklusú impulzusoknál ehhez képest kiemelkedő szerepet játszik a CEP, a 2.2 ábrán bemutatott 5 fs hosszú koszinuszimpulzusra a fenti arány 0,999 helyett 0,9 körüli érték, tehát majdnem 10% a különbség. Egy nemlineáris folyamat ezt a különbséget tovább erősítheti, pl. az impulzus hatására létrejövő alagútionizáció a két legnagyobb csúcs esetén akár nagyságrendi különbséget is mutathat. A nevezetes eseteket és a speciális hullámformájú impulzusok elnevezését a 2.2 ábra mutatja.



2.2. ábra. Kevés ciklusú lézerimpulzusok speciális hullámformái: (a) szinuszipulzus, (b) koszinuszimpulzus, (c) inverz szinuszipulzus és (d) inverz koszinuszimpulzus. A (b) alábbián a burkoló és a tér maximuma egybeesik, a többi eset levezethető a koszinuszimpulzuson belüli vivőhullám burkolóhoz képesti, $\pi/2$ többszöröseivel történő fázistolásával.

Ha a szokásos konvencióval a térerősséget az előző alfejezet szerint komplex mennyiség valós részeként definiáljuk, akkor a CEP értéke koszinuszimpulzus esetén 0, szinuszipulzusra $\pi/2$, $-\sinus$ zra $-\pi/2$ és $-\cosinus$ zra π . Általános esetben a valós rész és az amplitúdó arányának arccos függvénye adja vissza a CEP értékét.

2.1.4. A diszperzió hatása

Az 2.1.2 alfejezetben felírt komplex elektromos tér idő helyett frekvenciaterben is felírható $\hat{E}(\omega) = E(\omega)e^{i\varphi(\omega)}$ alakban, ahol $E(\omega)$ és $\varphi(\omega)$ valós függvények.

Az optikában gyakran használt (időben) gaussi burkoló sajátja, hogy frekvenciaterben is Gauss függvény alakját mutatja. Ha az ilyen impulzusnak még a $\varphi(\omega)$ fázisa is lineáris, akkor transzformációkorlátozottnak nevezzük, mert adott sáv szélesség mellett ez a legrövidebb impulzus. Ha a fázis nemlineáris, akkor a sorfejtésében magasabb rendű tagok is szerepelnek:

$$\varphi(\omega) = \varphi(\omega_0) + \Delta\omega \left. \frac{d\varphi}{d\omega} \right|_{\omega_0} + \frac{\Delta\omega^2}{2!} \left. \frac{d^2\varphi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} + \frac{\Delta\omega^3}{3!} \left. \frac{d^3\varphi}{d\omega^3} \right|_{\omega_0} + \frac{\Delta\omega^4}{4!} \left. \frac{d^4\varphi}{d\omega^4} \right|_{\omega_0} + \dots \quad (2.3)$$

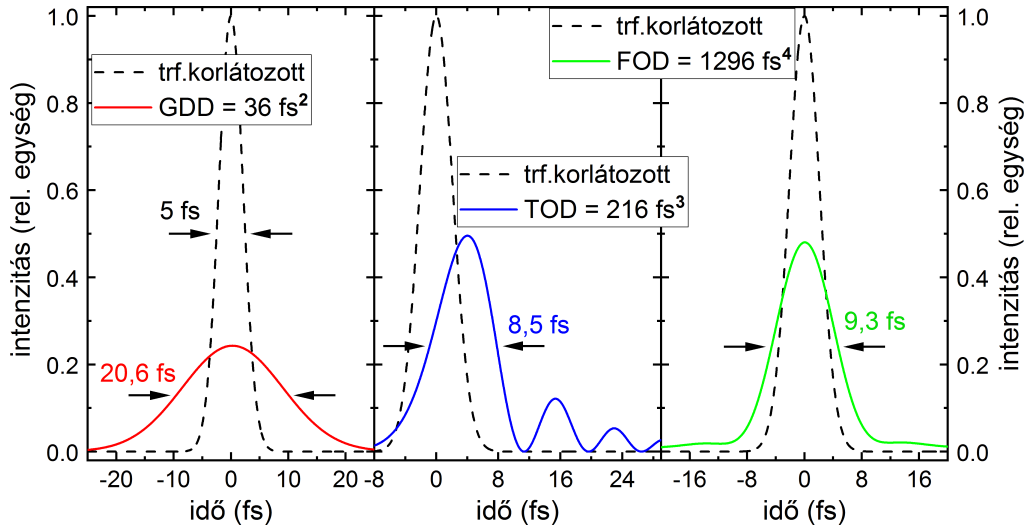
Az első derivált értéke a csoportsebesség (group delay, GD). Lineáris csörpnek nevezzük a négyzetes tagot, melynek együtthatója a csoportkésleltetés (group delay dispersion, GDD) és időben kiszélesíti az impulzust. A tiszta harmadrendű tag (third order dispersion, TOD) időben eltol és elő- vagy utóimpulzusokat hoz létre lecsengő amplitúdóval. A negyedrendű tag is szélesíti az impulzust, de a GDD-hez képest egy „talpat” is ad neki, tehát kiemeli a háttérből, ezeket a 2.3 ábra mutatja be.

Egy további érdekessége a diszperzióknak, hogy minél szélesebb spektrumú impulzusra hat, annál erősebb a hatása. Ezt mutatja be a 2.4 ábra, ahol elegendő mennyiségű GDD esetén az 5 fs-os transzformációkorlátozott impulzus jobban kiszélesedik mint ugyanekkora diszperziótól a 10 fs hosszúságú.

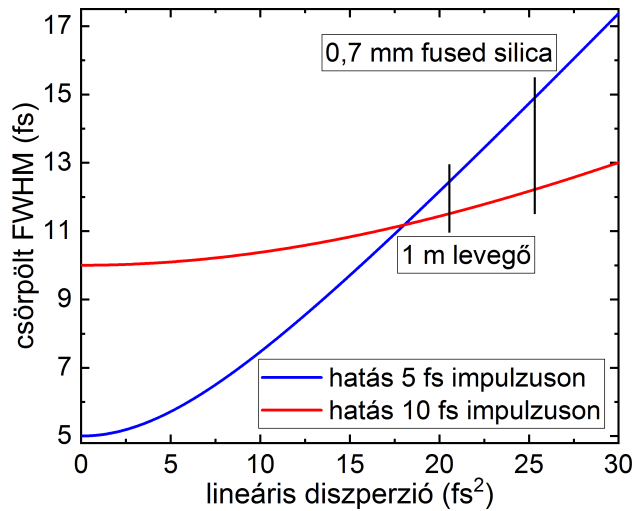
2.1.5. A fényhullám-szintetizátor technológia

A dolgozat 3. fejezetében központi szerepet játszik a nemrég fejlesztett [9, 16, 17] ún. fényhullám-szintetizátor eszköz, amely alapvetően új lehetőségeket nyitott meg a femtoszekundumos lézertechnológiában és az attofizikában. Ezért ezt az eszközt itt részletesen is bemutatom.

Az elsőként publikált kísérleti elrendezést a 2.5 ábra mutatja. Bemenete egy kapillárisban spektrálisan kiszélesített impulzus, mely a közeli-infravöröstől a látható tartományon keresztül közeli-ultraibolyáig tartalmaz spektrális komponenseket szuperkontinuum fehér fény formájában. Ezt spektrális tartományokra osztják és külön karokban módosítva egyesítik, így sokkal rövidebb impulzus érhető el mintha csör-

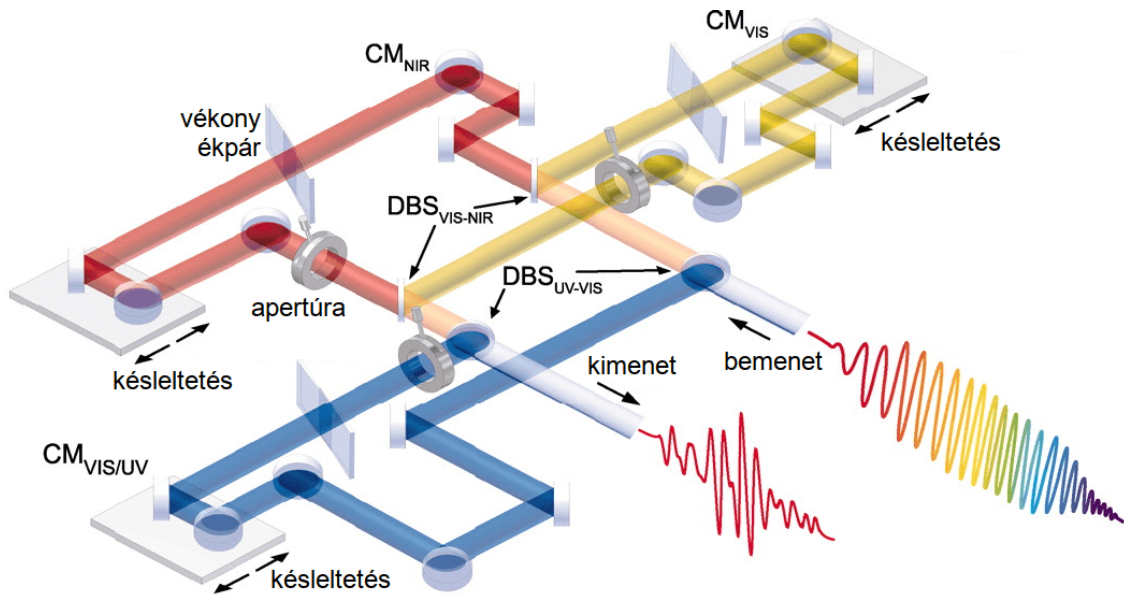


2.3. ábra. A diszperzió sorbafejtésével kapott tagok hatása az impulzusalakra, fekete szaggatottal az eredeti, transzformációkorlátozott impulzus (5 fs). A (piros) GDD kiszélesíti az impulzust, emiatt a csúcshintenzitás csökken: ezt használják ki a CPA erősítésnél. A (kék) TOD időben kissé eltolja a nyálábót és (az előjel függvényében) elő- vagy utóimpulzusokat kelt. A (zöld) FOD kiszélesíti az impulzust és egy lecsengő talppal megemeli. Az ábrán feltüntettem az impulzushosszakokat is.



2.4. ábra. 5 fs (kék) és 10 fs (piros) transzformációkorlátozott gaussi impulzus kiszélesedése a GDD függvényében. Látható, hogy a kettő 18 fs^2 GDD helyen 11 fs értéknél találkozik és ennél nagyobb diszperzió az 5 fs nyálábót hosszabbra nyújtja mint a 10 fs-ost. Az ábrán feltüntettem az 1 m levegő és 0,7 mm üveg (fused silica, ömlesztett kvarc) hatását.

pölt tükrökkel vagy ráccsal próbálnák kompresszálni.



2.5. ábra. A fényhullám-szintetizátor elrendezése. A bemenő széles spektrumú fehér fényt a DBS-sel jelölt nyalábosztókkal („dichroic beam splitter”) vágják spektrális csatornákra, minden karban van egy mozgatható tükörpár az időbeli késleltetéshez, egy vékony ékpár ami a fázistolásért felel, egy apertúra amivel a résznyaláb energiája csökkenthető a többihez képest, és minden karban van egy CM csörpölt tükör a diszperziókompenzáció céljából. Végül a három kart a nyalábosztáshoz használttal ekvivalens DBS elemekkel egyesítik. Forrás: [9].

A közeli infravörös csatorna 700 nm-től 1100 nm hullámhosszig terjed és 6,8 fs hosszú impulzusokat ad, a sárga kar 500 és 700 nm közötti és 5 fs hosszúságú, és a kék-UV csatorna 350-től 500 nm-ig terjed és 4,5 fs-ra összenyomható. Látható, hogy a teljes lefedett spektrum több mint másfél oktáv frekvenciatartományt határoz meg.

Az eszköz működéséről és felhasználásáról több publikáció is készült, a 3. fejezetben például az optikai egyciklusú impulzust mutatom be a sávkamera felvétel kiértékelésén keresztül a 3.2 ábrán. Az eszköz fejlesztői a 3. cikkükben [17] már négy csatornát használnak, és így el tudták érni a 380 as rövidségű optikai impulzust, amivel a kripton atom kötött állapotait vizsgálták.

2.2. Fotoionizációs folyamatok

Fény hatására fémfelületekről történő elektronkilépést kísérletileg elsőként Hertz és Hallwachs tapasztalt [18], amit Einstein magyarázott meg [19]. Ebben a modellben egy foton hozza létre az elektronemissziót, amennyiben az elnyelt foton $h\nu$ energiája meghaladja a kilépési munkát:

$$h\nu = W_{\text{ki}} + E_m, \quad (2.4)$$

ahol $h \approx 6,6 \times 10^{-34}$ Js a Planck-állandó, ν a foton frekvenciája, W_{ki} a kilépési munka és E_m a kilépő elektron mozgási energiája. A fémek kilépési munkájának tipikus értékei³ miatt az ehhez szükséges fény a látható vagy ultraibolya tartományba esik.

Ennél kisebb frekvenciájú fény fotonenergiája nem elegendő ehhez a folyamat-hoz. A lézerek elterjedésével a korábbinál nagyságrendileg nagyobb fényintenzitás vált elérhetővé, ami nemlineáris folyamatok felhasználását tette lehetővé az ilyen típusú fotoemissziós, vagy atomok és molekulák különböző fotoionizációs mechanizmusainak vizsgálatára. A 2.4 összefüggés általánosítva

$$nh\nu = W_{\text{ki}} + E_m \quad (2.5)$$

alakban írható, ahol az ionizáció n darab $h\nu$ energiájú fotonelnyelődésével jön létre. Ezen folyamat valószínűsége az egyfotonos folyamat valószínűségének n -edik hatványával skálázódik, emiatt a keltett fotoáram-sűrűség is: $j \propto I^n$, ahol I a folyamatot keltő tér intenzitása [20, 21]. Olyan folyamatokat is megfigyeltek továbbá, ahol a rendszer több fotont abszorbeál, mint amennyire az ionizációhoz ténylegesen szükség lenne, így a többletenergia is az elektron mozgási energiáját növeli, ezt küszöb feletti ionizációnak (above-threshold ionization, ATI) nevezték el [4].

A fenti egyenleteknél fémek esetére a kilépési munka fogalmát használtam. Atomok, molekulák esetén az ezzel analóg mennyiség az ionizációs potenciál (I_P), ami a leggyengébben kötött elektron ionizálásához szükséges energia mennyisége. A 2.5 és 2.4 egyenletek ezen rendszerek esetén is leírják az elektronok kilépésének jelenségét (W_{ki} helyére I_P kerül).

A fent ismertetett fizikai rendszerekben (fémfelületek, atomok/molekulák) a

³Al: 4,1 eV; Ba: 2,6 eV; Cr: 4,5 eV; Cs: 2 eV; Fe: 4,7 eV; Sn: 4,4 eV; Ti: 4,3 eV. A látható tartomány kb. 1,68 – 3,26 eV-ig terjed.

kvantummechanikából ismert alagút-effektussal is kiléphetnek elektronok elég nagy térerősség esetén, ekkor az elektron egy potenciálfalon keresztül alagutazással érkezik a vákuumszintre. Az átjutás valószínűsége növekszik a potenciálgát magasságának és szélességének csökkenésével vagy a külső tér növelésével [22].

Az ultragyors nemlineáris folyamatokban a többfotonos emisszió és az alagút-emisszió játszik kiemelkedő szerepet. Közismert (I_P ionizációs potenciál) és kísérlet-specifikus (E_0 elektromos térerősség, ω körfrekvencia) mennyiségek felhasználásával megbecsülhető, hogy a két folyamat közül melyik játszik nagyobb szerepet. A Keldysh-féle γ skálaparaméter használható annak becslésére, hogy mi az a lézerintenzitás (külső elektromos tér), amelynél a többfotonos folyamatok helyett már dominánsan alagutazás tapasztalható. Ennek értéke

$$\gamma = \frac{\omega\sqrt{2m_e I_P}}{eE_0} = \sqrt{\frac{I_P}{2U_p}}, \quad (2.6)$$

ahol e és m_e az elektron töltése és tömege, valamint

$$U_p = \frac{e^2 E_{\text{dr}}^2}{4m_e \omega_{\text{dr}}^2} \quad (2.7)$$

az ún. ponderomotoros potenciál, ahol E_{dr} és ω_{dr} a meghajtó tér amplitúdója és körfrekvenciája. $\gamma \gg 1$ esetén a többfotonos- $\gamma \ll 1$ esetén az alagút-emisszió a meghatározó folyamat, a kettő között ($\gamma \approx 1$) pedig átmeneti jellegű fotoionizációs folyamatról beszélhetünk, amely mindkét típus jegyeit magán hordozza.

2.3. Magasrendű felharmonikusok keltése

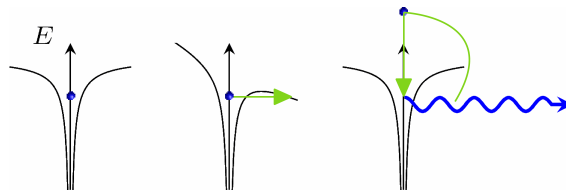
A magasabb rendű felharmonikusok keltésének technikáját a '80-as évek végétől vizsgálják [23]. A kísérlet során infravörös vagy látható lézertérrel keltik ennek magasabb felharmonikus rendjeit. Pár évvel később merült fel az ötlet [24], hogy ezzel a technikával attoszekundumos impulzusokat is lehetne kelteni.

A HHG folyamat során egy erősített lézertimpulzust egy gáz közeg vagy szilárdtest felület közelébe fókuszálunk. Leggyakrabban nemesgázatomokat használnak a kísérletekhez, de előfordulnak molekuláris rendszerek is, pl. CO_2 , vízgőz, vagy szerves molekulák. Számolásaim és kísérleteim során csak nemesgázatomokkal és klaszterekkel dolgoztam, így az értekezés hátralevő részében csak ezekről lesz szó.

2.3.1. Három lépéses modell

A három lépéses modell [25, 26] egy egyszerű, klasszikus képet ad a magasharmonikus-keltés mechanizmusáról (2.6 ábra):

- a nagy térerősség hatására az elektron alagúteffektussal elhagyja az atomot
- az elektron gyorsul a lézer terében, majd visszafelé mikor az előjelet vált
- az elektron visszatér az ionhoz és ott rekombinálódik, ezzel átadja a lézer teréből felvett energiát ami XUV fotont kelt



2.6. ábra. A három lépéses modell. Az atomi potenciál a lézertér hatására torzul, az atomból alagúteffektussal kilép egy elektron, majd elkezd gyorsulni a lézer terében. Mikor a tér előjelet vált, az elektron az ion felé gyorsul, az ionnal rekombinálódik és XUV fotont kelt.

Ezek a lépések természetesen csak az ideális esetet írják le, mikor harmonikus-keltés történik. A kilépő elektronok jelentős része sosem jut vissza, így nem kelt felharmonikusokat. Klasszikus trajektóriaszámolással könnyen belátható, hogy csak lineárisan polarizált fény terében juthatnak vissza az elektronok⁴. A pontosabb kvantummechanikai képben a továbbra is klasszikus elektromos tér mellett tekinthetjük a kilépő elektront hullámcsomagnak, mely időben „szétfolyik”, és a harmadik lépésben a megfelelő hatáskeresztmetszeteknek megfelelő valószínűséggel rekombinálódik. Így belátható, hogy miért nem csak tökéletesen lineárisan poláros fény kelthet felharmonikusokat, erről a 4. fejezetben lesz bővebben szó.

2.3.2. Lewenstein-féle erős tér közelítés

A HHG egyik leggyakrabban használt kvantummechanikai modelljét erős tér közelítésnek hívják (strong field approximation, SFA) [1, 2], ami egy, a környezetével nem

⁴Klasszikus elektrontrajektóriaszámolással Xe gáz (a legnagyobb nemesgázatom, $d = 4,32 \text{ \AA}$ átmérő) esetére kaptam eredményként, hogy kb. $\varepsilon = 0,06$ ellipticitású keltő térben érhet vissza éppen az atom ellentétes oldalára, tehát a legkevésbé valószínű rekombináció elrendezésben.

kölcsönható atommal és az onnan kilépő elektronnal végbemenő folyamatot ír le, így ezt egyatomos válasznak is nevezik. A modell több közelítést is tartalmaz, például egy elektront ír csak le, mely az alapállapotból indul (mindig van ott elektron, nem ürül ki az állapot), „szabad” állapotában kizárólag a lézertér hatására gyorsul (a hátrahagyott ion hatását elhanyagoljuk), végül a tér előjelének megfordulásával visszatér az ionhoz, ahol ismét a kezdeti alapállapotba rekombinálódik. A nem visszatérő elektronokkal a modell nem számol. Az U_p ponderomotoros potenciál (2.7 definíció) legyen elég nagy, hogy a legvalószínűbb ionizáció alagúteffektussal történjen, de még a telítődési szint alatt. Így az intenzitás a $10^{14} \text{ W/cm}^2 - 10^{15} \text{ W/cm}^2$ intervallumba esik, ahol már a köztes energiaszintek gerjesztése elhanyagolható, az elektron azonnal ki tud lépni a vákuumszintre. A számolás az átmeneti mátrixokat használja, és végezetül egy egyszerű integrálásként írja fel a rendszer időfüggő dipólmomentumát⁵:

$$x(t) = i \int_0^\infty \left(\frac{\pi}{\varepsilon + \frac{i\tau}{2}} \right)^{\frac{3}{2}} d^*(p(t, \tau) - A(t)) d(p(t, \tau) - A(t - \tau)) E(t - \tau) e^{-iS_s(t, \tau)} d\tau + \text{c.c.}, \quad (2.8)$$

ahol τ a visszatérési idő, $E(t)$ és $A(t)$ a lézer elektromos tere és vektorpotenciálja az idő függvényében, $S_s(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t \left(\frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t')]^2}{2} + I_P \right) dt'$ a kváziklasszikus hatás, p a kanonikus momentum a stacionárius pontban és d az átmeneti mátrixelem.

A modell legelső leírása csak monokromatikus nyaláb és lineáris polarizáció esetére vezet le az integrált [1], de ez tetszőleges meghajtó térre általánosítható, akár ellipticitás, akár a több szín/szélesebb spektrum irányába [27].

2.3.3. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet

Az előző modellhez képest általánosabb megoldást nyújt a felharmonikusok keltési jelenségekre az időfüggő Schrödinger-egyenlet (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) $i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \hat{H} |\psi(t)\rangle$ megoldása, ahol ψ a rendszer (HHG esetén a kilépő elektron) hullámfüggvénye és \hat{H} a Hamilton operátor. A szakirodalomban fellelhető TDSE módszerek az egyetlen gerjeszthető elektron (single active electron, SAE) közelítést alkalmazzák [28, 29], amelyben a lézertér csak a legkülső pályán tartózkodó elektronra fejt ki hatást. A többi elektron az atommag terét leárnyékolja, ezt a kölcsönhatást egy effektív potenciállal írhatjuk le. A SAE megszorítás figyelembe vétele

⁵A lézertér polarizációs irányára vett egy dimenziós vetület.

nélkül már sokkal bonyolultabb (például sűrűség-funkcionális [30]) megoldásra van szükség.

Erős lézerterek esetén már egy hidrogénatomra sincs analitikus megoldás, így a TDSE számolása mindig numerikusan történik. Az időfüggő hullámfüggvényt a Hilbert-tér egy bázisában sorfejtik. Mivel ezen bázisok végtelen elemet tartalmaznak, ami numerikusan nem kezelhető, egy kiválasztott indextől kezdve a maradék elhanyagolása szükségszerű. A bázisfüggvények felhasználásával a Schrödinger-egyenlet egy közönséges differenciálegyenlet-rendszer alakját veszi fel. Ezzel a módszerrel becsülhető az ionhoz visszatérő elektron-hullámcsomag mérete:

$$\Delta z = \sqrt{\frac{\langle \tilde{\psi} | (z - z_0)^2 | \tilde{\psi} \rangle}{\langle \tilde{\psi} | \tilde{\psi} \rangle}}, \quad (2.9)$$

ahol z_0 a hullámcsomag közepének várható értéke és $\tilde{\psi}$ az elektron hullámfüggvényének szabad állapotú járuléka.

Az SFA előnye ezzel a módszerrel szemben, hogy csak a visszatérő elektronokkal számol, hiszen a HHG során a nem rekombinálandó (elvesztett) elektronok nem járulnak hozzá a magasharmonikus sugárzáshoz, emiatt kisebb számítási kapacitást és memóriát igényel. A két módszert több publikációban is összehasonlítják, pl. [31, 32] ami alapján a TDSE pontosabbnak bizonyul. Az SFA-t leíró első cikkben [1] is értékelik a két számítási módszert egymáshoz képest, ahol fő előnyként emelik ki, hogy számítási kapacitás tekintetében az SFA nagyságrendileg gyorsabb-egyszerűbb. 1994-ben még azt írták, hogy a TDSE csak monokromatikus, lineárisan polarizált fényel számolható ki, de a számítástechnika fejlődésével már (számítási idő terhére) a TDSE is használható általános lézerteret feltételezve.

2.3.4. Szokásos felharmonikuseltési módszerek

A HHG kísérleti kivitelezéséhez szükség van egy vákuumkamrára, hiszen a keltett XUV fény a levegőben nagyrészt elnyelődik, ill. diszperziót szenved. A lézer fókuszának közelében gáz fúvókát vagy cellát helyezünk el, ahol a fentebb leírt folyamat lejátszódik. A keltett XUV fény a keltő impulzussal egy irányban távozik és annál nagyságrendileg gyengébb: a tipikus HHG konverziós hatásfok 10^{-6} körüli [33, 34]. Hogy a detektort ne károsítsa, az infravörös komponenszt le szokták választani az

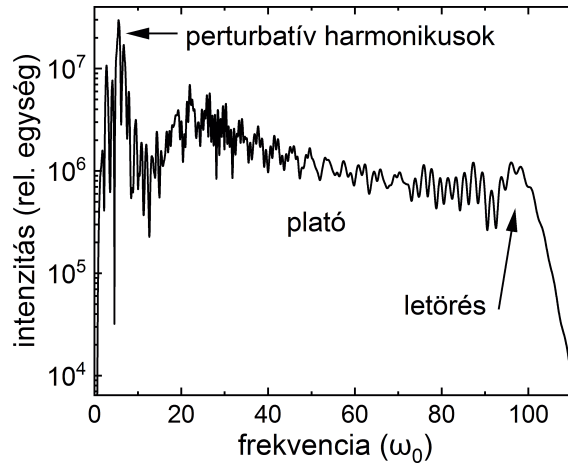
XUV-ről, leginkább fém szűrőkkel: egy alumínium fólia pl. a 20 eV alatti fotonok jelentős részét elnyeli.

Egy másik módszer [35], hogy szilícium lemezt állítanak a nyalábútba az infravörös nyaláb Brewster szögének irányában. Ez ugyan a felharmonikus nyalábot is gyengíti, de kevésbé mint az alapharmonikust, tehát akkor praktikus, ha a nyaláb (akár csak hosszabb távon) már a következő optikai elemként használt fémszűrőt is károsíthatja. Az IESL FORTH intézet attoszekundumos csoportjában töltött időm alatt találkoztam ezzel a módszerrel, a számolások alapján az XUV nyalábnak nagyjából a fele verődik vissza a szilícium lapkáról, az infravörösnek pedig a negyede. Az említett laboratórium (IESL FORTH) egy másik specialitása a gyengén fókuszált nyaláb, az akár 6–9 m hosszú fókusz távolság miatt nagy a kölcsönhatási tartomány, tehát a lapka miatti XUV veszteség nem kritikus.

Magasharmonikus-keltés során a keltő lézertér szélsőértékeinél tudnak elektronok legnagyobb valószínűséggel kilépni az atomból, amennyiben az intenzitás ($I \propto |E|^2$) elegendően nagy. Ez tipikusan a burkoló középső részén, a tér félciklus-extrémumainak néhány száz attoszekundumos időkörnyezetében lehetséges. Mivel az egymást követő csúcsok helyén a térerősség ellentétes előjelű, az ezek által keltett XUV fotonok fázisa ellentétes, ezért destruktív módon interferálnak. Ebből következik, hogy a második (és ehhez hasonlóan az összes többi páros) felharmonikus szimmetria okok miatt nem keltődik. Ezt a szimmetriát többféleképp is meg lehet sérteni, például $\omega - 2\omega$ keltő tér is okozhatja. A magasharmonikus spektrum jellemzően egy perturbatív résszel kezdődik, amit egy nagyságrendileg gyengébb plató-jellegű⁶ tartomány követ, ami általában viszonylag lapos, ahogy ezt az elnevezése is mutatja. A spektrum a letörési frekvenciával vagy cutoff-fal ér véget, ahonnan a spektrális intenzitás a frekvencia függvényében exponenciálisan lecseng. Ezt a 3. fejezet fényszintetizátor szimulációjával számolt spektrumon a 2.7 ábrán mutatom be.

A letörés egy fontos fogalom a magasharmonikus-keltés irodalmában, hiszen ez egy jó közelítése a legnagyobb energiájú keltett fotonnak: inentől a keltett fotonok mennyisége néhány elektronvoltonként csökken egy nagyságrenddel. Legelső említésekor [36] a $E_{\text{cutoff}} = I_P + 3U_p$ formulát írták fel, ahol I_P a gáz ionizációs potenciálja és U_p a 2.7 egyenletben már definiált ponderomotoros potenciál. A képletet később pontosították a Lewenstein SFA modell (2.3.2 alfejezet) születésekor, mint

⁶Plateau - fennsík (francia).



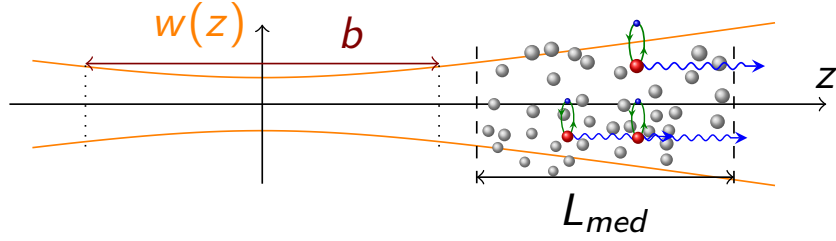
2.7. ábra. Számolt felharmonikus spektrum a 800 nm felharmonikusainak függvényében. Legkisebb fotonenergiáknál a perturbatív tartomány, majd a plató, és végül a letörési frekvencia. Az ábra a fényhullám-szintetizátor szimulációval készült, aminek meghajtó tere egzotikusabb egy Gaussimpulzusnál, így a spektrum alakja is bonyolultabb struktúrákkal tagolt és a plató tartomány sem teljesen lapos. A keltő tér intenzitás félértékszélessége kb. 4 fs, csúcshintenzitása $1,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, és a 3.3 ábra spektrális tartományából származtatható impulzust használtam a felharmonikusok keltéséhez: a meghajtó impulzus spektruma a közeli infravöröstől az ultraibolyáig terjedt.

$I_P + 3,17U_p$ [1]. A témakörben azóta is történtek publikációk, pl. egy kísérletben [37] a cutoff hullámhossz függését vizsgálták, ami az U_p képlettel ellentétben $\lambda^{1.7 \pm 0.2}$ hatványával arányos a látható tartományban, de a vizsgálatok nagyobb része szól arról, hogy milyen új módszerrel lehetne a letörési frekvenciát növelni [38]. A 2.7 alfejezetben mutatom be a klaszter közegegen végzett HHG irodalmát és a letörési értékeket abban az esetben.

2.3.5. HHG fázisillesztés

A magasharmonikus-keltés egyik legfőbb kísérleti problémája, hogy a keltett XUV intenzitása több nagyságrenddel alacsonyabb mint a meghajtó téré. Ennek javítására különböző módszereket találtak ki. Ezek közül az egyik kézenfekvő megoldás a fázisillesztés technikája, melyet például a klasszikus nemlineáris optikában, kristályok esetén régóta használnak [3]. Az XUV fotonok fázisa a keltés helyének függvényében változik, így ezek interferenciájakor nagyságrendi különbség lehet egy jól fázisillesztett és egy destruktív interferenciájú eset között. A fázisillesztést a 2.8

ábra mutatja be.



2.8. ábra. Fázisillesztés gáz felharmonikusok keltésénél. A gázközeget az L_{med} hosszúságú téglalapot jelzi, melyet a narancssárga vonallal rajzolt gaussi lézertér világít meg. A nyalábnak $w(z)$, ahol a z tengely a lézertér terjedési iránya és b a konfokális paraméter.

A fáziskülönbségek oka, hogy az infravörös és XUV fotonok különböző sebességgel haladnak a közegben, a hullámszámvektorok közti különbség pedig a következő négy (geometriai, diszperziós, plazma és atomi dipólus) tagból tevődik össze (q a harmonikus rendet jelöli):

$$\Delta k = qk_1 - k_q = \underbrace{\Delta k_{geom}}_{<0} + \underbrace{\Delta k_{diszp}}_{>0} + \underbrace{\Delta k_{pl}}_{<0} + \underbrace{\Delta k_{at.d}}_{\substack{>0, \text{ ha } z>0 \\ <0, \text{ ha } z<0}}, \quad (2.10)$$

amit $\varphi = kz = \omega z/c$ (c a fénysebesség) alapján fázisokra átváltva egyszerűsödik:

$$\Delta\varphi = \varphi_2^{XUV} - \varphi_1^{XUV} = \Delta\varphi_{geom} + \Delta\varphi_{diszp} + \Delta\varphi_{pl} + \Delta\varphi_{at.d}, \quad (2.11)$$

ahol φ_1 és φ_2 a keltés két végén keltett foton fázisát jelöli, és a tagok jelentését és összefüggéseiket a következő bekezdésekben részletesen kifejtem.

A geometriai fázis a Gauss nyaláb fókuszálásának következménye, ami a $b/2$ Rayleigh-hosszal skálázódik: $\varphi_{geom}(z) = \arctg \frac{2z}{b}$, melybe behelyettesítve a 2.10 összefüggést, $\varphi_{geom}^{XUV}(z) = q \arctg \frac{2z}{b} - \arctg \frac{2z}{qb}$ adódik. Ennek megváltozása a közeg két oldalán (z_1 és z_2 között) adja meg a fáziskülönbséget:

$$\Delta\varphi_{geom}^{XUV}(z) = \varphi_{geom}^{XUV}(z_2) - \varphi_{geom}^{XUV}(z_1).$$

A diszperziós fáziskülönbségről a 2.1.4 alfejezet kapcsán már volt szó, hiszen széles hullámhosszú infravörös nyaláb is megváltozik gáz közegben, mivel a nagyobb hullámhossznak megfelelő fotonok jellemzően gyorsabban terjednek, mint a nagyobb energiájúak. A fázisillesztésben ugyanez a probléma, ti. az XUV fotonokra más a közeg törésmutatója mint a meghajtó térre. A fáziskülönbség tag (a törésmutatón

keresztül) arányos a nyomással és a közeg z irányú méretével: ez szemléletesen azt írja le, hogy a diszperziós fáziskülönbség tag arányos azon atomok számával, amiket a lézernyaláb útja során érint.

Ha a közegben töltött részecskék vannak (ld. 2.3.1 alfejezet), az a törésmutatóhoz hasonlóan változtatja a fázist: $\Delta\varphi_{pl,q} \propto L_{med}(n_{pl,q} - n_{pl,IR})$, ahol $n_{elektron} = \sqrt{1 - (\omega_{pl}/\omega)^2}$ és $\omega_{pl,f}^2 = \frac{e^2 N_e}{m_e \varepsilon_0}$ a plazmafrekvencia, e , m_e és N_e az elektron töltése, tömege és sűrűsége, ε_0 a vákuum permittivitása. Mivel a tipikus HHG kísérletre igaz, hogy $\omega_{pl,f} \ll \omega$, $n_{pl}(\omega) \approx 1 - \frac{\omega_{pl,f}^2}{2\omega^2} = 1 - \frac{e^2 N_e}{2\omega^2 m_e \varepsilon_0}$. A számolás közben az ionok hatását elhanyagoltuk, hiszen hasonló töltés mellett nagyságrendileg nagyobb tömeggel rendelkeznek, így a hatásuk töredéke az elektronokénak. Mivel a térerősség meghatározza az ionizációs rátát, a gáz sűrűség az elektronok sűrűségét, belátható, hogy ez a tag is arányos a gáz háttérnyomásával.

A fáziskülönbség negyedik része az atomi dipólus tag, ami kvantummechanikai okok miatt lép fel, és értéke a gáztól és a lokális intenzitástól függ [39]:

$$\Delta\varphi_{at.d.} = \alpha(I(z_2) - I(z_1))$$

A 2.9 ábra mutat be egy, a fentiek figyelembevételével készült számolási eredményemet (Ar gázban, 17. felharmonikus).

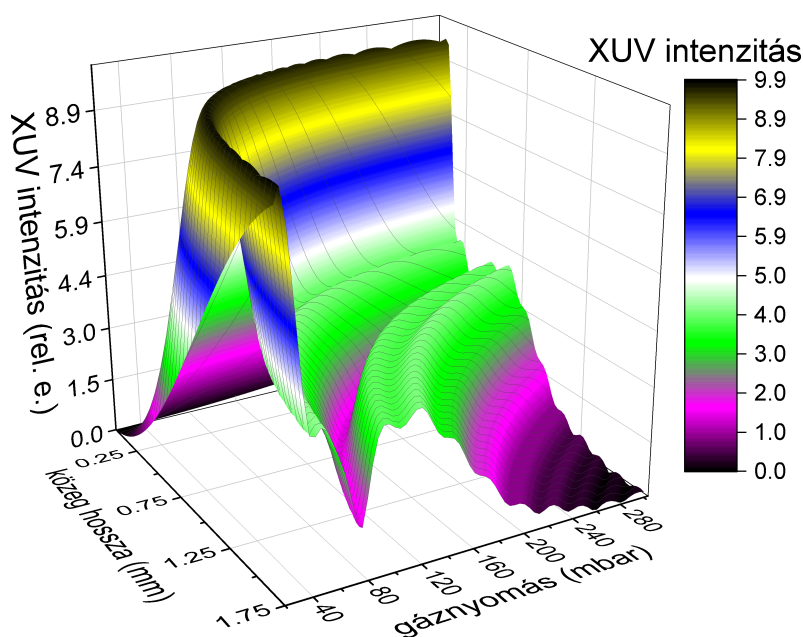
Az első optimum (kis nyomás és közeghossz esetén) egy gerincvonulat, amit az $L_{med}p \approx$ állandó összefüggés ír le, és magassága is megközelítőleg állandó. Ha a lézertér útjába ennél több részecske kerül, akkor destruktív az interferencia, majd ezt egyre kisebb maximumok követik.

Egy egyszerű, abszorpciót is figyelembe vevő, de csak a lézer tengelyén számolt modellt ír le a [40] publikáció. Eszerint jól megválasztott fázisillesztésre igaz, hogy $L_{med} > 3L_{abs}$ és $L_{coh} > 5L_{abs}$, ahol L_{med} a lézer útja a közegben, $L_{abs} = \frac{1}{\rho\sigma}$ (ρ gázsűrűség és σ hatáskeresztmetszet) a karakterisztikus elnyelési úthossz, ill. $L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k}$ koherenciahossz⁷. Ezen feltételek teljesülésével makroszkopikusan elérhető az ideális fázisillesztés intenzitásának legalább fele.

Egy másik megközelítés, ha a fent részletezett tagok közül a dipólus tagot elhanyagoljuk (rövid trajektóriák esetén kicsi a járuléka), majd kiemeljük a sűrűséggel arányos tagokat és háttérnyomásra rendezzük át az egyenletet [41], ami általában a legegyszerűbben változtatható kísérletileg: $p_{illesztett} = -\Delta k_{geom} / \left(\frac{\partial(\Delta k_{disp.})}{\partial p} + \frac{\partial(\Delta k_{pl})}{\partial p} \right)$.

Bár a fázisillesztés tagjainak nagysága a kísérlet körülményeitől, például a gáz-közeg hosszától erőteljesen függ, tipikus esetekben az atomi dipólus tag valóban

⁷ L_{coh} nincs kapcsolatban a lézer koherenciahosszával.



2.9. ábra. Ar, 17. felharmonikus. Fázisillesztési paraméterek (háttérnyomás, közeg hossza) hatása az XUV intenzitásra. A számolás alapjául szolgáló keltő tér központi hullámhossza 800 nm, a 25 fs hosszúságú impulzus energiája 22 mJ, amit 9 m-es lencsével fókuszálva és a fúvókát $z = b/2$ pozícióba helyezve ott a csúcshintenzitás $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ volt.

elhanyagolhatóan kicsi a többihez képest, ill. a geometriai fázis, és a diszperziós- és plazma diszperziós fázis tag összege is a $[-0,5; 0,5]$ radián intervallumba esik.

Ha a fázisillesztés nem megoldható, vagy nem elégséges, akkor kvázi-fázisillesztésnek nevezett megoldásokat használhatunk, pl. több gázfúvókát teszünk a gáz útjába [42–44], vagy különböző gázok keverékét fújjuk be [45].

[46]-ban akusztikus hullámmal vagy megfelelően elrendezett lyukstruktúrával periodikus gázsűrűséget hoztak létre, amivel erősíteni tudták a felharmonikus jelet, vagy kiemelni a rövid/hosszú trajektóriák hozamát. Ezzel az ötlettel analóg megoldás kapillárisban is megvalósult [47], mindkettő tulajdonképpen a kvázi-fázisillesztés egy-egy megvalósítása.

Bár az egyes jetekeken (fúvókákon) keresztül különböző nemesgázokat is lehet egyszerre befújni, a gyakorlatban elterjedtebb, hogy hidrogén gázt használnak a nemesgáz mellett [48]. Ennek előnye, hogy a H_2 molekula (nemesgázokhoz képesti) kis ionizációs potenciálja miatt teljesen ionizálódik, és a rekombinációs hatáskeresztmetszete is sokkal kisebb. Tehát felharmonikusok számottevően nem keltődnek

benne, ugyanakkor a fázisillesztést javíthatja a diszperzív fáziskülönbség miatt.

2.4. Femtoszekundumos impulzusok diagnosztikája

A rövid lézerimpulzusok mérés technikájának a fő problémája, hogy a tisztán elektronikus rendszerek (pl. számítógépes mérőkártya, oszcilloszkóp, kamerarendszer) pikoszekundumos időskáláig képesek jelfeldolgozásra, ennél lényegesen rövidebb idő alatt nem. Tehát 10 ps-nál rövidebb időskálától kezdve valamilyen „optikai jel-előfeldolgozásra” van szükség, így az optikai jel már digitalizálható adattá válik.

A femtoszekundumos impulzusdiagnosztikai módszereknek a legtöbb esetben közös eleme, hogy az impulzust kettéválasztva és magához képest késleltetve valamilyen nemlineáris közegben vizsgáljuk, ezáltal tkp. saját magával hasonlítjuk össze („self-referencing”). Az alábbiakban részletesen is bemutatom ezeket a diagnosztikai módszereket.

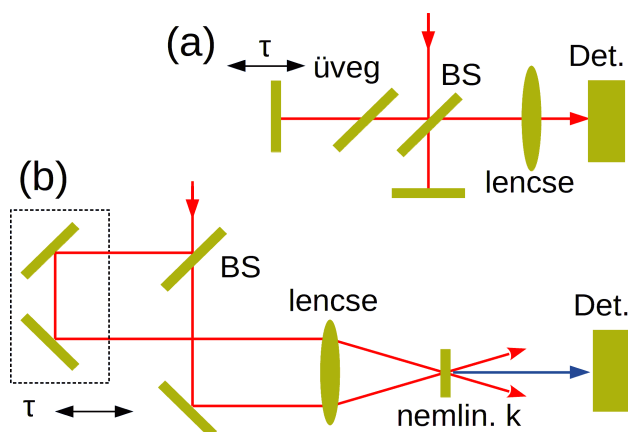
2.4.1. Autokorreláció

A femtoszekundumos impulzusdiagnosztika legegyszerűbb esete, mikor a két lézerimpulzus ugyanabból a forrásból származik, tehát *autokorreláció* (AC): a jelet időben eltolva saját magával hasonlítjuk össze. A matematikai definícióban az egyik jel komplex konjugáltja szerepel: $S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} A(t)A^*(t + \tau) dt$ Legegyszerűbb megvalósítása lehet egy Michelson vagy Mach-Zehnder típusú interferométer, ahol a két karból érkező nyalábot állítható késleltetéssel egyesítjük, majd ezzel világítjuk meg a nemlineáris detektort, pl. másodharmonikus-keltő (second harmonic generation, SHG) kristályt. Két típusa létezik, melyek elrendezésükben is különböznek (ld. 2.10 ábra):

Interferometrikus AC esetén a két jelet kollineárisan vezetjük nemlineáris kristályra majd detektorra vagy nemlineáris fotodiódára, így az autokorrelációs jelen az elektromos tér periódusának megfelelő moduláció jelenik meg. Másodharmonikus-keltő kristály esetén

$$I_M(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \left| \left[\hat{E}(t) + \hat{E}(t - \tau) \right]^2 \right|^2 d\tau, \quad (2.12)$$

ahol \hat{E} a komplex térerősség.



2.10. ábra. Autokorrelációs elrendezések. (a) Interferometrikus autokorreláció: a nyaláb Michelson-interferométerre érkezik, a BS nyalábosztótól balra és lefelé irányítja a két résznyalábot. Az időkésleltetett, kollineárisan érkező nyalábokat nemlineáris fotodióda, vagy nemlineáris kristály–lineáris detektor rendszerrel mérhetjük meg. Az üveglap az interferométer két karjában levő diszperziókülönbséget kompenzálja. (b) Intenzitás-autokorreláció: a balra menő résznyaláb τ késleltetése beállítható a két tükör mozgatásával. A két karból érkező nyalábot együtt fókuszáljuk egy nemlineáris kristályra, és a közepén távozó nemlineáris nyalábot detektáljuk.

Intenzitás AC esetén a jel és késleltetett változata kis szögben érkezik a nemlineáris kristályra, és a keltett nemlineáris (általában másodharmonikus) nyaláb a két távozó nyaláb között lép ki. Az intenzitást SHG kristályra felírva:

$$I_M(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau) d\tau. \text{ Látható, hogy itt csak a burkoló alakja számít.}$$

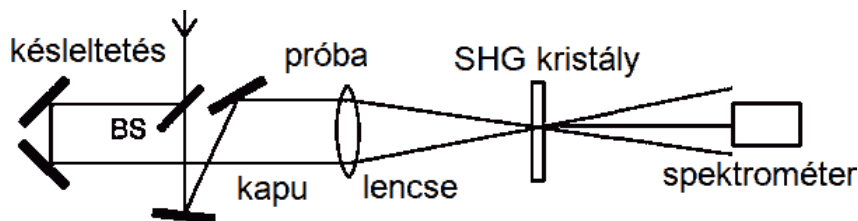
Az autokorreláció fő problémája, hogy nincs egzakt módszer az impulzus alakjának visszafejtésére, és általában nem is egyértelmű az autokorrelációs jel és az impulzusalak közti transzformáció, tehát különböző jelek autokorrelációja is lehet ugyanaz vagy nagyon hasonló. Emiatt nem is tekintik teljes értékű diagnosztikai módszereknek, hanem inkább impulzushossz becslésére használják (a burkoló alakjának feltételezésével), vagy annak vizsgálatára, hogy mennyire van közel az impulzus a transzformációkorlátozott állapothoz (csörp).

2.4.2. FROG

Az autokorreláció ötlete továbbfejleszthető (frequency-resolved optical gating, FROG), ha egy spektrométert használunk detektorként (2.11 ábra), ahelyett hogy a spektrum integrálját, tehát a teljes energiát mérnénk [49, 50]. Az így nyert kétdimenziós

adatsor (késleltetés és frekvencia) szintén iterációs módszerrel fejthető vissza, és az autokorrelációs görbével ellentétben (a másodrendű nemlinearitások esetén az időtengely tükrözésétől eltekintve) rekonstruálható a spektrális amplitúdó és fázis, tehát teljes karakterizálást kaphatunk idő- vagy frekvenciatérben.

Bármilyen nemlineáris közeg használható, gyakran szoktak másodharmonikus keltő (SHG) kristályt (pl. beta barium borate, BBO) használni, ezért ezt a legegyszerűbb verzióját SHG-FROG névvel illetik.



2.11. ábra. Az SHG-FROG elrendezés. A BS nyalábosztóról visszaverődő kapu-impulzust mozgatható tükörpárral késleltetjük, majd a próba-nyalábbal együtt fókuszáljuk egy másodharmonikus keltő kristályra. Az összeg jelet spektrométer detektálja a késleltetés függvényében. Forrás: [49].

Az ötletnek létezik egy kompaktabb elrendezésű változata GRENOUILLE⁸ néven: a késleltetett kart, a nyalábosztást és újraegyesítést prizmával, a vékony kristály-spektrométer rendszert egy vastag kristállyal helyettesítik [51]. A teljes mozgatható rész helyett a Fresnel biprizma vízszintes irányban teríti szét a késleltetési (idő) tengelyt, a vastag SHG kristály pedig függőleges irányban hullámhossz szerint szeparál, így a kamera által felvett minden egyes felvétele egy teljes FROG információt tartalmazó kép.

Másodharmonikus kristállyal használva FROG esetén is jelentkezik az autokorreláció egyik fő problémája: a kép szimmetrikus. Emiatt a módszer nem különbözteti meg egymástól pl. az azonos mértékben, de ellentétes előjellel csörpölt impulzusokat.

Erre a problémára ad megoldást az elrendezés polarizációkapuzott módosítása (PG-FROG), melyben a próbaimpulzust polarizátoron vezetjük át a nemlineáris közeg előtt és után, egymásra merőlegesen, a kapu impulzus polarizációját pedig 45°-kal elforgatjuk. Az így létrehozott impulzus (komplex) elektromos tere tehát $\hat{E}_{\text{PG-FROG}}(t, \tau) \propto \hat{E}(t)|\hat{E}(t - \tau)|^2$, mely már megkülönbözteti a csörp előjelét.

⁸Béka (francia).

Ugyanerre a problémára felhasználható továbbá bármely páratlan rendű nemlinearitást tartalmazó FROG változat, vagy az ön-diffrakciós (self-diffraction) FROG is [52].

2.4.3. SPIDER

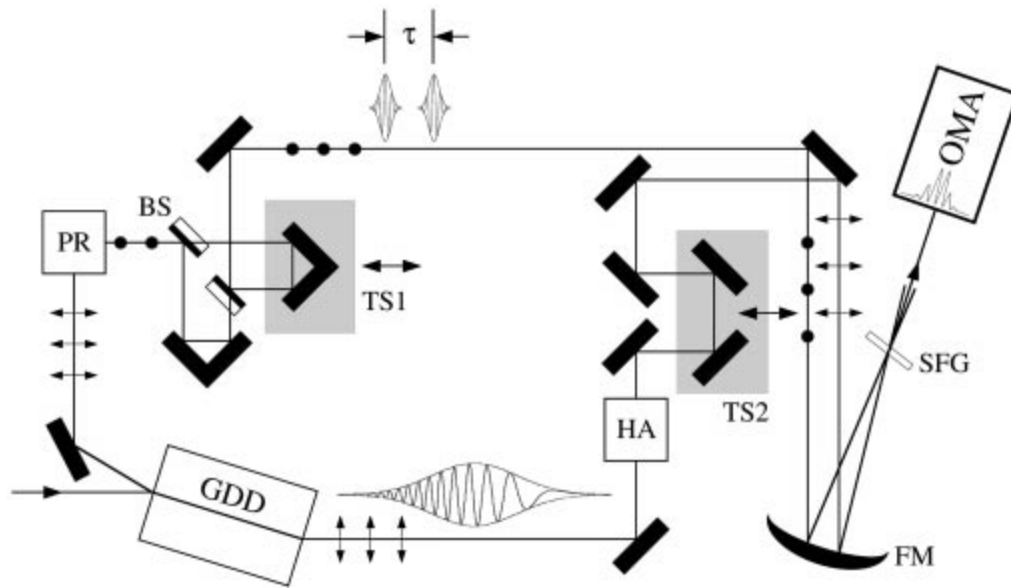
Ez a detektálási módszer is az autokorreláció ötletét használja fel, ill. fejleszti tovább [53]. A nyaláb útjába nyalábosztót teszünk, és az egyik karban diszperzív elem segítségével megnyújtjuk az impulzust (2.12 ábra). A másik karban mégegyszer kétváltasztjuk a nyalábot, és késleltetve egyesítjük. Ezt a két karból jövő nyalábot kis szögben ráfókuszáljuk egy frekvenciaösszegző kristályra, és az eredményt spektrométerrel detektáljuk. Mivel a csörpölt impulzus eleje és vége különböző frekvenciájú, a mért spektrumból kiszámolható a csoportkésleltetés, a késleltető elem miatt időben felbontva. Ebből a spektrális fázis visszafejthető, tehát teljes információt kaptunk az eredeti impulzusról. Kiértékelése egyszerűbb-gyorsabb mint a FROG-nak (nincs szükség iterációra), viszont azzal szemben nincs redundáns információ konzisztencia ellenőrzésre [54].

2.5. Fotoionizációs elektronspektroszkópia és XUV spektroszkópia

2.5.1. Repülési idő spektrométer

Time of flight (TOF), repülési idő spektrométer. Ha a kísérletben töltött részecskék keletkeznek, azok elektromos és mágneses terekkel irányíthatók. Elektromágneses erők nélküli⁹ térben az adott úthossz megtétele után detektálhatjuk, pl. egy fotoelektron-sokszorozóval. A különböző sebességű részecskék időben szétválasztva érkeznek, ezt méri a detektor. Gyakran a részecskék indulási időpontját is mérjük, pl. egy fotodiódával. Tömegspektrométerként anyagvizsgálatra is alkalmas: konstans előfeszítéssel minden iont adott energiára gyorsítva a tömegük határozza meg az elért sebességet, tehát a megtett úton – mint köztes mennyiségen keresztül – az időt.

⁹Ez is csak egy közelítés persze, például a Föld mágneses terét sem lehet pontosan kompenzálni.



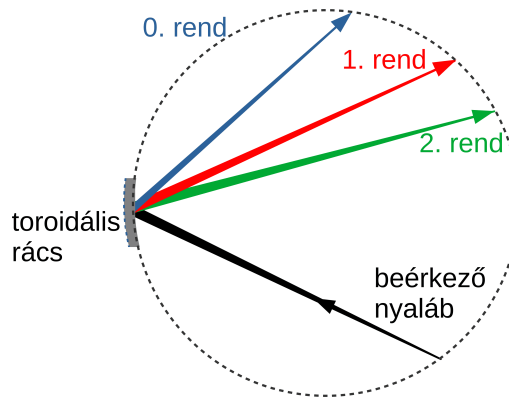
2.12. ábra. A SPIDER elrendezése. A baloldali karban a PR periszkóp a polarizációt forgatja, majd újabb nyálábosztás és a Mach-Zehnder interferométerbeli újraegyesítést követően kettős impulzust kapunk, ezt fókuszáljuk a GDD diszperzív üvegdarabon átmenő, időben megnyújtott nyalábbal együtt az SFG frekvenciaösszegző kristályra, és detektáljuk az OMA spektrométerrel a TSI készletének függvényében. Forrás: [54].

2.5.2. XUV spektrométer

Bizonyos kísérletekben (4. fejezet) nincs szükség időbeli felbontásra, csak a spektrumot mérjük. Ma már kereskedelmi forgalomban kaphatók vákuumrendszerhez csatlakoztatható XUV és Röntgen tartományú spektrométerek, ill. Si és egyéb szilárdtest anyagú detektorok, de a legelterjedtebb, legegyszerűbb megoldás a '70-es évek óta fejlesztett MCP (microchannel plate) technológia, ami a fotoelektron-sokszorozó alapötletére épül és térben felbontja a beérkező jelet. Spektrométer célú felhasználásához ezért célszerű az XUV nyalábot spektrális komponensekre bontani, ez XUV frekvenciák esetén jellemzően ráccsal történik, hiszen transzmisszív optikák nincsenek erre a spektrális tartományra.

Elterjedt a toroidális rács, ami görbült felületének köszönhetően a szétválasztás mellett fókuszálja is a nyalábot a Rowland-körnek nevezett helyre (2.13 ábra).

A szétválasztott nyalábot a helyzetérzékeny detektorra fókuszáljuk. A nagyfeszültségre kapcsolt MCP a fotonokat elektronokká alakítja, majd a mögötte levő foszforernyő az elektronokból látható fotonokat kelt, megtartva a térbeli informáci-



2.13. ábra. A toroidális rács a beérkező nyaláb Rowland-körrel (szürke szaggatott) vett metszéspontját képezi le a kör és a kimenő nyalábok egyenesének metszéspontjára. A nulladrend (kék) a visszavert nyaláb, a magasabb rendek irányait a rácsegyenlet alapján lehet kiszámolni.

ót. Ez egy gyorsabb kamerával már digitalizálható jel, így a számítógép két dimenziós képként rögzíti az XUV spektrumot.

2.6. Attoszekundumos impulzusok diagnosztikája

2.6.1. Attoszekundumos autokorreláció

Ez a módszer analóg a 2.4.1 fejezetben leírt elvvel, csak megvalósítása nehezebb technikai körülményeket támaszt, mert míg femtoszekundumos esetben elég volt a tükröt szub-mikronos távolságokkal mozgatni¹⁰, itt ennél legalább egy nagyságrenddel pontosabb mozgatási pontosságra van szükség, ami tisztán mechanikus léptetőmotorokkal már nem megvalósítható, helyette piezoelektromos elven működő mozgókat használnak.

További módosítás, hogy az amplitúdóosztáshoz képest más a nyalábosztás fizikai megvalósítása is: a hullámfrontot osztják két részre (volume AC) pl. félbevágott tükörrel [55–57], vagy egyéb módszerrel [58] és késleltetik egymáshoz képest a résznyalábokat. Ennek a változatnak nagy előnye, hogy a nyaláb nem halad át diszperzív elemen (nyalábosztó). A kristály-fotodióda detektálás helyett használnak gázközeget is, hogy a keltett ionokat repülési idő (TOF) spektrométerrel gyűjtsék a késleltetés függvényében [57].

¹⁰ $(c/2) \times 300 \text{ as} \approx 0,05 \mu\text{m}$.

Egyik legegyszerűbb alkalmazása az attoimpulzus hosszának becslése. Ezen a példán kiderül az is, miért elengedhetetlen a nemlineáris autokorreláció [59]: lineáris közeg (az idézett cikkben víz és xenon gáz is ionizálható egyetlen fotonnal) esetén minden foton ugyanakkora valószínűséggel ionizálja a gázt, így a késleltetéstől nem függ a megmért elektronjel. Ezzel szemben nemlineáris közeget (itt: hélium) használva legalább két foton szükséges az elektronemisszióhoz, így a két nyaláb átfedése autokorrelációs jelként kirajzolódik.

2.6.2. RABITT

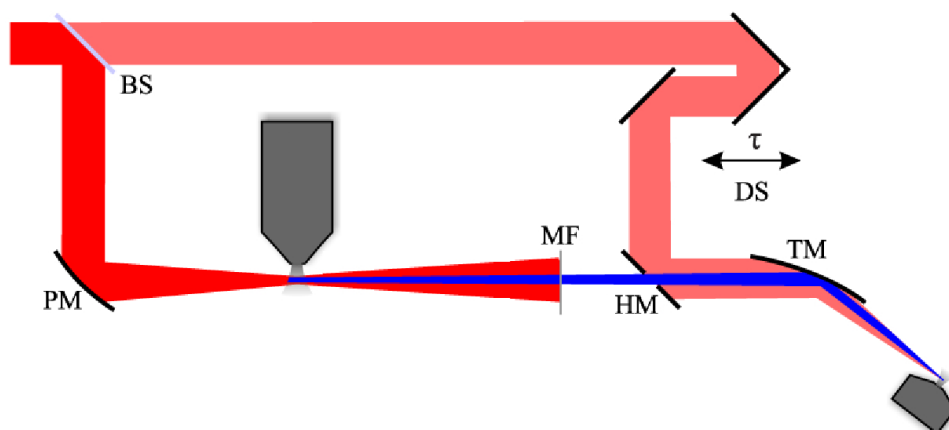
Ez a módszer azt az ötletet használja, hogy magasharmonikus-keltés során csak páratlan felharmonikusok jönnek létre. Ezt az XUV nyalábot az eredeti gyenge próbanyalábjával együtt fókuszálják egy újabb nemesgázforrás közelébe, és a keltett elektronokat repülési idő spektrométerrel gyűjtik össze (2.14 ábra). Az XUV rendeken az infravörös fotonok miatt oldalsávok jelennek meg és a $2n-1$ -edik harmonikus jobb oldali oldalsávja ugyanott van mint a $2n+1$ -edik bal oldali, mégpedig a (HHG során nem keltett) $2n$ -edik harmonikus helyén. A két egybeeső oldalsáv interferenciája miatt a megjelenő csúcsok mérete tolódik a késleltetés függvényében, amiből a spektrális fázis kiszámolható. A korábbi módszerekkel szemben itt a spektrális intenzitást nem tudjuk meghatározni, emiatt ez nem teljes karakterizálás [60].

2.6.3. Attoszekundumos sávkamera

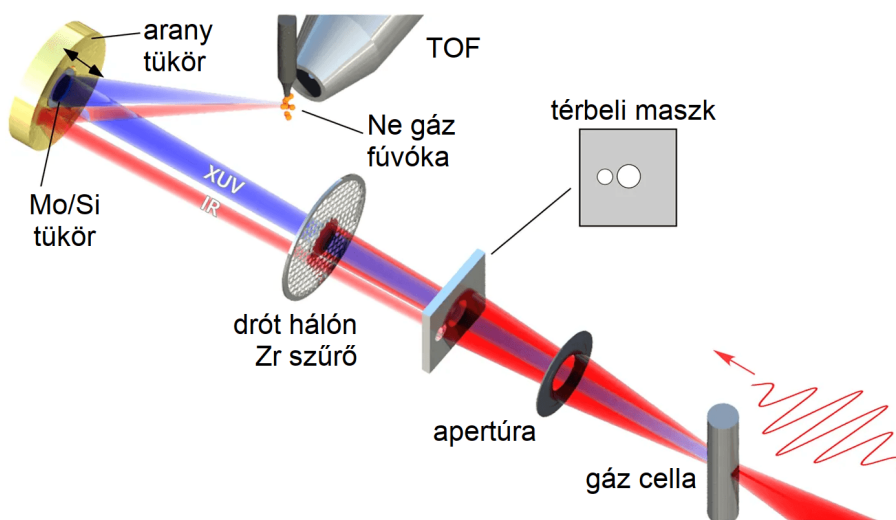
Az attoszekundumos streaking [16, 62, 63] vagy sávkamera a mostanában leginkább elfogadott attoszekundumos XUV nyaláb mérési módszer, mely ha nem is teljes mértékben karakterizálja, de az attoszekundumos impulzus hosszára pontosabb becslést ad mint az attoszekundumos autokorreláció [57].

A 2.15 ábra¹¹ mutatja be az alapötletet, ami tulajdonképpen egy infravörös-XUV keresztkorreláció: az infravörös nyalábbal magasharmonikusokat keltenek, majd a két nyalábot térben szeparálva és időben késleltetve együtt fókuszálják egy másik gáz fúvóka közelébe, hogy az együttes tér ionizáló hatásával keltett elektronokat repülési idő spektrométerrel detektálják.

¹¹Ez gyakorlatilag a FROG (2.4.2 alfejezet) attoszekundumos általánosítása.



2.14. ábra. A RABITT módszer elrendezése. A BS nyalábosztó az energia kisebb részét egy késleltethető tükröpáron keresztül egy kilyukasztott közepű tükörre irányítja. Itt erősebb nyaláb által keltett felharmonikusokkal adódik össze, majd a közös nyalábot egy görbült tükörrel egy másik gázfúvóka közelébe fókuszálják, TOF detektorral mérve a fotoelektronokat. Forrás: [61].



2.15. ábra. Az attoszekundumos sávkamera kísérleti elrendezése. Az infravörös nyaláb XUV sugárzást kelt a gáz cellában. Az apertúra, a térbeli maszk, és a fémhálóra szerelt Zr szűrő gondoskodik a két nyaláb térbeli szétválasztásáról, majd egy koncentrikusan elhelyezett, egymáshoz képest mozgatható fókuszáló-tükör-pár irányítja az impulzusokat a gáz fúvóka közelébe, ahol a TOF detektor az elektronspektrumot méri. Egy streaking felvételt mutat be a 3.2 ábra. Forrás: [64].

A mérés során felvett spektrogram (ld. 3.2 (a) alábra) x tengelye a tükrökön beállított késleltetés, y tengelye pedig energia(spektrum), melyet a TOF egyes méréseiből a beérkezés ideje alapján számítottak át energiára. Ezek tipikusan nem-relativisztikus elektronok, melyekre valamely t_0 kezdőidőpontot kalibrálva $v = \frac{s_{\text{TOF}}}{(t-t_0)}$, ahonnan $E = \frac{1}{2}mv^2$ klasszikus mechanikai összefüggésekkel adódik.

A spektrogram kiértékelésének alapötlete [63], hogy az infravörös nyaláb elektromos terének integrálása (mint elektromos erő $F = -eE$) megadja az XUV által ionizált elektron impulzusváltozását, ami pedig az elektromos töltés együtthatótól eltekintve a keltő tér vektorpotenciálja sebességmértékben. Ez a vektorpotenciál rajzolódik ki a spektrogramon, ha az XUV próbaimpulzus a Nyquist-Shannon mintavételezési törvény alapján elegendően rövid, ennek időderiváltja pedig megadja az infravörös nyaláb elektromos terét.

Noha ez egyes alkalmazásoknál lehet kitüntetett cél (ld. 2.1.5 fejezet), a sávkamera jelentősége elsősorban az attoszekundumos impulzus hosszának becslése, melyet a spektrogram y irányban vett félértékszélességéből lehet kiszámolni. Használható továbbá az infravörös tér hullámformájának mérésére is [63].

2.7. Magasharmonikus-keltés klasztereken

A klaszter szó a fizikai tudományokban a '40-es években keletkezett, és a '80-as évektől kezdve kapott különleges figyelmet. Valamilyen fizikai kötéssel egymáshoz csatolt atomokat (vagy molekulákat) jelent, és akár különböző anyagok is egymáshoz kapcsolódhatnak így. Tulajdonságait tekintve valahol félúton található az atomi (vagy molekuláris) és a tömbi, szilárd anyag között: kutatásának egyik fő motivációja a mikroszkopikus és makroszkopikus anyagmennyiségek közti átmenet vizsgálata. Általában metastabilak, tehát az anyag és a kötés függvényében adott idő után külső behatás nélkül is kevesebb atomot (vagy molekulát) tartalmazó klaszterré, végül alkotóelemekre esnek szét.

Vizsgálataim során nemesgázatomokat használtam, és egyszerre csak egyféle atomokat, melyek Van der Waals-erővel kapcsolódnak egymáshoz. Ezeket ezért Van der Waals-klaszttereknek is hívják.

A nemesgáz klaszterek magasharmonikus-keltés folyamatához is felhasználhatók. Több alkalommal publikálták, hogy klaszter közeget használva azonos háttérnyomáson nagyobb a keltés hatásfoka mint atomok esetén [10, 11, 65]. Ez szemlé-

letesen érthető is: a Van der Waals-féle gázmodellben $\left(p + \frac{a}{V_m^2}\right)(V - nb)$ váltja az ideális gáz pV szorzatát, ahol a és b anyagi állandók, tehát új nyomásfogalomként értelmezhető a $p' = \left(p + \frac{a}{V_m^2}\right)\left(1 - \frac{nb}{V}\right)$ szorzat. Ha elég távol vagyunk a $V = nb$ határesetétől (annyira nagy a nyomás, hogy a gáz a térfogat jelentős részét kitölti), akkor atomos gázzal k atomos klaszterre áttérve k -szor annyi atomon jöhet létre a HHG folyamat, míg p' ennél aránytalanul kisebb mértékben nő, tehát a magasharmonikus-keltés hatásfok sokkal nagyobb. Egy kísérleti vizsgálatnál [66] azt tapasztalták, hogy a klaszter közeg a keltő nyaláb 90% fölötti részét elnyelte¹². A 2.3.4 alfejezetben mutattam be fontosabb szemelvényeket az atomos gáz HHG letörési frekvenciájára vonatkozó irodalomból, a következő részben pedig a klasztereken végzett HHG letörés irodalmából idézek. Az itt is használt I_P és U_p definíciók is ott találhatóak.

Egyes publikációk szerint a letörési frekvencia (cutoff) nagyobb energiák felé tolódik, ha klasztereket használunk atomos gáz helyett [10, 12], más források ezt cáfolják [67, 68], így az irodalom alapján erről nincs általánosan elfogadott álláspont. Egy numerikus szimuláció alapján konkrét összefüggést is javasolnak a cutoff értékére: $I_P + 8U_p$ [69], de ezt még a kísérleti eredmények nem támasztják alá [10, 12], habár a magasharmonikus-keltés témakörében régóta elfogadott $I_P + 3,17U_p$ cutoff [1] értékénél sikerült számottevően nagyobb értéket kísérletileg kimutatni [11]. Klaszterek esetén az intenzitás függvényében meredekebben nő a letörési frekvencia mint atomok esetén [11, 70].

Klaszter közeg esetén kiderült továbbá, hogy minél nagyobb a klaszter, annál jobban összezavarja az XUV nyaláb polarizációját, annál jobban eltér a lineáris polarizációtól egy véletlen eloszlás irányába [13]. Szemléletesen ez is érthető, hiszen nagyobb klasztereket feltételezve várhatóan többször szóródnak az XUV fotonok mint kisebb klaszteren vagy atomos esetben.

A fentiekből kiderül, hogy a magasharmonikus-keltésre a klaszter közeg nem csak alkalmas, de több tekintetben is felülmúlja a monomer gáz által keltett XUV nyaláb tulajdonságait, ezért vizsgálata továbbra is indokolt. Ennek ellenére nem tisztázott a folyamat mechanizmusa, tehát hogy a visszatérő elektron hol tud rekombinálódni [13]. Ennek kísérleti vizsgálatát tárgyalom a 4. fejezetben.

¹²Ez önmagában nem feltétlenül jelent nagyobb keltési hatásfokot, de a nagyobb hatás keresztmetszet nagyobb XUV hozam alapja lehet.

3. fejezet

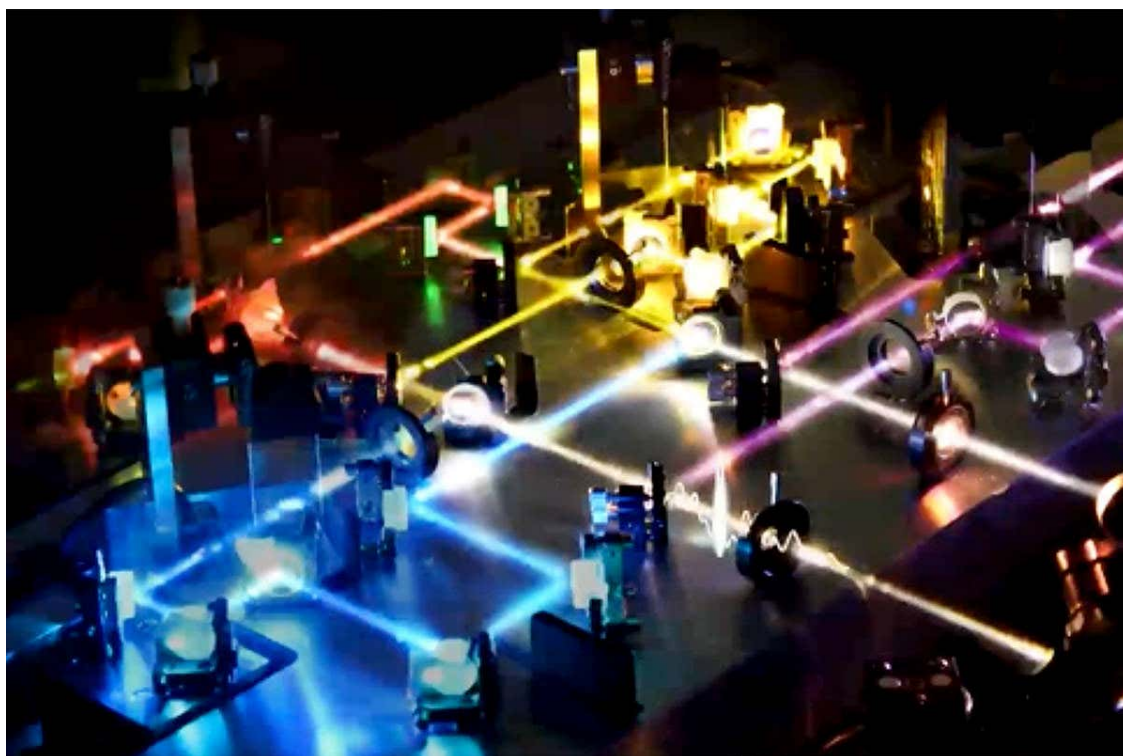
Attoszekundumos impulzusokeltés optimalizálása

3.1. Fényhullám-szintetizátor modellezése

Egy nemrég a gyakorlatban is megvalósított ún. fényhullám-szintetizátor eszköz (3.1 ábra) [9, 16, 17] numerikus modelljét készítettem el, és megvizsgáltam, hogy milyen attoszekundumos impulzusok kelthetők vele. A fényhullám-szintetizátor különlegessége, hogy optikai úton lehet egy optikai ciklusnál rövidebb impulzust létrehozni a segítségével (3.2 ábra).

A 3.1 ábra mutatja az eszköz fizikai megvalósítását. Egy kapillárisban kiszélesített femtoszekundumos lézerezésű impulzus [71] széles sávú fehér fényként jelenik meg a nemesgázzal töltött kapilláris kimenetén. Ezt a másfél oktáv szélességű frekvenciatartományt spektrális osztókkal különböző spektrális sávokra választják szét. Ezek a nyalábok legalább részben a spektrum látható részében vannak, így különböző színekben látjuk őket.

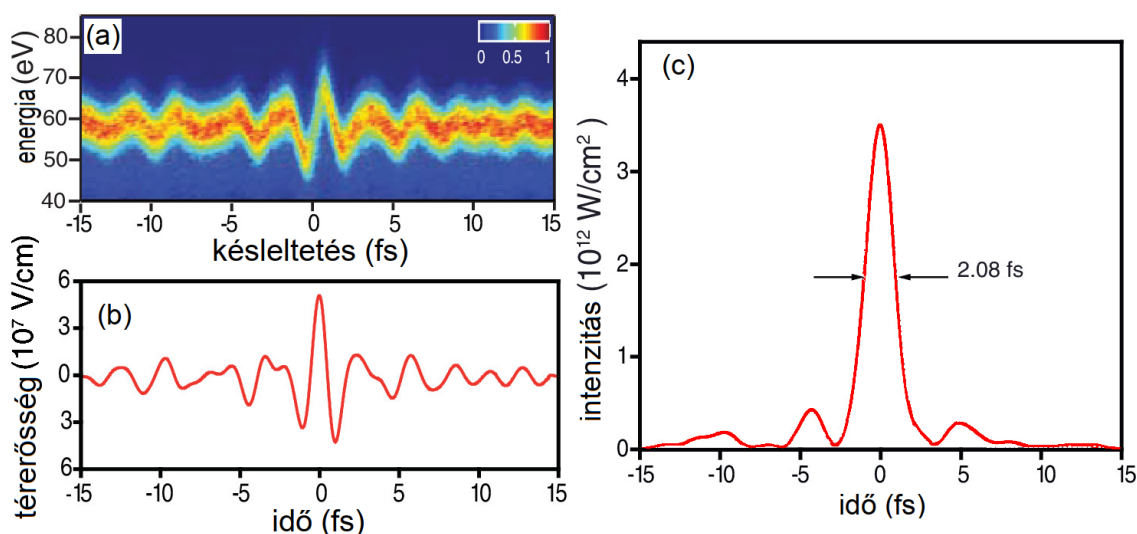
Bár az emberi látás egyénről egyénre változik, a biológiában a látható fényt 380 és 740 nm között definiálják [72]. Az infravörös csatorna kb. 740 nm-ig tart (ld. 3.3 ábra), tehát épp csak súrolja a látható tartományt, amiben energiájának 12,5%-a van csak, ezért a fénykép pirosnak mutatja és a valóságban is hasonló színben érzékelhető. A sárga csatorna teljesen a látható tartományba esik. A kék csatorna 502 és 346 nm között sugároz, tehát nagyrészt a látható tartományban van: az energiájának 80%-a látható és csak 20% UV, fénye kéknek látszik. A szintetizátor eszköz minden karjában az adott résznyalábot módosítják a következők szerint:



3.1. ábra. A fényszintetizátor eszköz fizikai megvalósítása. A spektrálisan kiszélesített femtoszekundumos lézerimpulzust négy spektrális csatornára bontják egy megfelelő interferométerben, majd az egyes csatornák amplitúdó- és fázisállításával mindössze egy optikai cikusból álló impulzust szintetizálnak. A színes résznyalábok egy-egy spektrális sávot adnak a kimenethez. Fontos megjegyezni, hogy a fényképen nem történt jelentős utómunka, a laborban (a fehérfény impulzusvonalat kivételével) ugyanezek a színek láthatók az interferométerben. Forrás: [E. Goulielmakis és munkatársai]

- Egy-egy durvább (néhány mm-es) eltolóval időben lehet tolni a nyalábokat, hogy az interferométer kimenetén az impulzusok átfedjenek.
- Egy-egy ékpárral az előzőnél finomabb időbeli eltolás lehetséges, valamint az ékbeli terjedés során a fázis- és csoportsebesség különbözősége miatt egyúttal ez a CEP-et is hangolja. Ugyanezen okból egyúttal a nyaláb diszperziója is finomhangolható.
- Egy-egy írisszel a nyalábok energiája csökkenthető.

A résznyalábokat a szétválasztáshoz használt osztókhöz hasonló optikai elemekkel (színszűrőkkel) újraegyesítik (ez látszik a 3.1 ábrán). Az interferométer kimene-



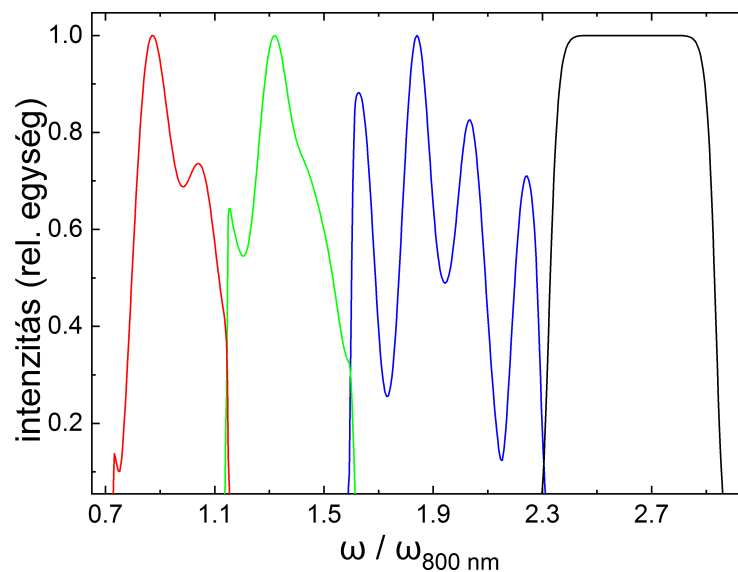
3.2. ábra. (a) Attoszekundumos sávkamera-felvétel a fényhullám-szintetizátor kimenetével. (b) Az elektromos térerősség rekonstrukciója. (c) Az előállított impulzus intenzitás-félérték szélessége 2,08 fs, ami a látható tartományban egyciklusú impulzusnak felel meg. Forrás: [16].

tén tehát egy hangolható, széles spektrumú nyaláb keletkezik, amiből a megfelelő paraméterekkel optikai egyciklusú impulzus állítható elő [16], ld. 3.2 ábra.

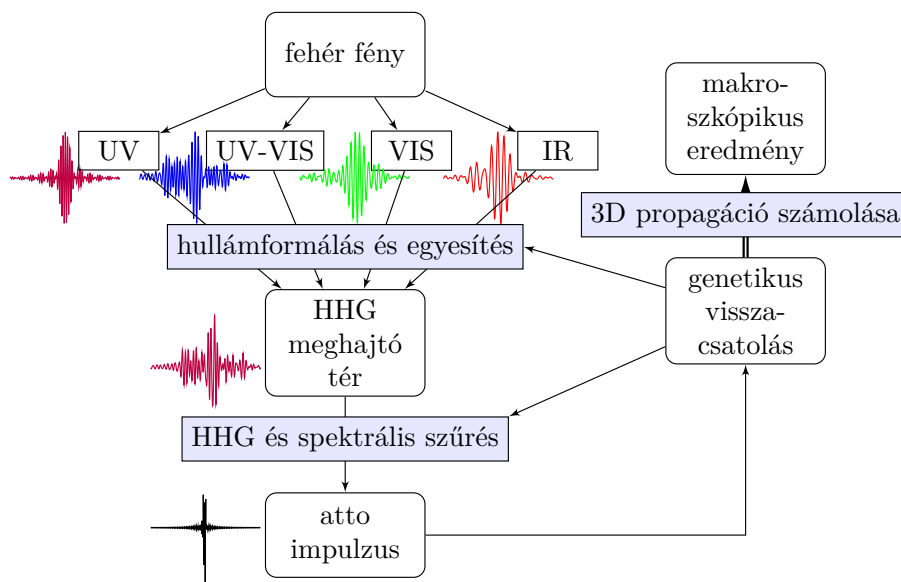
A kísérletben előállított egyciklusú impulzust a szerzők kísérletileg attoszekundumos sávkamera típusú alkalmazáshoz használták [9, 16, 17], és kimutatták, hogy az interferométer valóban a ciklushosszal összemérhető impulzust állít elő (3.2 ábra).

Mindeddig a fényhullám-szintetizátort azonban nem használták arra, hogy a kimenetével felharmonikusokat keltsenek. Ilyen, és ehhez hasonló eszközök elterjedésével ez a lehetőség egyre több laborban rendelkezésre fog állni, ezért kiemelkedően fontos, hogy (első lépésként) numerikusan megvizsgáljuk, hogy milyen attoszekundumos impulzusokat lehet kelteni egy ilyen eszköz által biztosított egyciklusú, extrém széles spektrumú lézerpulzusokkal.

Az itt bemutatott szimulációban egy olyan alkalmazást választottam, amire eddig még nem használták a tárgyalt eszközt, viszont a rendszer flexibilitása miatt ígéretesnek tűnik az ilyen irányú felhasználás is. Első lépésként megvizsgáltam tehát, hogy a fényhullám-szintetizátor pontosan hangolható kimenetét felhasználva milyen magasharmonikus-keltési folyamatok állnak elő, milyen attoszekundumos impulzusok hozhatók létre egyciklusú vagy akár rövidebb, a látható tartományban szintetizált fényimpulzusokkal.



3.3. ábra. [T1] Mért elektromos intenzitások frekvenciatérben ábrázolva, az x tengely a 800 nm felharmonikus rendjeként ábrázolja a frekvenciát. A három mért görbéhez egy negyedik, supergaussi spektrumú UV csatornát adtam.



3.4. ábra. [T2] Genetikus algoritlussal meghajtott fényhullám-szintetizátor és az ezzel elvégzett magasrendű felharmonikuseltés folyamatábrája.

3.1.1. Elrendezés, csatornák

Az általam vizsgált elrendezést a 3.4 ábra mutatja, és megvalósításában is a már bemutatott, létező laboerszközt modellezi. A kapillárisból nyert szélessávú fehér fényt spektrális csatornákra választottam szét, majd ezeket külön karokban módosítva egyesítettem. Az így kapott impulzusra HHG egyatomos választ számoltam ki. Ez a módszer (Lewenstein-féle Strong Field Approximation) egy tipikus HHG kísérletben alkalmazott fizikai körülményeket feltételezve, az átmeneti valószínűségek kvantummechanikai módszerét felhasználva egy integrálként írja fel az időfüggő dipólmomentumot, amelyből az XUV spektrum Fourier transzformálással kapható meg (ld. 2.3.2 alfejezet és [1, 2]).

Ezen rendszert kötöttem össze egy saját fejlesztésű genetikus algoritmussal azért, hogy meghatározza az interferométer paramétereit, adott, speciális alakú attoszekundumos hullámformák keltéséhez. A szimulációt az alábbiakban részletesen is bemutatom.

A [9] cikk szerzőitől megkaptam az elektromos tér adatsorait az akkor rendelkezésre álló három spektrális csatornára, melyet attoszekundumos sávkamera-kísérletekkel határoztak meg. Akkor még az ő rendszerükben csak az infravörös, a látható és a látható-UV nyaláb működött, de már tervben volt a rendszer bővítése egy UV csatornával. A 3.3 ábra mutatja be a spektrális tartományokat, melyhez én a tervezett bővítés alapján egy supergaussi spektrumú interferométerkart adtam hozzá mint negyedik csatornát, az ultraibolya tartományban. Ennek általános alakja x_0 középpont, A amplitúdó, és σ csúcshélesség (szórás) esetén: $f(x) = A \exp\left(-\left(\frac{x-x_0}{2\sigma_x}\right)^P\right)$, ahol a P kitevő értékének növelésével élesedik a felfutás és lecsengés, ennek értéke a szimulált UV csatornára 7,5 volt.

Az ábrán a frekvenciát a 800 nm-es (Ti:zafír) frekvencia felharmonikus rendjeként adom meg, és ezt az egész fejezetben így jelzem az egyszerűség kedvéért, annak ellenére, hogy itt a HHG keltés extrém széles szuperkontinuummal történik. Ez alapján: $\omega_0 := \omega_{800 \text{ nm}} = 2\pi \cdot 3,7 \times 10^{14} \text{ Hz} = 2,35 \times 10^{15} \text{ 1/s}$. Hasonlóan Hn -nel is jelölöm az n -edik felharmonikust, melynek körfrekvenciája $n \times \omega_0$. Ezt a jelölést a 4. fejezetben is használom.

A karokban megvalósítható hangolási lehetőségek egyszerre több fizikai paramétert is változtatnak, emiatt a modellezésben ezeket használtam szabad paraméterként, így lett az általam használt szimuláció paramétere az amplitúdó, az időbeli és a fázistolás (ld. 2.1.3 alfejezet).

Felmerül a kérdés, hogy az idő- és fázistolás nem összefüggő mennyiségek-e, hiszen egy általános gaussi nyaláb esetén felírható egy differenciális összefüggés e két mennyiség között. A válasz határozott nem, hiszen már kevés ciklusú impulzus esetén is látható, hogy a burkoló fél perióduson belül is megváltozik, ugyanakkor az általam használt kísérletileg mért terekre még a burkoló sem definiálható egyértelműen. Az így megválasztott elméleti paraméterek tehát egymástól függetlenül reprezentálják a kísérleti hangolási lehetőségeket.

A HHG folyamat során keltett XUV nyalábot spektrálisan szűrjük. Ennek elsődleges célja, hogy a keltő teret és a perturbatív (alacsonyrendű) harmonikusokat kiszűrje, amik a plató tartománynál jellemzően legalább egy nagyságrenddel intenzívebbek. A különálló attoszekundumos impulzushoz általában szükség van egy plató tartományra, ahol a spektrális fázis is közel van egy konstans értékhez, ezt a perturbatív harmonikusok jelenléte (vagy egyéb csúcsok a spektrumban) megakadályozhatják. Emiatt döntöttem úgy, hogy a szimulációhoz további két szabad paramétert rendeljek: az XUV impulzusra vonatkozó spektrális szűrés intervallumának határolópontjait.

3.1.2. Genetikus algoritmus

A genetikus algoritmus, genetikus optimalizálás vagy evolúciós algoritmus arra az ötletre épül, ahogy a darwini elméletben a fajok változnak a túlélési, mutációs és szaporodási képességeik alapján. A gyakorlatban ezt jellemzően sokdimenziós, nem-lineáris optimalizálásra használják. A paraméterek terében definiálható egy fitness- vagy célfüggvény, mely megadja, hogy egy adott paraméterkombináció (evolúció esetén egyed) mennyire életképes. A futtatás elején általában adott mennyiségű pontot (véletlenszerű génkombinációt, tkp. egyed) generálunk, majd ezek közül a legjobbak vesznek részt a további versenyben. Innentől minden egyes lépés (generáció) során az egyedeket mutációnak vagy géncserének vetjük alá, amik mint a populáció utódai, beszállnak a versenybe. Újból kiválasztjuk a legjobbakat, és így tovább, míg egy leállítási (konvergencia) feltétel nem teljesül. Ilyen feltétel lehet egy adott fitness-szint feletti érték, vagy rögzített mennyiségű generációszám is.

Ezzel az alapötlettel rengeteg, nagyon különböző optimalizációs probléma oldható meg tudományos és műszaki területen egyaránt [73, 74], például a femtokémiai tudományterület koherens kontroll módszere is előszeretettel használja ahhoz, hogy optimális kvantummechanikai átmeneteken keresztül hozzon létre kívánt végállapo-

tokat megfelelően (amplitúdó)formált lézerimpulzusokkal. Az algoritmus beállításait, finomhangolását azonban az adott problémához kell adaptálni, ami a genetikus algoritmusok használatának legnagyobb kihívását jelentik. Ilyen optimalizálandó paraméterek pl. a mutáció vagy géncsere valószínűségei, a populációban egyszerre jelenlevő egyedek száma, és számos további futtatási paraméter, ezeket külön tesztekkel kellett megfelelően beállítanom a munkám során, melyeket itt nem részletezek.

A fényszintetizátor genetikus optimalizálásánál figyelembe vettem a különböző paraméterek matematikai jellegét, ez alapján vezettem be a gének (paraméterek) típusait. Például a fizikai probléma időben és frekvenciában csak diszkrét módon kezelhető. Olyan felosztást vezettem be, ami idő- és frekvenciatérben is elég nagy felbontással bír, illetve számolási sebességét és memóriafelhasználását tekintve futtatható egy modern asztali számítógépen. Így választottam a $\Delta t = 6,25$ as időfelbontású rácsot, és $\Delta\omega = 3,26\omega_0$ frekvencia felosztást, 2^{16} db rácsponttal¹. Az időbeli eltolás génhez (paraméterhez) tehát egy diszkrét számot rendeltem $n \times \Delta t$ -vel való késleltetéshez.

A fázistolás ezzel szemben bármilyen értéket felvehet, nem csak diszkrét értéket egy rácson, viszont 2π -periodikus, amit szintén figyelembe vettem. Végül mind a négy karban az amplitúdót az előző *lineáris jellegű* mennyiségekhez képest *exponenciálisnak* definiáltam, ez a mutáció esetén volt lényeges. Tehát egy paraméter mutációjakor: $x_i^{\text{új}} := x_i^{\text{régi}} + \Delta x$, ahol A nyalábamplitúdó esetén $x_i = \ln A$, tehát a gén logaritmusának értékén számoltam, mert így a mutáció ugyanolyan jól működik különböző amplitúdó-nagyságrendek esetén is. A Δx értékét, mint a mutáció erősségét a 3.3.1 alfejezetben fejtem ki.

A 3.1.1 alfejezetben említett spektrális szűrés az időtengelyhez hasonlóan csak diszkrét értékeket vehetett fel a korábban bevezetett $\Delta\omega$ felosztású frekvenciarácson. Összegezve a szimuláció genetikus algoritmus oldalát, 4 karban volt egyenként 3 paraméter (késleltetés, CEP, amplitúdó), ezekhez jön további kettő az XUV kimenet spektrális szűrés intervallumának határaival: így az optimalizációnak $4 \times 3 + 2 = 14$ szabad paramétere volt. Ebben a magas dimenziós térben optimalizáltam a hullámformákat.

¹Az FFT könyvtárak a 2 hatványait javasolják a leggyorsabb számítási sebességhez.

3.1.3. Klasszikus visszatérési idő

A fényhullám-szintetizátor számolás alapja a bevezetőben részletezett Lewenstein-integrál. Ennek legfontosabb paramétere az integrálási idő, ami azzal van kapcsolatban, hogy mennyi ideig tartózkodik a szabad elektron a lézertérben az ionizáció és a rekombináció között.

A HHG elméletében megkülönböztetnek rövid és hosszú trajektóriákat, melyeket az ún. letörési elektronok, mint legnagyobb energiájú elektronok kötnek össze. Ez a kép egy gaussi impulzus esetén (3.5 ábra) ennyire egyszerű csak; az általam használt meghajtó tereknél nem látszik ilyen tisztán.

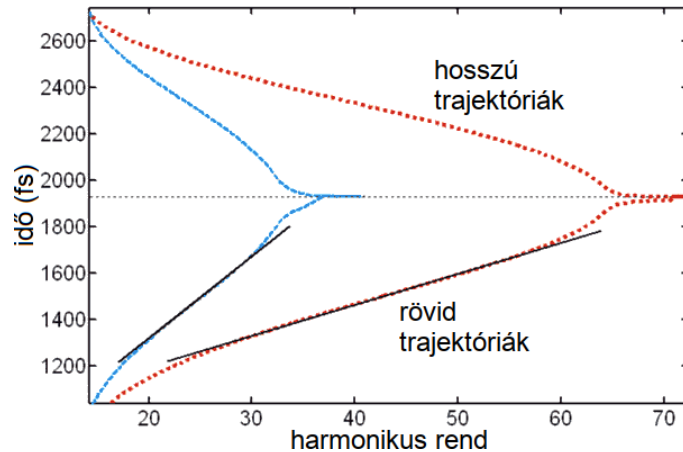
A probléma megoldására klasszikus elektrontrajektória-számoló programmodult készítettem, mely a HHG-t keltő, lézertérben mozgó elektron útját szimulálja minden lehetséges időpontból elindítva. Ennek eredménye az indulási időpont függvényében a visszatérési idő (ha az elektron egyáltalán visszatér), és az elektron mozgási energiája.

Ezek közül a legnagyobb visszatérési energiát nevezem letörési frekvenciának (cutoff, ld. 3.5 ábra), és az ehhez tartozó visszatérési időt használom fel az egyatomos válasz számolásához mint integrálási időintervallumot: a dipólmomentum minden egyes értékének kiszámolásához ilyen hosszúságú időintervallumra adom össze a bevezetőben részletezett integrandust. A 3.2 fejezetben szereplő 500 as késleltetésű kettősimpulzus esetén például ez az érték 1,9 fs.

3.2. Hangolható késleltetésű attoszekundumos kettősimpulzusok keltése

Az optimalizálás első fontos eredményeként bemutatom a hangolható attoszekundumos kettősimpulzusokra vonatkozó eredményeimet. A modellezés során ugyanis azt tapasztaltam, hogy a genetikus algoritmussal attoszekundumos kettősimpulzust is elő lehet állítani. Ennek van egy triviális formája, a T periódusú meghajtó tér $\Delta t = T/2$ félciklussal szeparált csúcsokat hoz létre, tehát pl. a 800 nm központi hullámhosszal rendelkező lézerimpulzus triviálisan 1,33 fs késleltetésű attoimpulzusokat.

A szimuláció fontos célja volt, hogy a triviális megoldást elkerüljük, ezért az optimalizálás a keltő tér legintenzívebb pontjának $T/2$ hosszúságú környezetében



3.5. ábra. Rövid és hosszú trajektóriák magasharmonikus-keltéskor. 800 nm-es ciklusú impulzus $1,2 \times 10^{14}$ W/cm² (kék szaggatott) ill. $3,8 \times 10^{14}$ W/cm² intenzitásokkal. Először a rövid, majd a hosszú trajektóriás elektronok kellenek felharmonikusokat, köztük a cutoff energia, ahonnan az XUV intenzitás exponenciálisan levág a frekvencia függvényében. Forrás: [75].

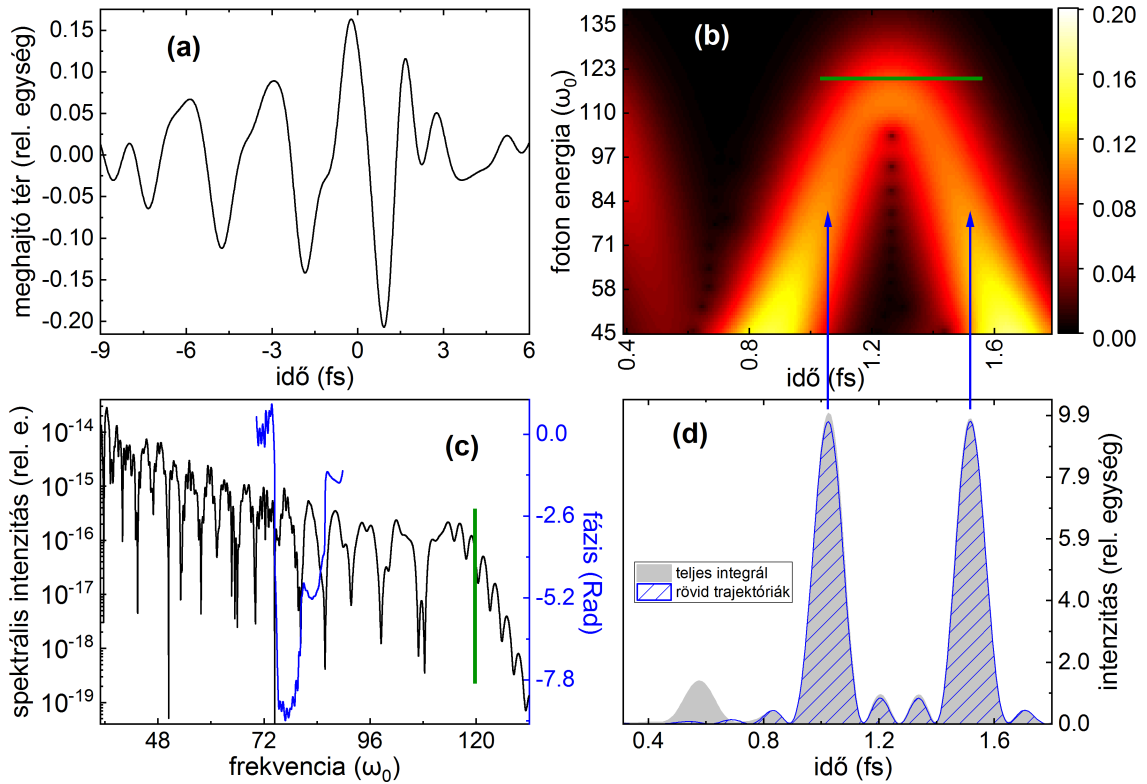
megkeresi a második legerősebb csúcsot, és ha annak intenzitása a maximum 75%-ánál kisebb, úgy a szimuláció ezt az esetet koszinusz impulzusnak definiálja (ld. 2.1.3 alfejezet), ami nem triviális megoldás. Nem koszinusz impulzus esetén az algoritmus kiszámolja a keltő tér középponti frekvenciájából a Δt félperiódust, ha ez a meghatározott késleltetés 75 – 130%-ába esik, úgy ezt a megoldást az algoritmus a triviális esetnek nyilvánítja és nem használja a továbbiakban.

Az alábbiakban 500, 300, 700 és 900 as késleltetések esetére mutatom be az eredményt, az előbbi a másik háromtól kissé különböző tárgyalást kap, mert az utóbbiakhoz ([T1]-ben bemutatva) propagációs számolás is készült.

A genetikus algoritmus célfüggvényét $F := \frac{1}{f_1 + f_2(t_1) + f_2(t_2) + f_3}$ alakban írtam fel, hogy a nevezőt minimalizálja. A két különálló csúcs magasságáért felel az első tag: $f_1 = c_1 ((1 - I(t_1))^2 + (1 - I(t_2))^2)$, ahol $I(t)$ az egységre normált időfüggő atto-intenzitásfüggvény és t_1, t_2 csúcsok helyei, egymástól ΔT (késleltetési paraméter) távolságra.

A második tag célja, hogy a csúcsok t_1 és t_2 helyén csúcs alakja legyen az intenzitásnak: $f_2(t_i) = \int_{t_i - \Delta t}^{t_i + \Delta t} |I(t) - I_{peak}(t, t_i)| dt$, ahol Δt a karakterisztikus csúcs-szélesség, tehát az $I_{peak}(t, t_i) := c_2 e^{-c_3 |t_i - t|}$ cél alaktól való eltérést bünteti a fitness paraméter.

A harmadik tag az összes többi időpontban vett intenzitás integrálja, melynek



3.6. ábra. 500 as késleltetésű kettősimpulzus keltése. (a) A keltő tér elektromos térerőssége, (b) idő-frekvencia analízis, (c) spektrális intenzitás amplitúdója és fázisa, (d) a kettősimpulzus eredmény. A (b) és (c) alábbi ábrákban a zöld vonal a letörési frekvenciát jelzi (vö. 3.5 ábra). A (c) alábbi ábrán a spektrális fázis ábrázolási tartománya jelzi a spektrális szűrés intervallumát

célja, hogy ne legyenek mellékcsúcsok: $f_3 = c_4 \int_{\mathbb{P}} I(t)$, ahol \mathbb{P} -vel jelöltem a csúcsok $2\Delta t$ szélességű \mathbb{P} tartományán (amit az előző pontban f_2 -höz már felhasználtunk) kívül eső részt.

A számolás úgy választja ki a t_1 (és $t_2 = t_1 + \Delta T$) értékét, hogy a fitness a lehető legnagyobb legyen.

A c_1 , c_2 , c_3 és c_4 súlyok értékét próbálkozás útján állítottam be, mert nem volt a kezemben analitikus, vagy akár numerikus módszer a prioritások kialakítására².

A fitness függvényt szemléletesen kibontva tehát az optimalizáció célja, hogy

- a legerősebb intenzitású ponttól ΔT távolságra legyen egy nem sokkal kisebb csúcs,

²A fitness paraméter beállítási problémáit a 3.3.2 alfejezetben részletezem.

- a csúcsok legyenek jól definiáltak,
- az impulzusokon kívül, a mellékimpulzusokban, háttérben stb. megjelenő összenergia legyen minimális,
- ne a triviális megoldást adja vissza (ld. fentebb), ez csak kritérium, a fitness paraméter értékét nem befolyásolja

A 3.6 ábrán látható a genetikus algoritmus futásának eredményeként kapott 500 as késleltetésű atto-kettősimpulzus. A (b) alábra az egyatomos válaszként megkapott $d(t)$ időfüggő dipólmomentum Gábor-transzformációját mutatja, ami tkp. egy gaussi ablakfüggvénnyel időben leszűkített Fourier transzformáció:

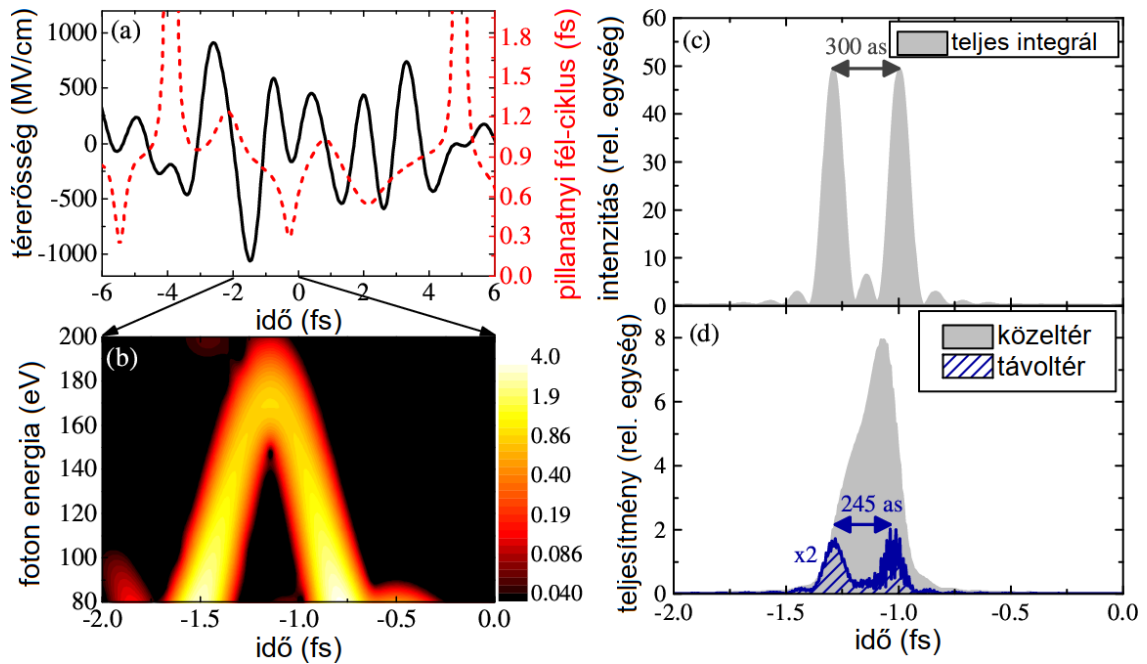
$$G(\omega, \tau) = \int_{\tau-\Delta t}^{\tau+\Delta t} d(t) e^{-\pi\alpha(t-\tau)^2 - i\omega t} dt, \quad (3.1)$$

ahol $W_g = e^{-\pi\alpha(t-\tau)^2}$ az ablakfüggvény, és az α paraméter nagysága a frekvencia- és időkép felbontása közötti hangsúlyt állítja be, a dolgozatban bemutatott ábrákon $\alpha = 30$. Az integrálási intervallum Δt értékét célszerű úgy beállítani, hogy az integrandus a végpontokon lecsengjen, így a számolás jelentősen gyorsítható.

A 3.6(c) alábra mutatja a spektrumot, mely a $d(t)$ időfüggő dipólmomentum $\tilde{d}(\omega)$ Fourier transzformáltjából kapható a dipólsugárzás $I(\omega) = \tilde{d}(\omega) \times \omega^2$ összefüggését felhasználva.

A (d) alábrán bemutatott attoszekundumos kettősimpulzussal azonos időskála alapján látható, hogy a rövid és a hosszú trajektóriás elektronok keltik külön a két impulzust (ellentétben a fent bemutatott triviális megoldással, amikor ezt két különálló félciklus okozza).

A [T1] cikk célja a fényhullám-szintetizátor eszköz lehetőségeinek vizsgálata elméleti és numerikus módszerekkel. Az általam számolt egyatomos válasz a HHG-nek egy leegyszerűsített modellje; ennél pontosabb eredményt kaphatunk, ha makroszkopikus gázközeget feltételezve propagációval vértessük fel a számolást. Mivel ez egy sokkal időigényesebb és komplexebb feladat, ezért genetikus algoritmussal nem futtatható. A cikkben azt az utat követtük, hogy az általam kiszámolt optimális egyatomos eredményhez Balogh Imre (Szegedi Tudományegyetem) kollégám, a Valer Toşa (INCDTIM, Kolozsvár) által fejlesztett propagációs algoritmussal számolt makroszkopikus eredményt, vagyis azt, hogyan nézne ki az impulzus, ha nem csak egy atom választ vennénk figyelembe, hanem makroszkopikus (neon) gáz-közeget.



3.7. ábra. [T1] 300 as késleltetésű kettősimpulzus keltése. (a) Elektromos térerősség és pillanatnyi félciklus, (b) idő-frekvencia analízis, (c) egyatomos válasz, (d) propagációs eredmény: köztér (szürke) és távotér (kék vonalkázott). Mind az egyatomos, mind a makroszkopikus számolás esetén a 130 és 166 eV közötti felharmonikus spektrumot használtuk fel.

Ennek során a Lewenstein-integrál által adott eredményt fázishelyesen összeadta a gáz térfogatának elegendően sok pontján, és numerikusan megoldotta a Maxwell-egyenleteket. Ezek a számolások a makroszkopikus feltételekre nem lettek optimalizálva (hiszen maga a propagációs kód akkora számolásigényű, hogy abban az esetben genetikusan optimalizálás kivitelezhetetlen lenne).

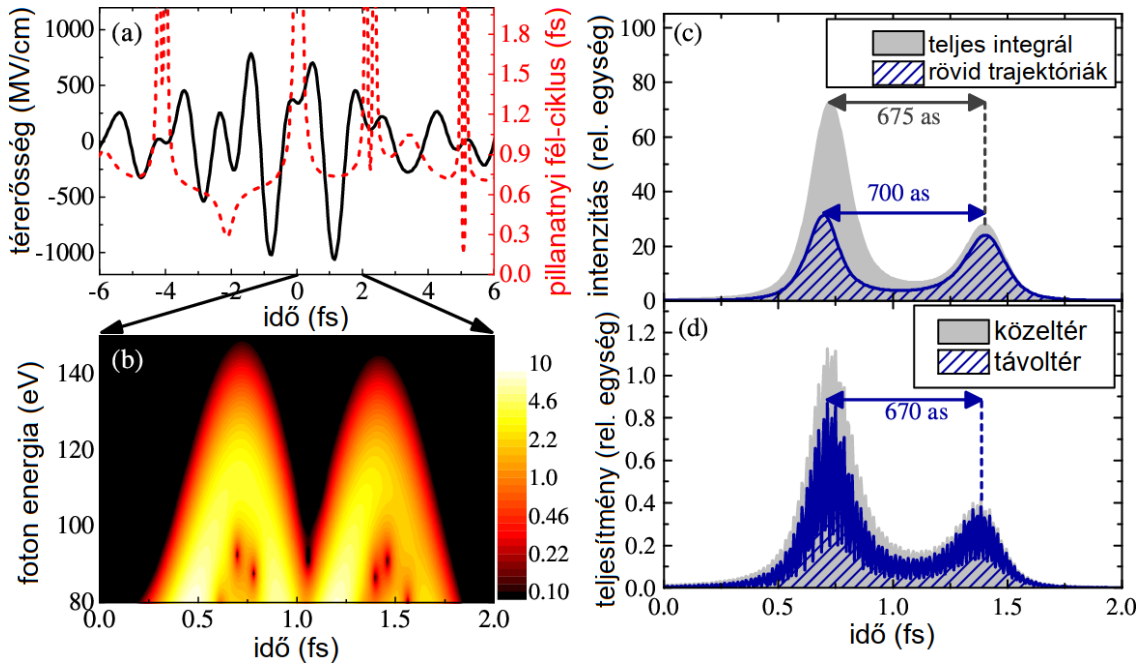
A cikk ezen eredményeket hasonlítja össze, mely során az derült ki, hogy a propagáció után kapható eredmény megtartja az egyatomos válasza által elvégzett optimalizálás főbb tulajdonságait, pl. kettősimpulzus jellegét hasonló késleltetéssel. Mindez tehát azt támasztja alá, hogy az általam megalkotott szimulációs kód nagyságrendileg gyorsabban³, emberi beavatkozás nélkül futó egyatomos válasz szimuláció is alkalmas kvalitatívan helyes eredményt adni.

A 3.7 ábra a 300 as késleltetésű attoszekundumos kettősimpulzust mutatja be. Az (a) alábrán a keltő tér elektromos térerőssége látható (baloldali tengely, folytonos fekete vonal). Piros szaggatottal van jelölve a tér pillanatnyi félciklusa, avagy

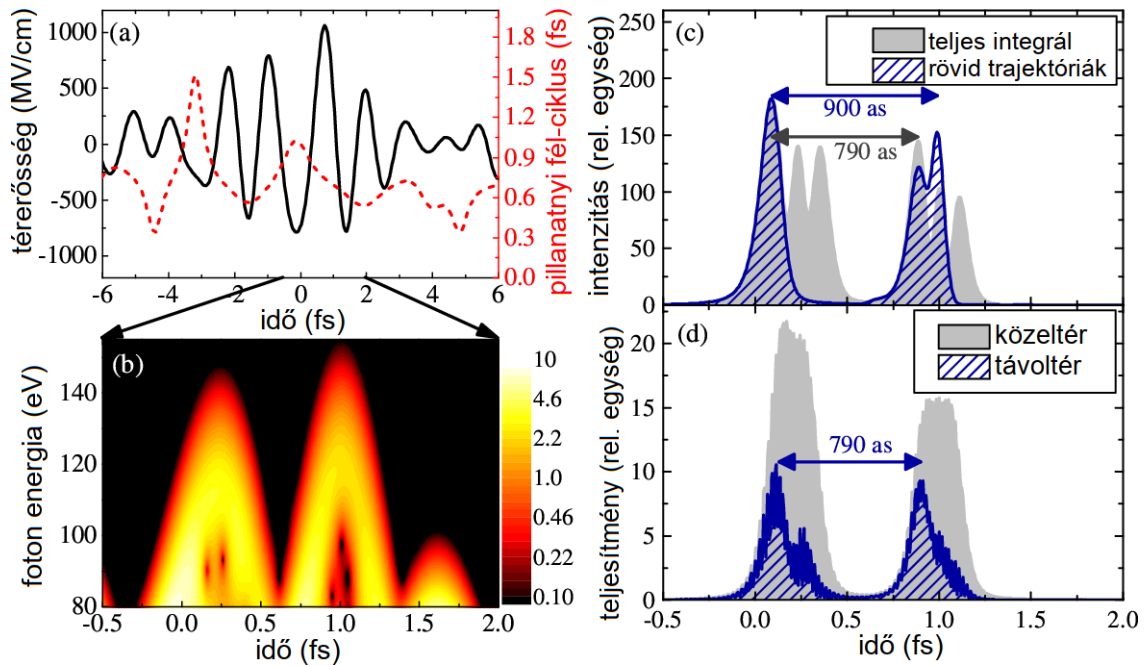
³A propagációs algoritmus ilyen mértékű futtatásához szuperszámítógépekre lenne szükség.

az ebben a pontban található pillanatnyi frekvencia értékből számolt periódusidő fele, szintén a már említett triviális eset vizuális kiszűrésére. Mivel az interferométer karjaiból jövő résznyalábok időben csak részben fednek át, a pillanatnyi amplitúdók arányaiból következik a pillanatnyi félciklus értéke. A (c) alábra maga az attoszekundumos impulzus teljes idő-integrálással. A (b) és (d) alábrák a propagációs számolást mutatják, amelyet az általam biztosított egyatomos eredményt felhasználva készült. A (b) a meghajtó tér Gábor-transzformációja (mint 3.6 (b) alábra). A (d) alábrán a közel- és távöltérben számolt propagációs eredmény látszik. A közel-tér alatt a szimulált közeget közvetlenül elhagyó nyalábot értjük. Ezen Hankel-transzformációt végrehajtva a közeletér számolási eredményét képezzük le egy a távolban levő ernyre (távöltér).

A Hankel-transzformáció a Fourier-transzformációval analóg függvénytranszformáció, ahol a bemenő függvényt trigonometrikus ($e^{-i\omega t} = \cos \omega t - i \sin \omega t$) függvények helyett elsőfajú Bessel-függvények terében fejtjük ki.



3.8. ábra. [T1] 700 as késleltetésű kettősimpulzus keltése. (a) Elektromos térerősség és pillanatnyi félciklus, (b) idő-frekvencia analízis, (c) egyatomos válasz: teljes integrál (szürke) ill. csak a rövid trajektóriák járuléka (kék vonalkázott). (d) A propagációs eredmény: közeletér (szürke) és távöltér (kék vonalkázott). Mind az egyatomos és makroszkopikus számolás esetén 108 és 170 eV közötti felharmonikus spektrumot használtuk fel.



3.9. ábra. [T1] A 900 as késleltetésű kettősimpulzus. (a) Elektromos térerősség és pillanatnyi félciklus, (b) idő-frekvencia analízis, (c) egyatomos válasz: teljes integrál (szürke) ill. csak a rövid trajektóriák járuléka (kék vonalkázott). (d) A propagációs eredmény: közeltér (szürke) és távoltér (kék vonalkázott). Mind az egyatomos, és makroszkopikus számolás esetén 81 eV alatti felharmonikusokat szűrtük ki.

A 3.8 és 3.9 ábrák mutatják be a 700 ill. 900 as késleltetésű változatot. Különbség a korábbi esetekhez képest, hogy itt a két impulzust két külön „félciklus” hozza létre, nem a rövid és a hosszú trajektóriák. Ez nincs ellentmondásban azzal, hogy a központi hullámhossz nem a triviális esetet tükrözi (ld. a definíciót a fejezet elején 39. oldal), mert ilyen komplex impulzusok esetén a keltő tér pillanatnyi félciklusa folyamatosan változik (3.8 (a) és 3.9 (a) alábbiak). Emellett az is látszik, hogy a keltő tér a fejezet elején definiált koszinusz impulzus fogalmát kimeríti, hiszen a legnagyobb csúcsot körülvevő tér-amplitúdó maximumok kb. a legnagyobb csúcs 75%-ának értékénél vannak (3.9 (a) alábbi). A fentiekből az látszik, hogy a triviális megoldást nem annyira egyszerű definiálni és kiszűrni, ahogy ez a fejezet elején levő leírásból látszik. Végeztem számolásokat annak érdekében, hogy a kétféle keltési mechanizmus közötti határvonalat megtaláljam, ami kb. 660 as értéknél volt: ennél rövidebb késleltetésre az ugyanazon félciklus rövid/hosszú trajektóriájú megoldásai adták a két impulzust, ennél hosszabbra pedig a keltő impulzus térerősség

maximumai [T1].

Ezeknél a számolásoknál a 3.8 (c) és 3.9 (c) alábrán kék vonalkázott területtel jelenik meg csak a rövid trajektóriákat figyelembe vevő eredmény, és szürkével a teljes integrál, mint korábban. A hosszú trajektóriák leválasztása kísérletileg is könnyen megvalósítható, például a gáz fúvóka helyzetével állítható be (ld. 4.1 alfejezet), de spektrális szűrőkkel is finomhangolható [76]: a spektrális ablak nagyobb frekvenciák felé mozdításával a késleltetés csökken, a letörési harmonikusokat elérve a rövid és a hosszú trajektóriák összekeverednek⁴.

A propagációs számolás eredménye jól tükrözi vissza az általam számolt optimális egyatomos válasz eredményét: a távotérben mind a három feldolgozott eset megtartotta kettősimpulzus alakját, noha a csúcsok aránya/alakja és távolsága módosult. Így tehát megállapíthatjuk, hogy az általam javasolt és demonstrált felharmonikuseltési módszer a propagációs hatásokkal szemben is igen robusztusnak bizonyult és így jó esély kínálkozik a módszer kísérleti megvalósítására is.

3.3. Célfüggvények hatása az eredményekre, a konvergencia javítása

3.3.1. Konvergencia javítása

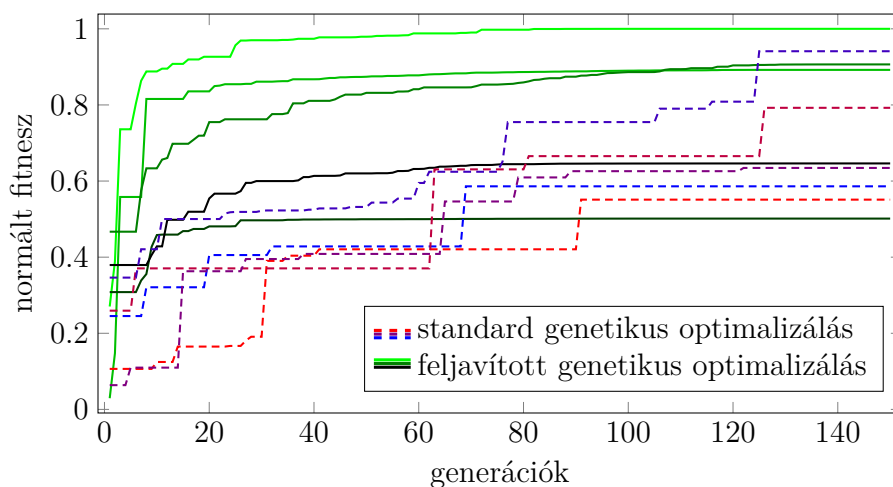
A fény szintetizátor szimuláció egyik legnagyobb kihívása az volt, hogy a paraméterek terében számos lokális csúcsot találtam, melyek a háttér szintjéhez és hullámzásához képest meredek csúcsokként emelkedtek ki. Ez onnan látszott, hogy különböző jelalakot kaptam eredményként azonos futtatásokra, és a konvergencia is meglehetősen lassú volt az először használt beállításokkal. Ezért külön vizsgálatot kellett folytatnom arra nézve, hogy miként lehet a genetikus optimalizációs módszert a felharmonikuseltési problémára optimalizálni. Az így nyert eredmények az attoszekundumos kutatói közösség számára, tetszőleges ilyen probléma esetén nagyon hasznosnak bizonyultak, ezért ezeket az optimalizáció kialakításával kapcsolatos eredményeimet külön folyóirat-publikációként közöltem [T2].

Az alapprobléma megoldására úgy változtattam a módszereken, hogy egyetlen futtatás minimális idő alatt találjon meg egy lokális maximumot, tehát sokszor tudjam futtatni a szimulációt, majd azok közül a legjobbat kiválasztani. Ehhez kritikus volt

⁴Ez a 3.5 ábrán is látszik.

a kezdeti véletlenszerű pontok számának (vagyis a kezdeti populációnak) a csökkentése (max. 50-100 pont) – hiszen a hegyes csúcsok miatt valószínűtlen, hogy a véletlenszám-generátor egy maximum közvetlen közelébe sorsol egy paraméterkombinációt.

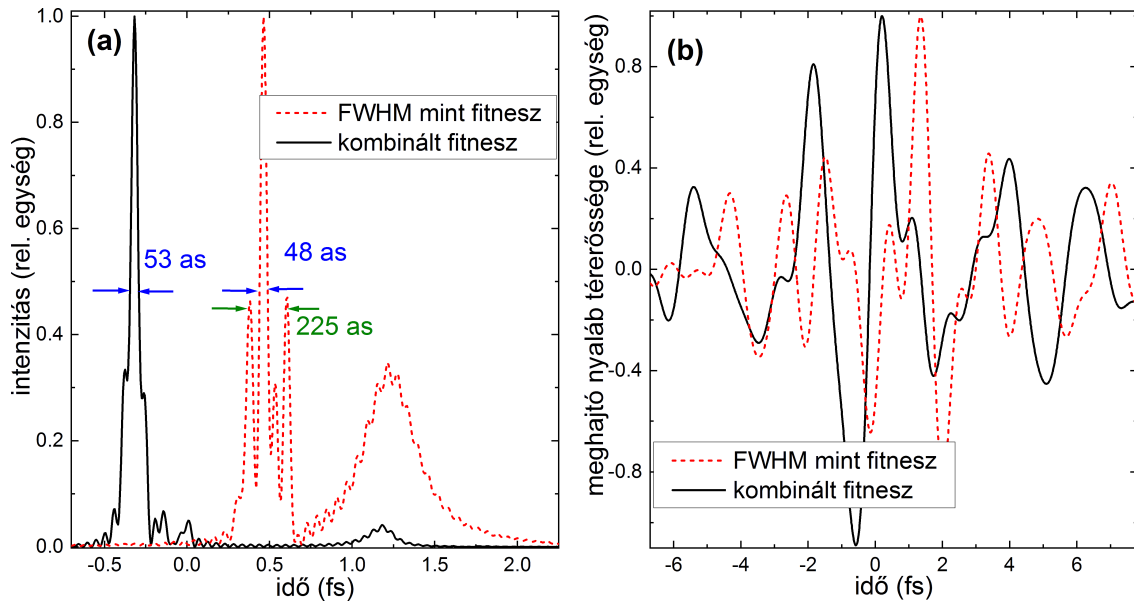
Célom volt továbbá a konvergencia felgyorsítása is. Továbbfejlesztettem a szimulációt egy dinamikus mutációkat használó kódrészlettel, amely minden lépésben kiszámolta az egyedek paramétertérben levő mértani középpontját (átlag) és szórását. A mutációkat ezen szórás, mint sugár segítségével korlátoztam, tehát az új egyedek a szülő generációtól nem távolodhattak el túlságosan, így a szórás értéke az evolúciós folyamatban csökken. Ezzel párhuzamosan a géncsere valószínűsége a kezdeti 50% értékről lecsökken, cserébe a mutáció esélye megnő, ahogy a konvergencia előrehaladtával a populáció paramétertérbeli szórása csökken. A kiválasztással együtt ez azt eredményezte, hogy a továbbfejlesztett program futtatása a korábbi verzióknál legalább háromszor gyorsabban konvergált. Ezt illusztrálja a 3.10 ábra, ahol tipikus példákön mutatom be a konvergenciát; jól alátámasztja azt is, hogy az általam kifejlesztett új módszer mennyire elősegíti azt.



3.10. ábra. [T2] A genetikus algoritmus standard és általam hatékonyabbá tett futásainak összehasonlítása. A folytonos zöld-fekete vonalakon látszik, hogy az optimalizált futtatások tipikusan 30–50 generáció alatt jutnak közel a lokális maximumhoz. A szaggatott piros-kék görbék az eredeti verzió futtatásaiból mutatnak be néhányat: látható, hogy helyenként történik egy-egy nagyobb ugrás, és még 150 generáció után sem garantált, hogy akár a csúcs közelébe érnének.

3.3.2. Célfüggvény hatása

Hasonlóan kritikusnak bizonyult a fitnessfüggvény ideális megválasztása, ezért ezt a kérdéskört is részletes vizsgálatnak vettem alá. A 3.11 ábra bemutat egy probléma esetet és annak megoldását. Ha egy rövid impulzust csak a minimális félértékszélesség (full width half maximum, FWHM) határoz meg, akkor az optimalizálás figyelmen kívül hagy mindent ami a félérték alatt van, így a genetikus futtatás során széles mellécsúcs alakulhat ki. A piros szaggatott görbén nem csak közvetlen mellécsúcsok vannak mindkét oldalon, de a lapos utóimpulzus összenergiája több, mint a középső attoszekundumosé. Ilyen eredményt a kísérleti munka során nyilvánvalóan nem szeretnénk kapni. A probléma megoldására a baloldali (fekete folytonos) görbéhez $f(0,1) \times f(0,5)$ alakú célfüggvényt minimalizáltam ahol $f(h)$ a h magasságban vett érték szélessége ($f(0,5) = \text{FWHM}$). Látható, hogy a félértékszélessége 10%-kal több, mint a 3.11(b) alábbián bemutatott esetnek, de nem hordozza annak problémáit, hanem ez valóban egy izolált attoszekundumos impulzus.



3.11. ábra. [T2] (a) A fekete görbe egy jól megválasztott fitness-függvény futás eredményét mutatja, a piros szaggatott egy hibásan megválasztott eset eredménye. Látható, hogy ha csak a félértékszélességre optimalizálunk, a félérték rövidebb, mint a több feltétellel bíró esetben, de a megjelenő melléimpulzusok miatt a piros görbe nem tekinthető izolált attoszekundumos impulzusnak, hanem csak az algoritmus egy nem megfelelő beállítás miatti műterméke. (b) a baloldali alábbián megfelelő szintetizált meghajtóterek („driver impulzusok”).

3.3.3. Legrövidebb attoimpulzusok tulajdonságai

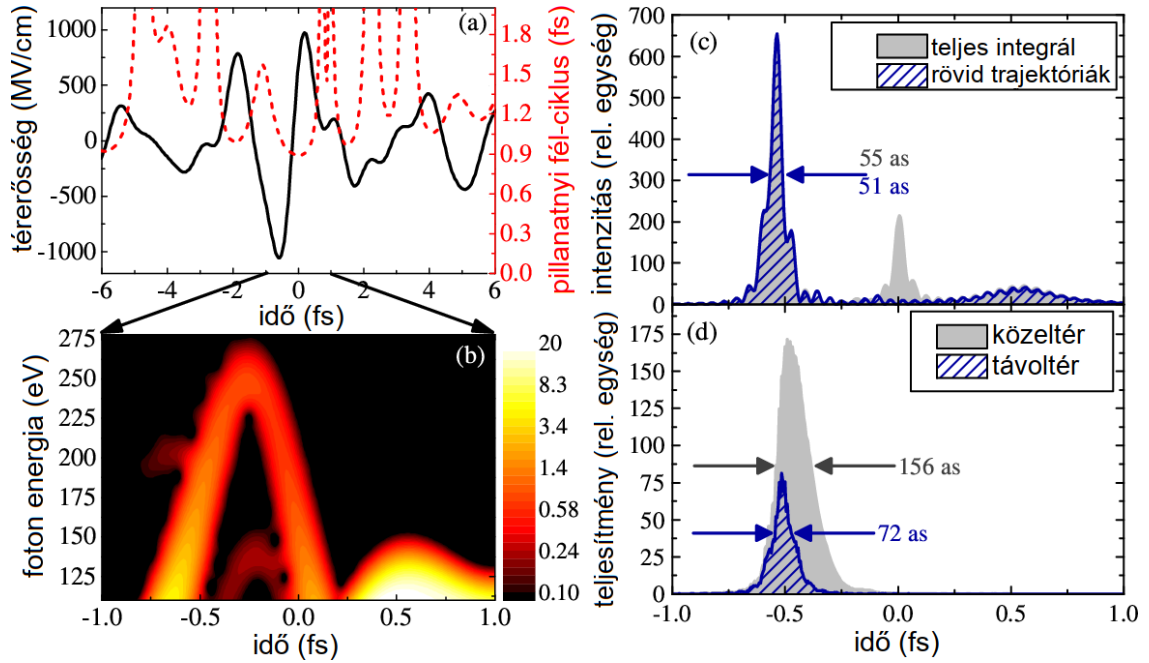
A bizonyítottan legrövidebb, kísérletileg előállított attoimpulzus időtartama 43 as [77]. Ehhez CEP stabilizált 800 nm (Ti:zafír) központi hullámhosszú impulzusokat parametrikus erősítővel 1800 nm-re konvertáltak (30 – 40 fs), majd argon gázzal töltött statikus nyomású kapillárisban spektrálisan kiszélesítették. Az akár 480 μ J energiájú impulzusokat ömlesztett kvarc ékpárral nyomták össze kevés ciklusúvá, és HHG keltésre használták.

Ezzel a módszerrel ellentétben az általam szimulált fényhullám-szintetizátor (és a korábbi csúcstartó 67 as-os impulzushosszal [78] is) frekvenciakonverzió nélkül használja fel a 800 nm-es Ti:zafír impulzust fehérfénykeltésre, közvetlenül a lézererősítő után elhelyezett, nemesgázzal töltött kapillárisban állítva elő a fehér fényt.

A cél az én esetemben továbbá nem egy rekord rövidségű attoimpulzus létrehozása volt, hanem egy részletes tanulmány arra vonatkozóan, hogy a fényhullám-szintetizátor eszközzel milyen típusú és jellemzőjű attoimpulzusok érhetőek el. Ezt azért is fontos tisztázni, hogy a megvalósíthatóság határain belül tartsuk a paramétereiket.

A Lewenstein-integrál a nagyobb energiájú keltőterre magasabb harmonikusokat biztosít, ahogy ezt el is várnánk (ld. letörési törvény: 2.3.4). Magasabb frekvenciájú komponenseket tartalmazó spektrumból jól megválasztott szűrőkkel kivágott tartomány rövidebb impulzusokat generál. Az intenzitás-skálázásnak határt szab, hogy a közegben véges mennyiségű ionizálható atom van, tehát ha túl nagy a lézertér intenzitása, akkor kiléptünk a modell érvényességi tartományából. Ennek elkerülésére a számolásban $1,5 \times 10^{15}$ W/cm²-es értéken rögzítettem a csúcshintenzitást, mely neon gázra kísérletileg 15 – 22% (az impulzus alakjától függően) körüli ionizációs arányt hoz létre; ami kísérletileg még kivitelezhető. A szintetizátor triviális hullámformájával különösebb optimalizáció nélkül 73 as időtartamú impulzust kaptam. A genetikus algoritmus futtatása ehhez képest lényegesen rövidebb, 55 as impulzushosszat eredményezett egy kisebb mellékcsúccsal. Itt is megtehető a 4.1 alfejezetben említett trajektória szeparáció (kísérletileg pl. a fúvóka helyzetének állításával egyszerűen megvalósítható). Csak rövid trajektóriákat figyelembe véve ez már csak 51 as, és a mellékcsúcs is eltűnik.

A propagációs számolással kapott makroszkopikus eredmény ugyanezzel a keltő térrel 72 as időtartamú impulzust ad a távotérben, tehát a viszonylag kis számolásigénnyel futtatható genetikus optimalizálásom ebben az esetben is robusztusnak bizonyult. A korábban használt formátumot ([T1]) a 3.12 ábra mutatja.



3.12. ábra. [T1] A rövidimpulzus optimalizáció eredménye. (a) Keltő tér és pillanatnyi félciklus, (b) idő-frekvencia analízis, (c) egyatomos válasz (Lewenstein-integrál), (d) makroszkopikus számolás neon gázban. Az attoszekundumos impulzushoz a 118 és 195 eV közötti spektrális tartományt használtam.

3.4. Attoimpulzusok központi hullámhosszának hangolása

A fényhullám-szintetizátor eszköz kapcsán felfedeztem, hogy hangolható központi hullámhosszal rendelkező attoszekundumos impulzusok keltésére is alkalmas.

3.4.1. Attoimpulzusok központi hullámhosszának hangolása spektrális szűréssel

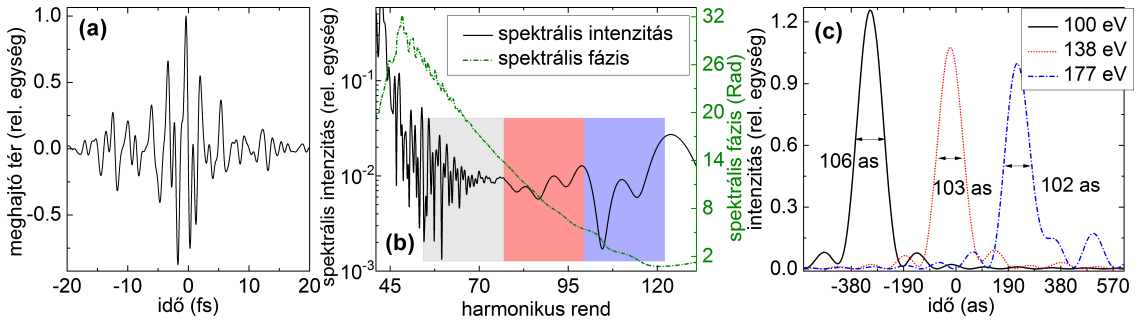
A hangolható attoszekundumos impulzusok eléréséhez a genetikus algoritmus célfüggvényét úgy határoztam meg, hogy a spektrum plató tartományára viszonylag lapos⁵ függvényt generáljon. Az eredményül kapott magasharmonikus spektrum tulajdonsága, hogy 35 eV sávszélességű spektrális szűrőt felhasználva 100 as környeki impulzusokat ad.

⁵A célfüggvény annak a spektrális intenzitástartománynak a méretét minimalizálta, amelyben a plató tartománybeli HHG spektrum elhelyezkedett (vagyis minél laposabb és spektrális fluktuációktól mentes platót alakítottam ki).

Hogy a szimuláció a megvalósíthatóságtól ne rugaszkodjon el, az irodalomban utánajártam, hogy milyen spektrális tartományt enged át egy tipikus prototípus, vagy akár kereskedelmi forgalomban kapható multiréteg XUV tükör. A cikk írásának idején már léteztek legalább 30 eV sávzélességgel rendelkező tükrök [79, 80]. Ez lett az alapja annak, hogy egy 35 eV széles ablakot használtam a spektrális szűrésre. Ez egy kísérletben úgy képzelhető el, hogy az elrendezésben egyetlen multiréteg tükröt lecserélünk, ezáltal a spektrális szűrés intervalluma és az attoimpulzus központi frekvenciája is megváltozik.

A szűrés intervallumait úgy választottam ki, hogy azok éppen összeérjenek, így a teljes tartomány 105 eV-ot fed le, háromszor egymás mellé másolva a 35 eV széles spektrális ablakot. A 3.13 ábra mutatja be az eredményeket: keltő tér, spektrum, és attoimpulzusok. Az ablakok határai tehát: [84,2 eV; 119,2 eV], [119,2 eV; 154,2 eV] és [154,2 eV; 189,2 eV].

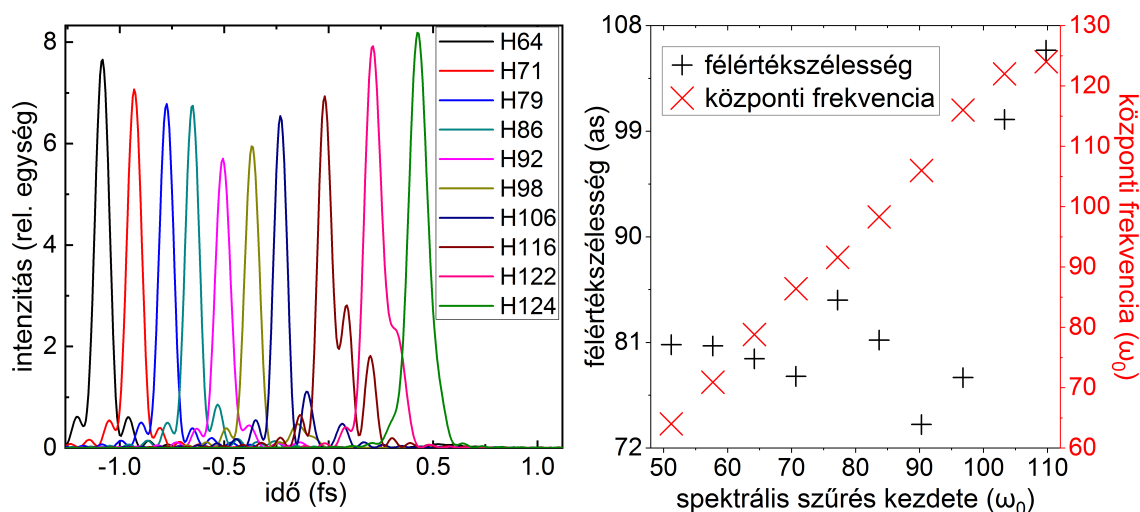
Az így kivágott spektrális ablakok központi frekvenciáját is kiszámoltam, ami közel van az ablak közepéhez, de a spektrum alakjától függő irányban 1 – 5 eV-tal eltér, pl. az első (szürke) ablakban kisebb frekvenciáknál van relatív több energia, a másik kettőnél (rózsaszín és kék) pedig nagyobb frekvenciáknál. A 3.13 ábra (b) részénél ez a logaritmikus y tengely miatt tisztán látszik.



3.13. ábra. [T2] Spektrális hangolhatósággal rendelkező attoimpulzusok a fénycső-szintetizátor kimenetével keltve. (a) a genetikai algoritmus eredményeként kapott keltőhullám, (b) XUV spektrális intenzitás és fázis, (c) a különböző ablakokhoz tartozó attoimpulzusok, balról jobbra az ablakozás sorrendjében (a jobb megkülönböztethetőség kedvéért időben eltolva).

Kitekintésként ennél szélesebb intervallumú spektrális szűrővel is megvizsgáltam ugyanezt az XUV nyálábót, és $\Delta\omega = 30\omega_0$, tehát harminc harmonikusnak megfelelő szélességű szűrőkkel próbáltam ki a 3.13 ábrán bemutatott eredményt. Ebben az esetben részletesebben fel akartam térképezni a spektrumot a korábbi három

impulzus helyett, ezért úgy jelöltem ki a szűrési intervallumokat, hogy azok át is fednek. Így összesen tíz darab, 46,5 eV szélességű intervallumot definiáltam, melyek közül az első [79,4 eV; 125,9 eV] és 10,1 eV ($6,5\omega_0$) lépésközzel következnek egymás után, az utolsó éppen [170,2 eV; 216,7 eV]. A 3.14 ábrán balról jobbra az említett sorrendben ábrázolom az attoimpulzusokat az (a) alábbián, és a félértékszélességet a (b) alábbián.

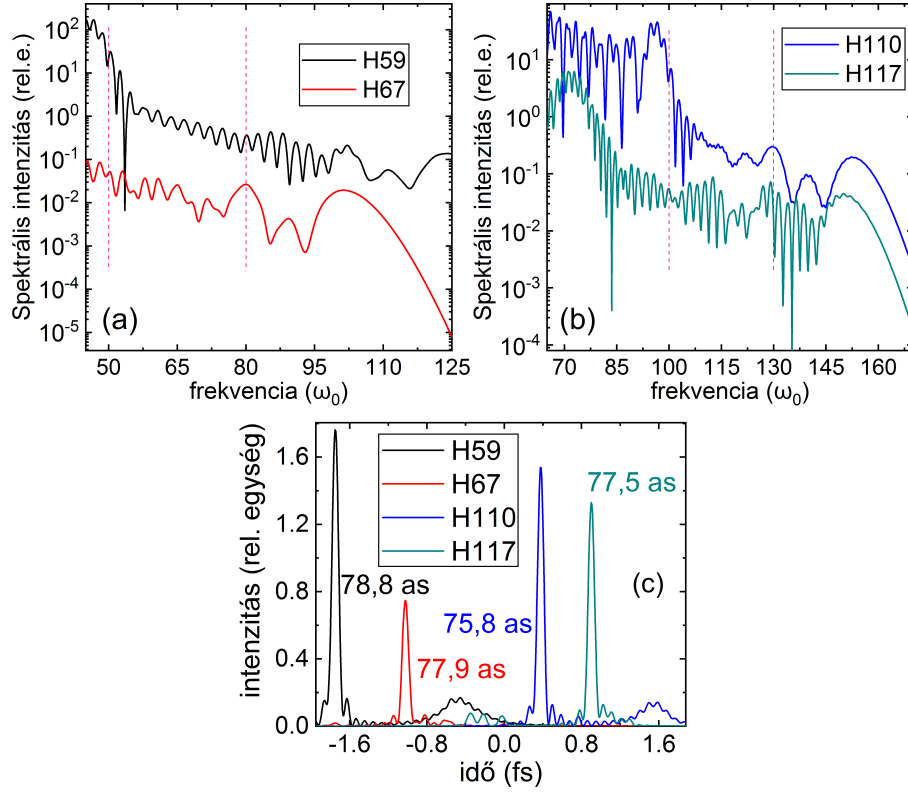


3.14. ábra. A 3.13 ábrán bemutatott XUV nyaláb spektrális szűrése $30\omega_0$ széles ablakokkal. (a) a nyert attoimpulzusok alakja (sorrend: központi frekvenciában növekvő). (b) az attoimpulzusok intenzitás-félértékszélessége és központi frekvenciája. A félértékszélesség a többihez képest szokatlanul nagy értékeket ad a legnagyobb vizsgált frekvenciákon, ezt okozhatja a letörési frekvencia, de analitikus módszerem nem volt ennek ellenőrzésére.

3.4.2. Attoimpulzusok központi hullámhosszának hangolása optimalizációval

A spektrális hangolhatóság ügyében alternatívákat is kipróbáltam. Kíváncsi voltam például, milyen eredményt ad, ha a korábbi 14 paraméterből rögzítem spektrális szűrés intervallumát kifejező 2 paramétert és csak a karok beállításához rendelt $4 \times 3 = 12$ paraméterrel futtatom az optimalizálást az izolált attoimpulzus (3.3.3 alfejezet) fitnessfüggvényével, és az előző példával megegyező spektrális szélességű ($30\omega_0$ vagy 46,5 eV) ablakkal. Az egyik érdekesség ezekkel kapcsolatban, hogy az eredményeként kapott impulzusok kb. olyan rövidek mint a csak *lapos plató tartó*

mányt célzó optimalizálás legjobb esetei. Figyelemre méltó továbbá, hogy a rögzített spektrális szűrés ellenére az optimalizálás talált olyan megoldásokat, amelyek központi hullámhossza egymástól különbözik. Ezeket a megoldásokat mutatja be a 3.15 ábra.



3.15. ábra. Rögzített spektrális szűrővel optimalizált rövidimpulzus. Az optimalizáció által kiszámolt eredmények spektruma (a) kék és zöldeskék színnel a H100–H130 intervallumon való spektrális szűréssel, (b) fekete és piros színnel a H50–H80 intervallumon. (c) a spektrumokból kapott attoimpulzusok. Látható, hogy azonos szűrési ablakkal futtatva az eredmények közti központi frekvencia eltérés akár 7 – 8 harmonikusnyi különbség is lehet. A láthatóság kedvéért az (a) és (b) alábrákon a H110 (kék) és H59 (fekete) görbét 10-es szorzóval emeltem feljebb a másik görbéhez képest.

A 3.4 alfejezet eredményeit összegezve tehát azt a következtetést vonhatjuk le, hogy a fénycsík-szintetizátor eszközzel létrehozható olyan hangolható attoszekundumos impulzus, amelynek központi hullámhossza egyszerűen, mindössze megfelelő XUV multiréteg tükrök cserélgetésével hangolható. A spektrális ablak szélességének függvénye az impulzushossz; az aktuálisan elérhető 35 eV-os ablak 100 as körüli impulzus létrehozására alkalmas, a 46 eV szélességű szűréssel pedig kb. 80 as

időtartamú impulzus kelthető.

Ez az eredmény fontos lehet olyan konkrét attoszekundumos alkalmazások megvalósításánál, ahol egy adott kísérleti berendezésben, az XUV keltésének körülményeit nem változtatva, ám mégis különböző gerjesztésekkel akarunk attoszekundumos folyamatokat vizsgálni. Emellett a fényszintetizátor paramétereinek átállításával is jelentősen hangolható a központi hullámhossz.

3.5. Összefoglalás

A 3. fejezetben bemutatam, a fényhullám-szintetizátor eszköz modellezését a Lewenstein SFA [1, 2] egyatomos válasz meghatározásával, ami a HHG egy egyszerűsített kvantummechanikai modellje. Ehhez a klasszikus elektrontrajektóriák kiszámolásával becsültem a letörési frekvenciát. A paraméterek módosításának visszacsatolásához genetikus algoritmust adaptáltam különböző problémákra, amellyel több, alapvetően különböző irányban adtam választ arra a kérdésre, hogy a fényszintetizátor kimenetével HHG-t keltve milyen tulajdonságú attoimpulzusok hozhatók létre. Ennek során több, az attoszekundumos tudományban eddig fel nem tárt lehetőséget ismertem fel és publikáltam két folyóiratcikkből, így

- hangolható késleltetésű kettősimpulzust [T1]
- különálló attoszekundumos rövidimpulzust (51 as) [T1]
- XUV multirétegtükör cseréjével hangolható központi hullámhosszú attoszekundumos impulzust [T2]

hoztam létre, valamint a központi hullámhosszt rögzített spektrális szűrés mellett, a fényszintetizátor paramétereinek változásaival is sikerült hangolhatóvá tennem. A genetikus optimalizálás algoritmusának átalakításával legalább háromszoros konvergenciagyorsulást is sikerült elérnem.

Itt nem részleteztem, további optimalizációs próbálkozásaim is voltak még pl. az attoimpulzus diszperziójának beállítására, illetve egzotikus attoszekundumos hullámformák (pl. háromszögjel, négyszögjel) előállítására. Ezen próbálkozások többségéből nem született publikálható eredmény, a fényhullám-szintetizátor sajnos nem alkalmas ilyen attoimpulzusok előállítására.

A futtatásokból végül két referált folyóiratcikk ([T1] és [T2]) született, melyekben a fent kifejtett optimalizációkat és a konvergencia gyorsítást is részletesen bemutattam; kihangsúlyozva, hogy ezek robusztusságát makroszkopikus (propagációs) számolások is jól alátámasztják.

Ezekkel az eredményeimmel bebizonyítottam, hogy egy ún. fényhullám-szintetizátor segítségével keltett felharmonikusok jól hangolhatók különböző jól kontrollált attoszekundumos impulzusok elérése érdekében. Ez az eszköz az attoszekundumos tudományterület jövőbeli fejlődési irányait is meg fogja határozni azáltal, hogy izolált attoszekundumos impulzusok, hangolható késleltetésű kettősimpulzusok és hangolható központi frekvenciájú impulzusok is egyszerűen kelthetők vele.

4. fejezet

Magasrendű felharmonikuseltés klasztereken

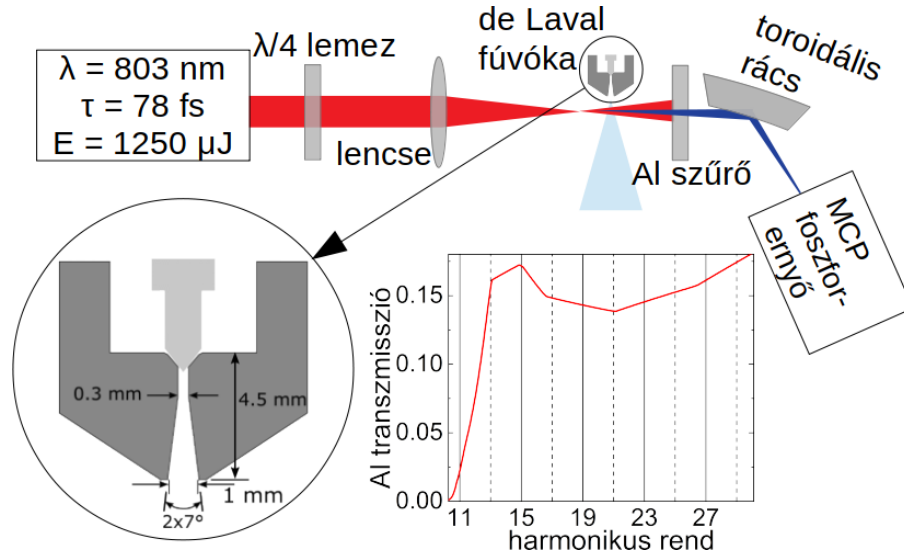
A korábbi fejezetekhez hasonlóan ez a rész is a felharmonikuseltési folyamatról szól, ezúttal kísérletileg vizsgáltam a magasharmonikus-eltést nemesgázatomokból álló klasztereken. Ez az új közeg több szempontból is érdekes, pl. sokkal nagyobb a konverziós hatások, mint monomerek esetén (ld. 2.7 alfejezet), viszont több nyitott kérdést tartogat.

Kísérleteim során arra voltam kíváncsi, hogy mi a HHG pontos mechanizmusa, ha a szokásos monomer (atomos) gáz helyett nemesgázatomokból álló klasztereket használunk. Ezt a témakört már több publikáció érintette, de ezek több ponton is ellentmondanak egymásnak, így én egy új szemszögből vizsgáltam meg a kérdést egy saját kísérleti elrendezés segítségével.

4.1. Kísérleti elrendezés

Kísérleteimhez a bevezetőben már részben leírt HHG elrendezést használtam. A regeneratív Ti:zafír erősítőből kb. 2,5 mJ energiájú, 9 mm ($1/e^2$) átmérőjű, 78 ± 2 fs intenzitás-félérték szélességű impulzusok érkeztek az elrendezéshez 1 kHz ismétlési frekvenciával, lineáris (horizontális) polarizációval. A nyaláb spektrumának központi hullámhosszát a bevezetőben (2.1.2 alfejezet) leírt módon határoztam meg, emellett spektrumra gaussi burkolót is illesztettem, ami hibahatáron belül ugyanazt az eredményt adta: 803 ± 2 nm. A nyaláb egy polarizációs elven működő attenuátoron ment keresztül, amivel tetszőleges, a bejövőnél kisebb intenzitást lehetett beállítani.

A HHG folyamat hatásfoka nem monoton függvénye a bejövő nyaláb energiájának, hanem van egy optimuma, amely érték felett a közeg telítődik¹ és az optimumnál kevesebb XUV foton keletkezik. Ezt az optimumot 1,25 mJ impulzusenergiánál találtam meg, és ezt a teljes kísérlet során igyekeztem állandó értéken tartani. Amikor az erősítőtől érkező impulzusok energiája megváltozott, az attenuátor szögét is változtatnom kellett.



4.1. ábra. [T3] A mérési elrendezés. Az infravörös nyaláb polarizációját a $\lambda/4$ lemezzel állítjuk be és a vákuumkamrában levő de Laval típusú gázfúvóka közelébe fókuszáljuk egy 30 cm-es fókusztávolságú lencsével. A nyalábból egy $0,8 \mu\text{m}$ vastag alumínium lapka segítségével szűrjük ki a megmaradt infravörös spektrumrészt és az alacsonyabb rendű felharmonikusokat, ehhez ld. a transzmisszió bemutató görbét.

A vákuumkamrába $f = 30 \text{ cm}$ -es gyűjtőlencsével fókuszáltam a nyalábot a fúvóka előtt $6 \pm 0,5 \text{ mm}$ -re. A fókuszpont és a fúvóka ezen relatív helyzete a rövid trajektóriás HHG folyamatokat helyezi előtérbe a hosszú trajektóriásokkal szemben [81]. A gázt Parker series 9 típusú szeleppel, szuperszonikus de Laval fúvókával juttattam a kamrába, aminek a specifikációja szerint a befűjt gáz sűrűség-ingadozása 5% alatt marad. Meghatároztam a kölcsönhatás helyén a csúcsintenzitást, ami $(1,42 \pm 0,22) \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ -nek adódott. Mivel a paramétereket nem változtattam a kísérlet során, a csúcsintenzitás értéke is csak minimálisan módosult a teljes kísérlet

¹A fúvóka által befűjt gáz a a beérkező fény sebességéhez képest statikusnak tekinthető, tehát az egy impulzus által ionizálható atomok száma véges.

alatt, és ez az ingadozás a fent megadott hiba értékén belül maradt.

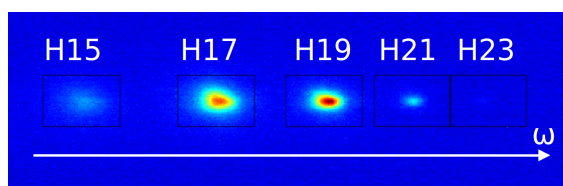
A vákuumkamrában a nyomást a turbomolekuláris szivattyúk 2×10^{-5} mbar szint alatt tartották, és a gáz befújása utáni tranzienszt is néhány másodperc alatt elszívták. Az MCP detektorra kapcsolt nagyfeszültség miatt csak 15 – 25 másodpercenként lőttem a lézerrel (és engedtem be gázt). Ez a ritka ismétlési frekvencia mérési pontonként 20 – 28 egylövéses kép felvételére adott lehetőséget. A $0,8 \mu\text{m}$ vastag alumínium szűrőt elhagyó XUV nyalábot egy holografikus toroidális rács választotta szét spektrális komponensekre és fókuszálta az MCP-foszforernyő detektorra, amit egy CCD kamera (PCO Pixelfly) alakított digitális képpé. Egy ilyen tipikus kameraképet mutat a 4.2.



4.2. ábra. Nyers kamerakép a spektrométer felvevősíkjában (a Rowland-körön, ld. 2.13 ábra), xenon gázt alkalmazva 14 bar háttérnyomással. A három legerősebb felharmonikus (balról jobbra) H17, H19 és H21. A toroidális rács vízszintes irányban bontja fel a spektrumot, erre rakódik rá a gázjet függőleges irányú kiterjedése az ábra y tengelye mentén.

A nyers kameraképet kétféle módszerrel értékeltem ki. Az egyik esetben spektrumot akartam nyerni belőle, tehát a függőleges tengely mentén integráltam a képet, így kaptam a 4.7 és 4.8 ábrákat. Ezek a dolgozatban a kiértékelési folyamatot mutatják be, de közvetlenül nem járulnak hozzá az eredményekhez. A másik módszerben a harmonikus jeleket összegeztem, tehát a kameraképekre téglalap alakú dobozokat illesztve integráltam az XUV jelet. Ezek kiértékelését a 4.3 ábrán mutatom be, majd ezen mérési pontokra illesztett Gauss-függvényt a 4.5 ábrán. A fejezet legfontosabb fogalmaként definiált ε_{th} határellipticitás értékeket ezen illesztés alapján határoztam meg.

Egy általános HHG elrendezéshez képest ebben a kísérletben két fontos és alapvető módosítást alkalmaztam (ld. 4.1): monomer gáz helyett klaszter közegen keltettem a felharmonikusokat és lineárisan polarizált keltő tér helyett általános, ellip-



4.3. ábra. A nyers kamerakép adatsorok összegzésével kapott adatsor. Látható, hogy az MCP véletlenszerű felvillanásai (mint zaj) kiátlagolódtak. A harmonikus jeleknek megfelelő foltokra téglalap alakú dobozokat tettem és ezeken belül integráltam a jelet. A dobozok méretét úgy állítottam be hogy a harmonikus jel jelentős többsége bele essen, mivel hatékony algoritmusom volt a kiértékelés során a háttér levonására. Az így nyert értékeket, mint az adott harmonikus intenzitását használtam fel a kiértékelés következő szakaszában, amit a 4.5 mutat be.

tikusan polarizált infravörös nyalábot használtam, ld. a $\lambda/4$ lemezt az elrendezésben (4.1 ábra).

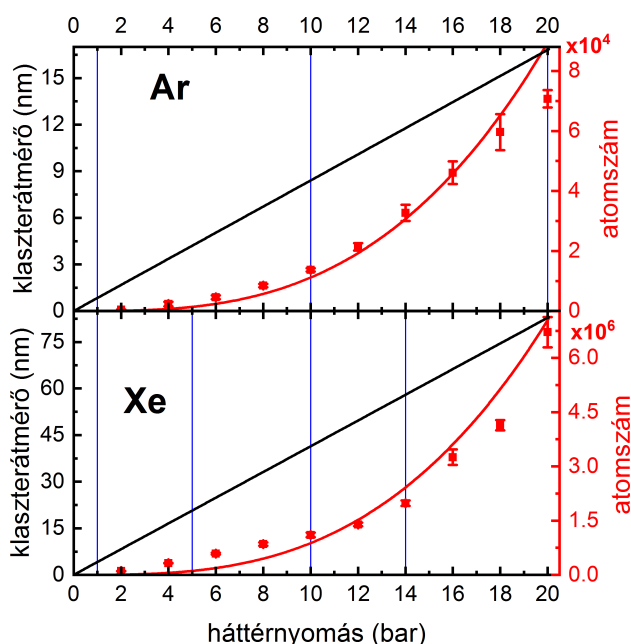
4.2. Nemesgázklaszterek előállítása

Míg a HHG-hez eredetileg egyatomos nemesgázokat (monomereket) használnak, a technika egyéb gáz halmazállapotú közegek esetén is működik, pl. molekulák [82–84]. A kísérleteimet nemesgázklaszterekkel végeztem, amelyek előállításához speciális technikát használtam.

Nagy nyomáson ($p \gg p_{\text{atm}}$) a nemesgáz atomok folyadék fázisban tárolhatók, innen egy reduktoron át engedhetők ki kisebb nyomásra. Méréseimhez argon (1 – 20 bar) és xenon (1 – 14 bar) gázt használtam. Mikor a gáz kitágul és lehűl, a gázatombok van der Waals-erőkkel egymáshoz kapcsolódnak, klaszterekbe tömörülnek, ez a fúvókában vagy annak közelében történik meg.

A klasztereken a nagy intenzitású lézertér az atomos gázhoz hasonló felharmonikus spektrumot kelt [13], így feltételezhető, hogy a már említett 3 lépéses modell (ionizáció, az elektron lézertérbeli mozgása és rekombináció) valamilyen változtatásokkal ugyan, de továbbra is érvényes. A vákuumba érve a klaszterek rövid idő után (max. néhány cm úthossz) kisebb méretű klaszterekre esnek szét, végül monomerekké bomlanak. Mivel a lézernyaláb elegendően közel (kb. 1 mm) van a fúvóka nyílásához, így a kísérlet során a HHG folyamat javarészt a klasztereken történt, ezen a távolságon belül a klaszterek szétesése még nem következik be. Ennek ellenőrzésére és

a fúvóka kalibrálására már zajlottak kísérletek ugyanezen a vákuumkamrán [85]: a klaszterek méretei Rayleigh-szórással jól becsülhetők. A mérés alapja az elv, hogy a visszaszórt fény mennyisége karakterizálja a szórófelület nagyságát, tehát a klaszter méretét. Az általam használt háttérnyomásokat és a hozzájuk rendelt klaszterméreteket a 4.4 ábra mutatja. A két tengely közti átváltáshoz egy egyszerű modellt használtam, gömb alakú klasztereket feltételezve, és a van der Waals-sugarakat felhasználva [86], melyek értéke $1,88 \text{ \AA}$ argon és $2,16 \text{ \AA}$ xenon gáz esetén. Xenon esetén a 14 bar háttérnyomású gáz is (lineáris méreteiben) kb. négyszer akkora klasztereket képez mint az argon 20 bar háttérnyomásán.



4.4. ábra. [T3] A mérés során használt háttérnyomások, és a hozzájuk rendelt klaszterméreteket. Lineáris méret (klaszterátmérő, fekete tengely és egyenes vonal, baloldalt), atomszám (piros tengely és mérési pontsorozat, jobboldalt).

4.3. Polarizáció és határellipticitás

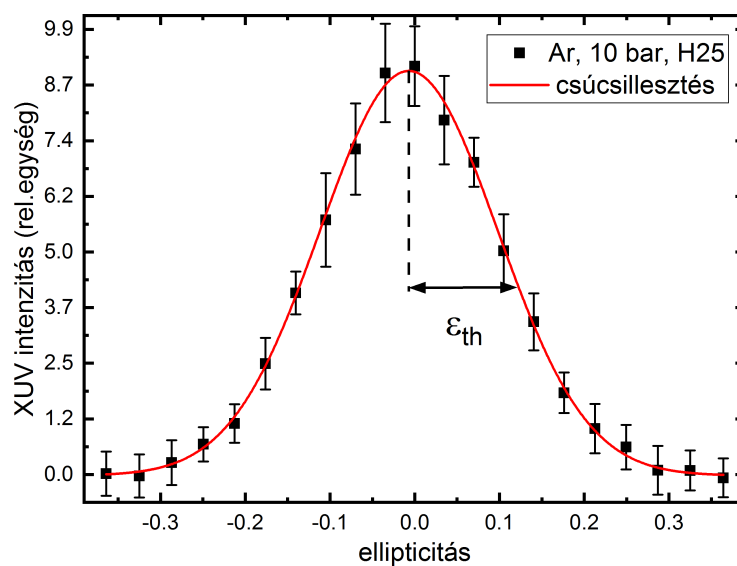
A HHG elméleti modelljéből tudjuk, hogy cirkuláris polarizáció esetén az elektron az ionhoz való visszatérésének elhanyagolhatóan kicsi a valószínűsége, így felharmonikus XUV sugárzás sem keletkezik. Az elektront klasszikus részecskeként tekintve azt a következtetést vonhatnánk le, hogy csak lineáris polarizáció (vagy ehhez hasonlóan kis ellipticitás) kelthetne felharmonikusokat, egyéb esetekben az elektron

nem ütközne az ionnal (vö. 4. megjegyzés). A kvantummechanika szerint azonban az elektron hullámcsomagként szétfolyik, és ha az oszcilláló külső tér miatt visszatérő hullámcsomag térfogatában átfed az ionnal, akkor kisebb valószínűséggel ugyan, de kelthető XUV fény nem csak lineárisan polarizált infravörös impulzussal is.

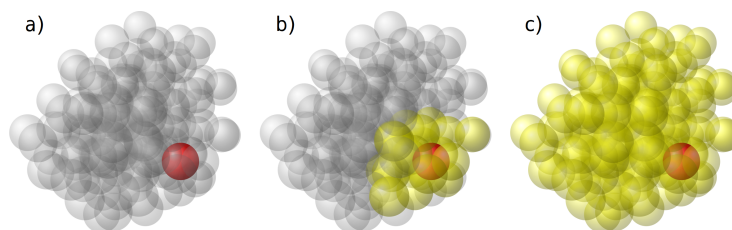
A kísérleteim során a $\lambda/4$ -es lemez a keltőimpulzus ellipticitását változtatja folytonosan lineáristól cirkuláris polarizációig és így tetszőleges mértékben elliptikusan polarizált fény beállítható a lemez forgatásával. Adott beállítási szögnél a negyedhullám-lemez a polarizációt nem változtatja, nevezzük ezt 0° -nak. A lemezt forgatva a polarizáció ellipticitásában 90° -os periodicitást kapunk. Ha a bejövő fény (keltő tér) lineárisan polarizált, akkor éppen 45° -os állásnál fordul át cirkulárisba. Egy általános, elliptikusan polarizált fény esetén ellipticitásnak hívják az ellipszis két főtengelyének arányát, tehát az elektromos tér azon paraméterét, ami a két, egymásra merőleges főtengely (mint amplitúdó) hányadosaként adódik. A fenti definícióból következik, hogy ez a $\lambda/4$ lemez φ szögéből $\arctg(\varphi)$ módon számolható, lineárisan poláros fényre az ellipticitás értéke 0, míg cirkuláris polarizáció esetén 1.

Az említett kvantummechanikai modellből az is kimutatható, hogy az ellipticitás növelésével (lineáris polarizációtól cirkuláris felé haladva) a hullámcsomag és az ion térfogata egyre kevésbé fed át, így a keltett XUV intenzitás csökken. Ezt a lecsengést korábbi kutatások [87–89] a határellipticitással (threshold ellipticity, ε_{th}), vagyis a félértékszélesség felével jellemezték (ld. 4.5 ábra), vagy ennek reciprokok mennyiségével (β paraméter) [13]. A következő fejezetben az általam elvégzett határellipticitás mérés kiértékelt eredményét mutatom be, amelyet az irodalmi adatoknál jóval szélesebb paramétertartományban végeztem el, így sokkal általánosabb következtetéseket is le tudtam vonni.

Kísérleteim során arra a kérdésre kerestem a választ, hogy klaszterek ionizációja esetén delokalizálódhat-e a töltésállapot az ion környezetében, vagy akár a teljes klaszteren. Ha feltételezzük, hogy a töltés delokalizálódik (4.6 ábra), tehát a visszaérkező elektron a monomerhez képest lényegesen nagyobb térfogatban rekombinálódhat, azt várhatnánk, hogy a keltő tér ellipticitásának függvényében az XUV intenzitás lassabban cseng le, tehát a határellipticitás növekszik nagyobb klaszterek használata esetén.



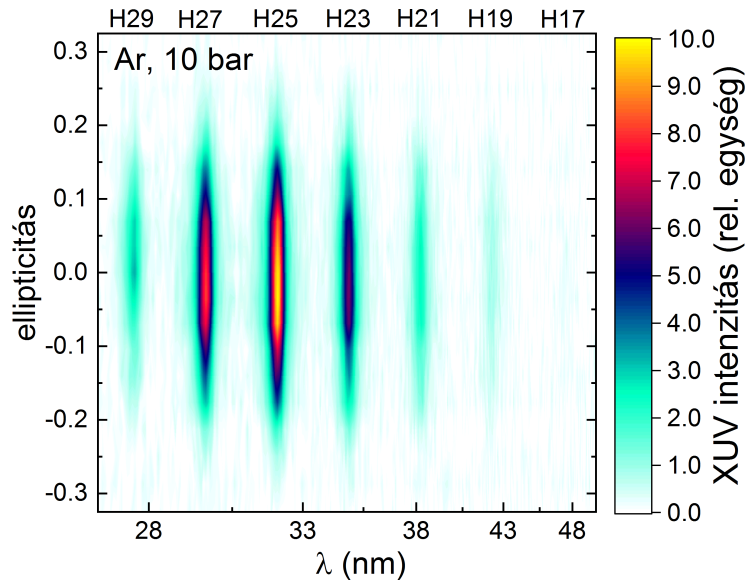
4.5. ábra. [T3] Az XUV jel lecsengése a keltő tér ellipticitásának függvényében. A mért adatokra Gauss-görbét illesztettem. Az ábrán jelölt ε_{th} határellipticitás a félértékszélesség fele.



4.6. ábra. A [13] publikáció alapján bemutatom a lehetséges rekombinációs lehetőségeket. a) Az elektron csak az eredeti, ún. „szülőatomon” rekombinálódik („atom-to-itself recollision”). b) A töltésállapot delokalizálódik, ezért nagyobb a rekombinációnál szóba jövő térfogat az elektron visszatérésekor („atom-to-neighbour”). c) A töltésállapot a teljes klaszterre delokalizálódik, akár cirkuláris polarizációval is kelthetők felharmonikusok („cluster-to-itself recollision”).

4.4. Eredmények

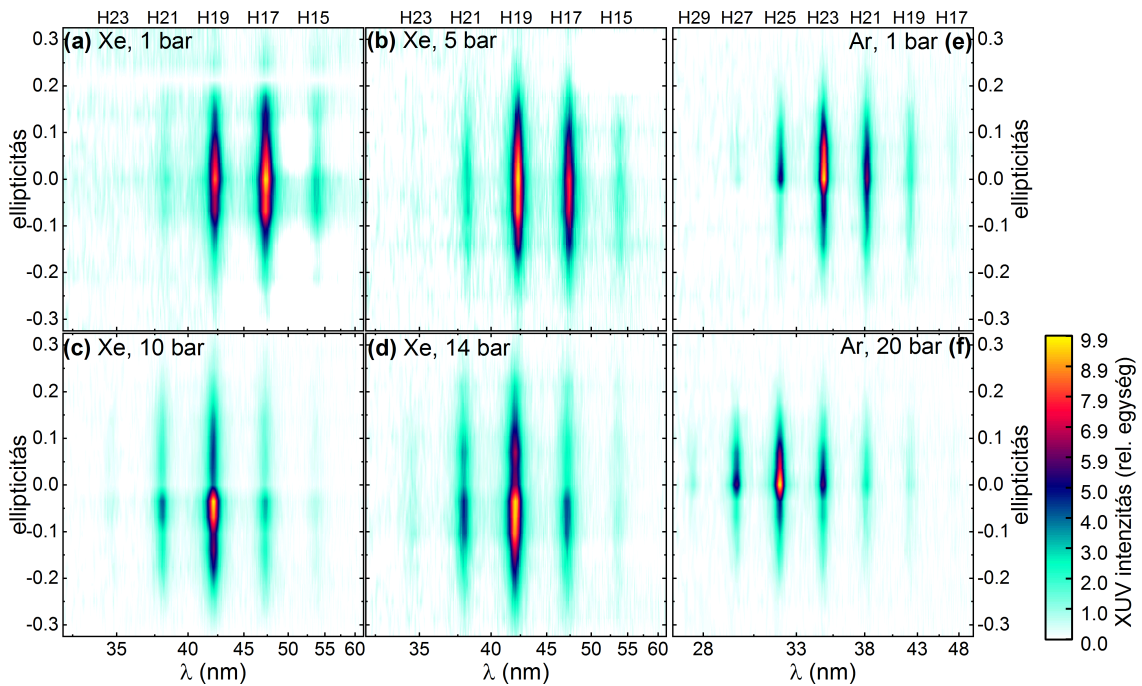
Az ellipticitásfüggésre vonatkozó kísérletet Xe és Ar gázokra végeztem el, a 4.4 ábrán jelzett háttérnyomásokra. A 4.7 ábra ezek közül egyet mutat be: Ar, 10 bar háttérnyomás. A vízszintes tengely az XUV hullámhossza (spektrum), a függőleges a keltő tér ellipticitása, a színskála pedig a spektrális intenzitásnak felel meg. Ezen ábra metszete a 25. harmonikusnál a 4.5 ábra. Látható, hogy a többi harmonikus esetén is az ellipticitás mindkét irányában lecseng a jel (ahogy ezt az elméleti háttér alapján várnánk).



4.7. ábra. [T3] Felharmonikus spektrumok az ellipticitás függvényében. Ez az ábra úgy készült a nyers kameraképből, hogy csak a 4.2 ábra függőleges irányában integráltam, így vízszintes irányban (itt a hullámhossz skála) a nyers kameraképpel azonos a felbontása. Minden detektált felharmonikus lecseng az ellipticitás függvényében, ezekre külön illesztettem Gauss-függvényt, hogy meghatározhassam a határellipticitást.

A fenti mérést és kiértékelést több gáz-háttérnyomás kombinációra is elvégeztem, az összes ilyen adatsort a 4.8 ábrán mutatom be. Az ábrán jól látszik, hogy a letörési frekvencia (cutoff) nem ugyanaz a különböző nyomások esetén ugyanarra a gázra. HHG esetén klasszikus megfontolásokból is levezethető az a kísérletek által is jól igazolt összefüggés [36] ami a felharmonikusok letörési frekvenciájára ad becslést: $E_c = I_P + 3,17U_p$, ahol I_P a leggyengébben kötött elektron ionizációs potenciálja az atomban és U_p a ponderomotoros potenciál (2.7). Ezen mérés esetén ezt

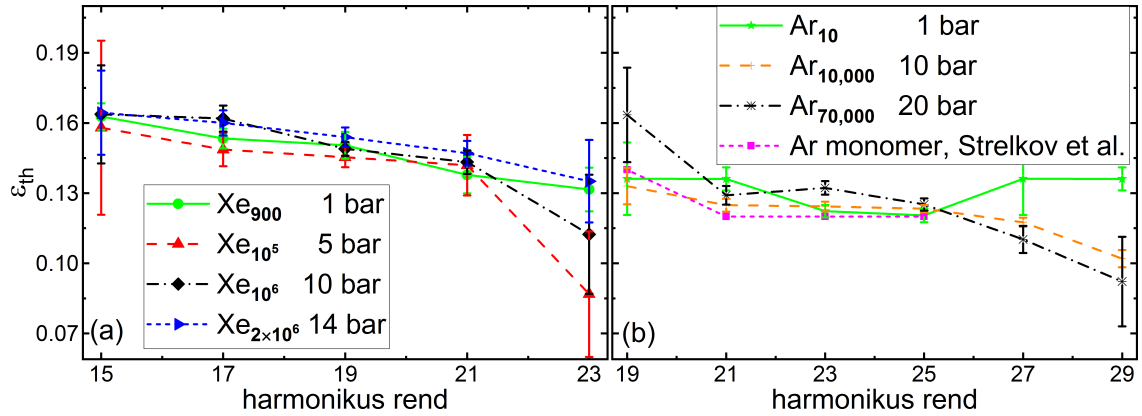
hullámhosszra átszámolva a $\lambda_c(\text{Ar}) = 29,1 \text{ nm}$ és $\lambda_c(\text{Xe}) = 31,8 \text{ nm}$ értékeket kapjuk. A 4.7 és a 4.8 ábrák azt mutatják, hogy az általam mért spektrumok letörési frekvenciája ezt megközelíti, de helyenként néhány nm-rel nagyobb hullámhossznál található a letörés. Ez az eltérés a fázisillesztéssel magyarázható: a különböző felharmonikusok frekvenciáján a törésmutatók különböznek egymástól, így az alapharmonikus és a felharmonikusok közti fázisillesztés egyes tagjai is ($\Delta k_{\text{diszperzió}}$ és Δk_{plazma}) különböznek. Ennek eredménye, hogy mindegyik harmonikushoz más-más erősítési faktorok tartoznak attól függően, hogy mennyire konstruktív a különböző térbeli pontokban keletkezett XUV fotonok interferenciája.



4.8. ábra. [T3] XUV intenzitás a hullámhossz és az ellipticitás függvényében a többi mérési adatsorra, amely Xe és Ar különböző háttérnyomásokon (vagyis különböző klaszterméreteknél) mért adatait tartalmazza.

A 4.7 és a 4.8 ábrák megfelelő kiértékelése, az illesztések elvégzése után a határellipticitás értékeket összefoglaló eredményt a 4.9 ábra mutatja, melyben az egyes felharmonikus rendekre mért határellipticitásokat ábrázolom minden egyes, általam vizsgált klaszterméretre.

A 4.9 ábra bemutatja, hogy a határellipticitás értékek 0,8 nm-es klasztermérettől (≈ 11 atom, Ar, 1 bar) 58 nm-ig ($\approx 2,4 \times 10^6$ atom, Xe, 14 bar) hibahatáron belül gyakorlatilag megegyeznek. A mérés eredménye tehát, hogy (lineáris méretben) két



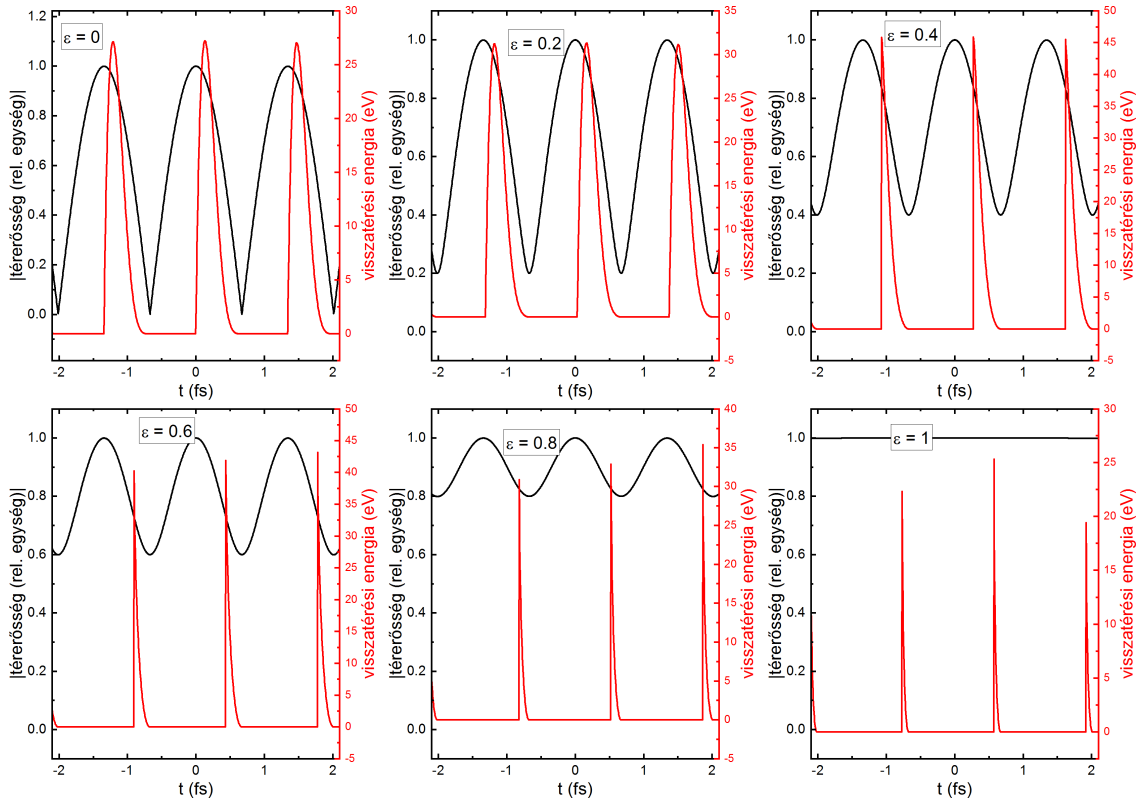
4.9. ábra. [T3] ε_{th} határellipticitás értékek a harmonikus rend függvényében az összes felharmonikus rendre. Az összehasonlítás kedvéért a (b) alábrán egy nemesgáz monomer mérési eredményét is bemutatom, amelyet a szakirodalomból nyertem [87].

nagyságrenden átívelő klaszterméret skálán sem látunk különbséget ε_{th} értékében. Ebből azt a következtetést vonhatjuk le, hogy a 4.6 ábrán bemutatott rekombinációra alkalmas térfogat nem növekszik, vagyis csak az eredeti atomon rekombinálódhat az elektron, nem delokalizálódik a töltés.

A kísérleti eredmények és a fenti következtetés alátámasztására felállítottunk egy egyszerű, klasszikus trajektóriaelemzésen alapuló modellt is, melynek numerikus megvalósítását Rácz Péter kollégám meglévő programkódjának átalakításával végezte el [T3].

A kísérlet körülményeinek megfelelő lézertérlet ($1,4 \times 10^{14}$ W/cm² csúcshintenzitás, 78 fs impulzushossz) feltételezve klasszikus elektrontrajektóriákat határozott meg, vizsgálva, hogy mekkora (klaszter)térfogat esetén tér vissza az elektron (vagyis lehetséges egyáltalán a rekombináció). Amennyiben a szülő atomnak megfelelő térfogategységbe visszaér, úgy ezt az esetet „atom-to-itself” visszatérésként regisztráljuk. Ha ezen kívüli, de a klaszterméretnek megfelelő térfogatba ér vissza, az „cluster-to-itself” visszatérést regisztrálunk. Minden más esetet (például a nulla energiájú visszatérő elektron, illetve amikor a túl nagy ellipticitás miatt a visszatérő elektron elkerüli a klasztert) ugyanúgy kezelünk a továbbiakban: ezek az elektronok nem rekombinálnak. Az „atom-to-neighbour” kategória itt nincs megkülönböztetve. A 4.10 ábra egy 4,14 nm átmérőjű klaszter esetére (4.4 ábra Xe, 1 bar) mutatja a visszatérési idő függvényében az elektromos térerősség abszolútértékét és az elektron visszatérési energiáját hat különböző ellipticitás értékre lineáristól cirkuláris

polarizációig.



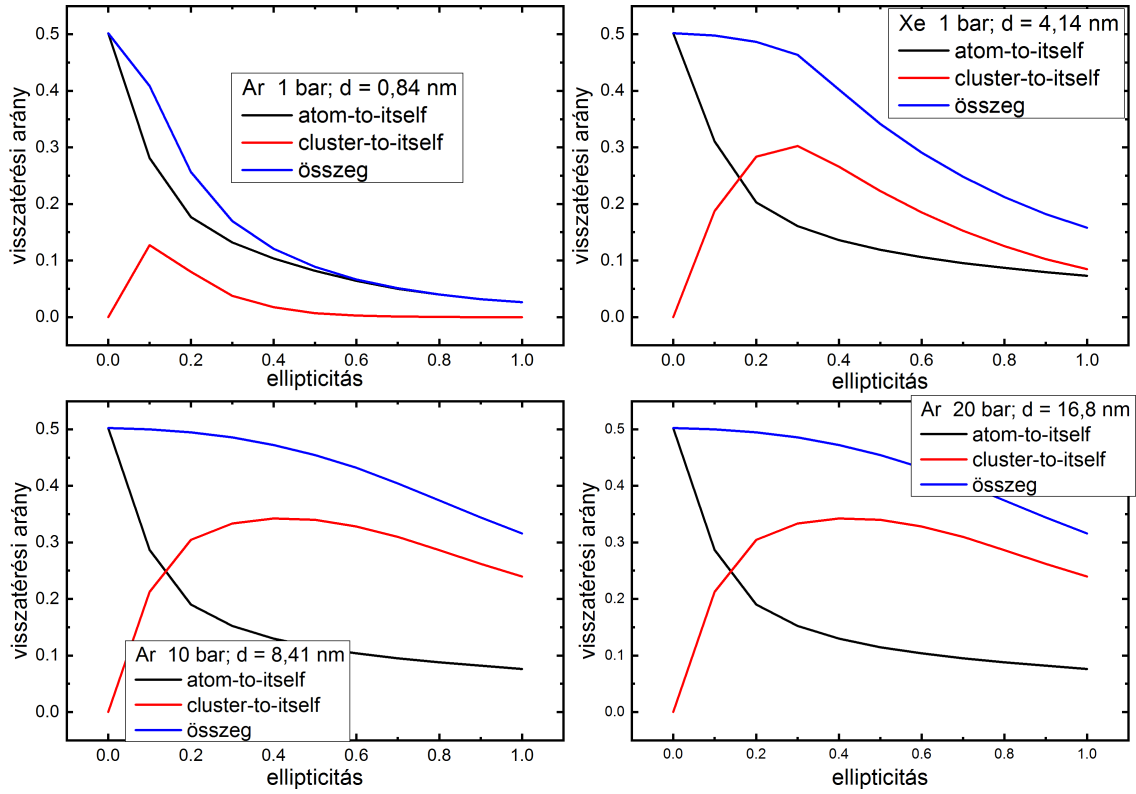
4.10. ábra. [T3] Visszatérési energia – visszatérési idő grafikonok különböző ellipticitásokra. A baloldali (fekete) tengelyen az elektromos térerősség abszolútértéke. A számolás xenon gáz 1 bar háttérnyomású atomjára készült ($d = 4,1$ nm), a kísérleti elrendezésben leírt elektromos teret feltételezve ($1,42$ W/cm² csúcshintenzitás és 78 ± 2 fs intenzitás félértékszélesség

A 4.10 ábrán a nem visszatérő elektronok nulla visszatérési energiával vannak ábrázolva. Ez alapján az említett két kategóriába oszthatók az elektronok, melynek kiértékelését négy különböző klaszterméretre a 4.11 ábra mutatja be. A két ábrából 0,01-es ellipticitású felbontással videót is készítettem, mely a [T3] kiegészítő anyagaként tekinthető meg online².

Az eredményeken látszik, hogy a különböző időpillanatokban emittált elektronok közül a visszatérő elektronok aránya lecseng az ellipticitás függvényében, ahogy ez elvárható. A számolás a határellipticitás értékére is ad egy durva becslést, ez az „atom-to-itself” görbék félértékszélessége alapján kb. 0,15; ami a mérési eredménnyel

²[T3] Supplementary material, Visualization 1: <https://tinyurl.com/clusterHHGvisualization>

is jól egybevágh. A „cluster-to-itself” rekombináció (amennyiben létezik ilyen) félértékszélességét vizsgálva ennél sokkal nagyobb értékeket kapunk, már 8 nm-es klaszterméretre $\varepsilon_{th} = 1$ érték adódik, ami minden kísérletem eredményének ellentmond. Ha lenne ilyen mechanizmus, a határellipticitás értékek jelentős kitolódását kellene észlelni már kb. 4 nm-es klasztermérettől a 4.6 ábra alapján. Ez az egyszerű modell, összevetve a kísérleti eredményekkel azt támasztja alá, hogy a klaszteres HHG esetén rekombináció csak azzal az ionnal történhet, amelyből az elektron kilépett, és a töltés a visszatérési idő alatt nem delokalizálódik.



4.11. ábra. [T3] Visszatérő elektronok aránya a szülő atomhoz (fekete), a klaszter térfogatába (piros), ill. ezek összege az impulzus ellipticitásának függvényében különböző klaszterméretekre.

Mivel az általam használt fúvókából érkező lehetséges legkisebb karakterisztikus klaszterméret is kb. 11 atom, monomerekre csak a saját mérésem segítségével nem tudunk állítani semmit. Adataimat a szakirodalomból nyert adattal [87] összehasonlítva azonban azt vehetjük észre, hogy a kiértékelt határellipticitás értékek nem csak egymással, de az idézett, monomereket felhasználó mérésrel is hibahatá-

ron belül megegyeznek, valamint ezt az eredményt a fent bemutatott szimulációs eredmények is jól alátámasztják.

Mindezek alapján levonhatjuk a következtetést, hogy az effektív térfogat, ahol az elektron rekombinálódhat **nem** nő meg, tehát nem látszik, hogy a töltésállapot delokalizálna. Ebből az következik, hogy a már említett lehetséges folyamatok közül az eredeti „szülő” atomon való (atom-to-itself) rekombináció a mérvadó.

Így ezzel a kísérlettel a szakirodalomban található, sokszor ellentmondásos eredményekre és predikciókra adtam választ, széles paramétertartományban fekvő felharmonikusokra és klaszterméretekre, két különböző gázra. Mindez azt mutatja, hogy a következtetéseim általánosan is igazak a klasztereken végzett felharmonikuskeléssel kapcsolatban.

Kitekintésként, érdekes lenne ugyanezt a kísérletet fém vagy félvezető nanogömbökre is megvizsgálni, ahol valószínűleg a delokalizáció könnyebben létrejöhet és így a határellipticitás értéke jelentősen megnövelhető [90].

Tézisek

A dolgozatomban bemutatott új tudományos eredményeket az alábbiakban foglalom össze:

- 1** Elkészítettem az ún. fényhullám-szintetizátor eszköz modelljét azért, hogy megvizsgáljam annak alkalmasságát attoszekundumos impulzusok keltésére. A vizsgálat ebben az esetben 14 dimenziós paraméterterben történő optimalizációt jelent, amelyet saját fejlesztésű genetikus algoritmussal végeztem el. Ennek során a magasharmonikus-keltési folyamat által keltett XUV sugárzást sikerült optimalizálnom, és bebizonyítottam, hogy a vizsgált kísérleti eszköz alkalmas hangolható késleltetésű kettős attoimpulzus keltésére. **[T1]**
- 2** A genetikus algoritmus továbbfejlesztésével létrehoztam egy olyan, kimondottan a magasrendű felharmonikus-keltésre optimalizált eljárást, amelynek a konvergenciája legalább háromszor gyorsabb a standard algoritmusnál, továbbá bevezettem olyan új, nem-triviális célfüggvényeket, amelyek kimondottan a legrövidebb izolált attoszekundumos impulzus előállításához vezetnek. Ezek felhasználásával megadtam a fényhullám-szintetizátor által létrehozható legrövidebb izolált attoszekundumos impulzusok időtartamát és várható tulajdonságait. **[T2]**
- 3** Bebizonyítottam, hogy egy fényhullám-szintetizátor segítségével olyan széles XUV spektrum is létrehozható, amelyen megfelelő spektrális szűrést alkalmazva hangolható attoimpulzust lehet előállítani a 100-177 eV tartományba eső központi hullámhosszakkal. **[T2]**
- 4** Doktoranduszi munkám kísérleti részeként nemesgáz klasztereken vizsgáltam a magasrendű felharmonikus-keltés mechanizmusait. A keltő tér (infravörös lézerimpulzus) polarizációs ellipticitásának függvényében meghatároztam az

XUV intenzitás lecsengését, különböző klaszterméreteken esetén. Ezen mérési adatok analízisével megmutattam, hogy az elektron kilépése után a klaszteren maradt pozitív töltés nem delokalizálódik a rekombinációs időtartam alatt, így a klaszterhez visszatérő elektron csak ugyanazon az atomon rekombinálódhat, ahonnan kilépett. [T3]

Tézispontokhoz kapcsolódó publikációk

[T1] E. Balogh*, B. Bódi*, V. Tosa, E. Goulielmakis, K. Varjú, and P. Dombi, "*Genetic optimization of attosecond-pulse generation in light-field synthesizers*," Phys. Rev. A **90**, 023855 (2014).

*A két szerző egyenlő mértékben járult hozzá

[T2] B. Bódi, E. Balogh, V. Tosa, E. Goulielmakis, K. Varjú, and P. Dombi, "*Attosecond pulse generation with an optimization loop in a light-field-synthesizer*," Opt. Express **24**, 21957 (2016).

[T3] B. Bódi, M. Aladi, P. Rácz, I. B. Földes, and P. Dombi, "*High harmonic generation on noble gas clusters*," Opt. Express **27**, 26721 (2019).

További saját folyóirat publikációk

[P1] P. Dombi, P. Rácz, and B. Bódi, "*Surface plasmon enhanced electron acceleration with few-cycle laser pulses*," Laser Part. Beams **27**, 291 (2009).

[P2] N. Tsatrafyllis, B. Bergues, H. Schroeder, L. Veisz, E. Skantzakis, D. Gray, B. Bódi, S. Kühn, G. D. Tsakiris, D. Charalambidis, and P. Tzallas, "*The ion microscope as a tool for quantitative measurements in the extreme ultraviolet*," Sci. Rep **6** 21556 (2016).

[P3] A. Nayak, I Orfanos, I Makos, M. Dumergue, S. Kühn, E. Skantzakis, B. Bódi, K. Varjú, C. Kalpouzos, H. I. B. Banks, A. Emmanouilidou, D. Charalambidis, and P. Tzallas, "*Multiple ionization of argon via multi-XUV-photon absorption induced by 20-GW high-order harmonic laser pulses*," Phys. Rev. A **98** 023426 (2018).

-
- [P4] P. A. Carpeggiani, B. Bódi, E. S. Skantzakis, D. Charalambidis, P. Tzallas, M. Arnold, L. Chipperfield, J. W. G. Tisch, J. P. Marangos and A. Zair, "*Temporal characterization of high harmonics emitted from the long quantum path*," New J. Phys, beküldésre előkészítve (2020).

Köszönetnyilvánítás

Hálás vagyok tanáraimnak, hogy megadták ehhez a pályához az indító lökést, külön kiemelve Zsigri Ferencet és Székely Pétert. Hálás vagyok a témavezetőmnek, Dombi Péternek, aki a nehezebb pillanataimban is támogatta a tudományos karrieremet. Hálás vagyok a családomnak, barátaimnak és kollégáimnak segítségért, unszolásért, inspirációért, motivációért, utóbbiak közül külön kiemelve Rácz Pétert, Aladi Márkot és Balogh Imrét. Hálás vagyok Δημήτρης Χαλαμπίδηςnek és Πάρις Τζάλλαςnak a krétai kutatói tapasztalataim támogatásáért. Hálás vagyok a házi-bírálóimnak, Barna Imrének és Földi Péternek a dolgozat alapos átnézéséért. Hálás vagyok az NKFIH-nak a kutatócsoport támogatásáért a VEKOP-2.3.2-16-2017-00015 és 2018-1.2.1-NKP-2018-00012 projekteken. Hálás vagyok a Magyar Tudományos Akadémiának a fiatal kutatói ösztöndíjért.

Irodalomjegyzék

- ¹M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, et al., *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
- ²M. Lewenstein, P. Salières, and A. L’Huillier, *Phys. Rev. A* **52**, 4747 (1995).
- ³R. W. Boyd and D. Prato, *Nonlinear Optics* (Elsevier Science, 2008).
- ⁴P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, et al., *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127 (1979).
- ⁵P. Tzallas, E. Skantzakis, C. Kalpouzos, et al., *Nat. Phys* **3**, 846 (2007).
- ⁶M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, et al., *Nature* **414**, 509 (2001).
- ⁷M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze, et al., *Nature* **446**, 627 (2007).
- ⁸E. Goulielmakis, Z. Loh, A. Wirth, et al., *Nature* **466**, 739–U7 (2010).
- ⁹A. Wirth, M. T. Hassan, I. Grguraš, et al., *Science* **334**, 195 (2011).
- ¹⁰C. Vozzi, M. Nisoli, J.-P. Caumes, et al., *Appl. Phys. Lett* **86**, 111121 (2005).
- ¹¹M. Aladi, I. Márton, P. Rácz, et al., *High Power Laser Sci. Eng.* **2**, e32 (2014).
- ¹²L. Feng and H. Liu, *Phys. Plasmas* **22**, 013107 (2015).
- ¹³H. Ruf, C. Handschin, R. Cireasa, et al., *Phys. Rev. Lett.* **110**, 083902 (2013).
- ¹⁴P. F. Moulton, *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 125 (1986).
- ¹⁵P. Albers, E. Stark, and G. Huber, *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 134 (1986).
- ¹⁶M. T. Hassan, A. Wirth, I. Grguraš, et al., *Rev. Sci. Instr.* **83**, 111301 (2012).
- ¹⁷M. T. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, et al., *Nature* **530**, 66 (2016).
- ¹⁸H. Hertz, *Annalen der Physik* **267**, 421 (1887).
- ¹⁹A. Einstein, *Annalen der Physik* **322**, 891 (1905).
- ²⁰S. L. Chin and P. Lambropoulos, *Multiphoton Ionization of Atoms* (Academic Press, 1984).

- ²¹H. G. Muller, H. B. V. van den Heuvel, P. Agostini, et al., *Phys. Rev. Lett.* **60**, 565 (1988).
- ²²T. Brabec, *Strong field laser physics*, vol. 1 (Springer, 2009).
- ²³M. Ferray, A. L. Huillier, X. F. Li, et al., *J. Phys. B* **21**, L31 (1988).
- ²⁴G. Farkas and C. Tóth, *Phys. Lett. A* **168**, 447 (1992).
- ²⁵P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- ²⁶K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, et al., *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1599 (1993).
- ²⁷P. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, et al., *Phys. Rev. A* **53**, 1725 (1996).
- ²⁸M. F. Ciappina, S. S. Acimovic, T. Shaaran, et al., *Opt. Express* **20**, 26261 (2012).
- ²⁹S. Borbély, G. Z. Kiss, and L Nagy, *Cent. Eur. J. Phys.* **8**, 249 (2010).
- ³⁰X. Chu and G. C. Groenenboom, *Phys. Rev. A* **85**, 053402 (2012).
- ³¹J. A. Pérez-Hernández, L. Roso, and L. Plaja, *Opt. Express* **17**, 9891 (2009).
- ³²J. A. Pérez-Hernández, L. Roso, and L. Plaja, *Laser Phys.* **19**, 1581 (2009).
- ³³J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, et al., *Phys. Rev. A* **66**, 021801 (2002).
- ³⁴V. M. Gkortsas, S. Bhardwaj, E. L. Falcão Filho, et al., *J. Phys. B* **44**, 045601 (2011).
- ³⁵E. Skantzakis, P. Tzallas, J. Kruse, et al., *Opt. Lett.* **34**, 1732 (2009).
- ³⁶J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3535 (1992).
- ³⁷G. Cirmi, C. Lai, E. Granados, et al., *J. Phys. B* **45**, 205601 (2012).
- ³⁸H. Sun, P. Huang, Y. Tzeng, et al., *Optica* **4**, 976 (2017).
- ³⁹P. Balcou, A. S. Dederichs, M. B. Gaarde, et al., *J. Phys. B* **32**, 2973 (1999).
- ⁴⁰E. Constant, D. Garzella, P. Breger, et al., *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1668 (1999).
- ⁴¹P. Rudawski, C. M. Heyl, F. Brizuela, et al., *Rev. Sci. Instrum* **84**, 073103 (2013).
- ⁴²J. Seres, V. S. Yakovlev, E. Seres, et al., *Nat. Phys* **3**, 878 (2007).
- ⁴³V. Tosa, V. S. Yakovlev, and F. Krausz, *New J. Phys* **10**, 025016 (2008).
- ⁴⁴A. Nayak, I. Orfanos, I. Makos, et al., *Phys. Rev. A* **98**, 023426 (2018).
- ⁴⁵E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 053904 (2007).

- ⁴⁶T. Auguste, B. Carré, and P. Salières, *Phys. Rev. A* **76**, 011802 (2007).
- ⁴⁷A. Paul, R. A. Bartels, R. Tobey, et al., *Nature* **421**, 51 (2003).
- ⁴⁸A. Willner, F. Tavella, M. Yeung, et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**, 175002 (2011).
- ⁴⁹K. W. DeLong, R. Trebino, J. Hunter, et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2206 (1994).
- ⁵⁰R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, et al., *Rev. Sci. Instrum* **68**, 3277 (1997).
- ⁵¹P. O’Shea, M. Kimmel, X Gu, et al., *Opt. Lett.* **26**, 932 (2001).
- ⁵²K. W. DeLong, R. Trebino, and D. J. Kane, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 1595 (1994).
- ⁵³C. Iaconis and I. A. Walmsley, *Opt. Lett.* **23**, 792 (1998).
- ⁵⁴L. Gallmann, D. Sutter, N. Matuschek, et al., *Appl. Phys. B* **70**, S67 (2000).
- ⁵⁵E. Constant, E. Mevel, A. Zair, et al., *J. Phys. IV* **11**, 537 (2001).
- ⁵⁶H. Mashiko, A. Suda, and K. Midorikawa, *Appl. Phys. B* **76**, 525 (2003).
- ⁵⁷P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, et al., *Nature* **426**, 267 (2003).
- ⁵⁸S. Usenko, A. Przystawik, M. A. Jakob, et al., *Nat. Commun* **8**, 15626 (2017).
- ⁵⁹P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, et al., *J. Mod. Opt* **52**, 321 (2005).
- ⁶⁰H. Muller, *Appl. Phys. B* **74**, s17 (2002).
- ⁶¹D. Kroon, D. Guénot, M. Kotur, et al., *Opt. Lett.* **39**, 2218 (2014).
- ⁶²J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173903 (2002).
- ⁶³E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, et al., *Science* **305**, 1267 (2004).
- ⁶⁴N. Saito, N. Ishii, T. Kanai, et al., *Sci. Rep* **6**, 35594 (2016).
- ⁶⁵J. W. G. Tisch, T. Ditmire, D. J. Fraser, et al., *J. Phys. B* **30**, L709 (1997).
- ⁶⁶T. Ditmire, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, et al., *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3121 (1997).
- ⁶⁷H. Park, Z. Wang, H. Xiong, et al., *Phys. Rev. Lett.* **113**, 263401 (2014).
- ⁶⁸Y. Tao, R. Hagmeijer, H. M. J. Bastiaens, et al., *New J. Phys* **19**, 083017 (2017).
- ⁶⁹J. R. Vázquez de Aldana and L. Roso, *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 325 (2001).
- ⁷⁰T. D. Donnelly, T. Ditmire, K. Neuman, et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2472 (1996).
- ⁷¹M. Nisoli, S. Stagira, S. DeSilvestri, et al., *Appl. Phys. B* **65**, 189 (1997).

- ⁷²C. Starr, C. Evers, and L. Starr, *Biology: Concepts and Applications*, Brooks/Cole biology series (Thomson, Brooks/Cole, 2006).
- ⁷³I. F. Barna and P. Dombi, *Cent. Eur. J. Phys.* **6**, 205 (2008).
- ⁷⁴G. Hornby, A. Globus, D. Linden, et al., *Space 2006 Conf.* (2006).
- ⁷⁵Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, et al., *Science* **302**, 1540 (2003).
- ⁷⁶Z. Chang, *Phys. Rev. A* **71**, 023813 (2005).
- ⁷⁷T. Gaumnitz, A. Jain, Y. Pertot, et al., *Opt. Express* **25**, 27506 (2017).
- ⁷⁸K. Zhao, Q. Zhang, M. Chini, et al., *Opt. Lett.* **37**, 3891 (2012).
- ⁷⁹M. Suman, G. Monaco, M. G. Pelizzo, et al., *Opt. Express* **17**, 7922 (2009).
- ⁸⁰Z. Diveki, C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi, et al., *J. Mod. Opt.* **61**, 122 (2014).
- ⁸¹C. Lyngå, M. B. Gaarde, C. Delfin, et al., *Phys. Rev. A* **60**, 4823 (1999).
- ⁸²A. D. Bandrauk and N. H. Shon, *Phys. Rev. A* **66**, 031401 (2002).
- ⁸³T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai, *Nature* **435**, 470 (2005).
- ⁸⁴B. K. McFarland, J. P. Farrell, P. H. Bucksbaum, et al., *Science* **322**, 1232 (2008).
- ⁸⁵M. Aladi, R. Bolla, D. E. Cardenas, et al., *J. Instrum* **12**, C06020 (2017).
- ⁸⁶A. Bondi, *J. Phys. Chem.* **68**, 441 (1964).
- ⁸⁷V. V. Strelkov, M. A. Khokhlova, A. A. Gonoskov, et al., *Phys. Rev. A* **86**, 013404 (2012).
- ⁸⁸E. W. Larsen, S. Carlstrom, E. Lorek, et al., *Sci. Rep* **6**, 39006 (2016).
- ⁸⁹P. M. Abanador, F. Mauger, K. Lopata, et al., *J. Phys. B* **50**, 035601 (2017).
- ⁹⁰J. Passig, S. Zherebtsov, R. Irsig, et al., *Nat. Commun* **9**, 629 (2018).