

Magasrendű felharmonikusok keltésének kontrollja nemesgázatomokon és klasztereken

PH.D. ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

Bódi Balázs

Témavezető: Dombi Péter
Wigner Fizikai Kutatóközpont

2020

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

A kutatások előzménye és célkitűzés

Az 1960-as évektől kezdve a lézer megjelenésével egy olyan kompakt, intenzív, koherens és jól irányítható fényforrás vált elérhetővé, amely óriási tudományos és műszaki haladást tett lehetővé az elmúlt hat évtizedben. A lézerek egyre növekvő intenzitása nem csak új ipari alkalmazásokat hozott, hanem a tudományos kutatásban is megjelent egy új és azóta is virágzó kutatási terület, a nemlineáris optika [1].

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 atomi potenciálból származtatható térerősségnél és az elektron-elektron kölcsönhatásnál.

Magasrendű felharmonikusok keltése

A magasrendű felharmonikusok keltés (high harmonic generation, HHG) jelenségét a '80-as évek végétől vizsgálják. A kísérletek során infravörös vagy látható lézerfény kelt magasabb rendű felharmonikusokat gáz (vagy akár szilárdtest) közeg közelébe fókuszálva. Pár évvel később javasolták [2], hogy ezzel a technikával attoszekundumos impulzusokat is lehet keltetni. Gázközegen végzett HHG során leggyakrabban nemesgázatomokat használnak a kísérletekhez, de előfordulnak molekuláris rendszerek is, pl. CO₂, vízgőz, vagy szerves molekulák.

A folyamat három lépéses félklasszikus modellje [3] egy egyszerű képet ad a magasharmonikus-keltés mechanizmusáról:

- a nagy térerősség hatására az elektron alagúteffektussal el-

hagyja az atomot

- az elektron gyorsul a lézer terében az iontól távolodva, majd közeledve, mikor a térerősség előjelet vált
- az elektron visszatér az ionhoz és ott rekombinálódik, ezzel átadja a lézer teréből felvett energiát ami XUV (extrém ultraibolya) fotonok kisugárzásának formájában történik

A HHG egyik leggyakrabban használt kvantummechanikai modelljét erős tér közelítésnek hívják (strong field approximation, SFA) [4, 5], ami egy, a környezetével nem 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 az elektron visszatér az ionhoz, ahol ismét a kezdeti alapállapotba rekombinálódik. A nem visszatérő elektronokkal a modell nem számol. Ennél kevesebb közelítéssel, és az elektron hullámfüggvényét időben végigkísérve megoldható az időfüggő Schrödinger-egyenlet is, mely a nagyobb számítási kapacitásért (futásidő és memória) cserébe pontosabb eredményt ad [6]. Számolásaim során a rövidebb futási idők miatt a Lewenstein-módszert használtam.

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 fent leírt folyamat lejátszódik. A keltett XUV fény a keltő impulzussal egy irányban távozik és annál nagyságrendileg gyengébb: a tipikus HHG teljesítmény konverziós hatásfok 10^{-6} körüli [7]. 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.

A magasharmonikuseltés eredménye általában egy izolált attoszekundumos impulzus, vagy ilyeneket tartalmazó impulzusvonalat. Ezen kettő közül nagyobb felhasználási potenciállal bír az izolált atto-impulzus, hiszen az impulzusvonalat esetén nehéz utólag rekonstruálni, hogy a számos impulzus közül melyik milyen állapotba gerjesztette a vizsgált rendszert. Az izolált atto-impulzus keltésének egyik módja, hogy elegendően rövid keltő impulzust használunk.

Fényhullám-szintetizátor

Kellően rövid és jól formálható lézerezimpulzusok előállítására alkalmas az ún. fényhullám-szintetizátor eszköz [8], amely alapvetően új lehetőségeket nyitott meg a femtoszekundumos lézertechnológiában és az attofizikában. A lézerezimpulzusok szintetizálásához bemenetként egy kapillárisban spektrálisan kiszélesített impulzust használnak, mely a közeli-infravöröstől a látható tartományon keresztül közeli-ultraibolyáig tartalmaz spektrális komponenseket szuperkontinuum fehér fény formájában. Ezt egy interferométer és megfelelő szélessávú dikroikus tükrök segítségével spektrális tartományokra osztják és külön karokban módosítva újraegyesítik, így sokkal rövidebb impulzus érhető el mintha csörpölt tükrökkel vagy ráccsal próbálnák összenyomni az impulzusokat. A kimenet több mint másfél oktáv frekvenciatartományt fed le, emiatt alkalmas ciklushossz alatti impulzusok szintetizálására, amit attoszekundumos sávkamera felvételekkel bizonyítottak be [9].

Az eszköz fejlesztői újabban már négy spektrális csatornát használnak [10], és így el tudtak érni 380 as rövidegű optikai tartományban lévő impulzust, amivel a kripton atom kötött állapotait vizsgálták.

Emellett az eszköz kimenetének rövid impulzushossza és az

átvitt optikai teljesítmény jó skálázhatósága miatt, magasharmónikuseltés tanulmányozására is alkalmas lesz a későbbiekben. Célul tűztem ki, hogy megvizsgálom, milyen attoszekundumos impulzusok kelthetők a fényszintetizátor berendezéssel. Vizsgálataimhoz saját készítésű genetikus optimalizálás kódot használtam fel, melynek segítségével a szintetizátor paramétereinek terében kerestem megoldásokat különböző célkitűzésekkel.

A fent leírtakból következik, hogy a szintetizátor alkalmas izolált attoszekundumos impulzusok keltésére: megvizsgáltam, milyen tulajdonságai, korlátai vannak egy ilyen irányú optimalizálásnak.

Ennek keretében, az ultragyors optika pumpa-szonda (pump-probe) kísérletei inspirálták a kettősimpulzus keltésének vizsgálatát, melynek során az elsőként érkező impulzus egy gerjesztett állapotba viszi, majd a második impulzus spektroszkópiai vagy akár részecske-detektálási módszerekkel különböző időpillanatokban, időfelbontással láthatóvá teszi a rendszer pillanatnyi állapotát. Célként tűztem ki, hogy megvizsgáljam, milyen késleltetésű kettősimpulzusok hozhatók létre a szintetizátorral, és tanulmányozzam ezek tulajdonságait.

Szimulációs futtatásaim alatt központi frekvenciában hangolható rövidimpulzus keltését is vizsgáltam. Ennek legegyszerűbb esete, mikor a szintetizátor paramétereit állandón hagyva egy multiréteg tükröt használunk a spektrális szűréshez, és ezen tükröt kicserélve tudjuk beállítani az atto-impulzus központi frekvenciáját. Ezen túl arra is kíváncsi voltam, hogy rögzített spektrális szűrés esetén az optimalizálás tud-e alapvetően különböző központi frekvenciájú izolált attoszekundumos impulzusokat keltetni.

HHG klaszter közegben

A klaszter szó a fizikai tudományokban a '40-es években keletkezett, és a '80-as évektől kezdve kapott különleges figyelmet. Vala-

milyen fizikai kötéssel egymáshoz csatolt atomokat (vagy molekulákat) jelent, és akár különböző anyagú alkotórészek is egymáshoz kapcsolódhatnak így.

Tulajdonságait tekintve félúton találhatók az atomi (vagy molekuláris) és a tömbi, szilárd anyag között: a klaszterek kutatásának egyik fő motivációja a mikroszkopikus és makroszkopikus anyagi jellemzők 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 atomi/molekuláris alkotóelemekre esnek szét.

A nemesgázklaszterek atomjai van der Waals erőkkal kapcsolódnak egymáshoz, és a magasharmonikus-keltés folyamatához is felhasználnak nemesgázklasztereket. Több alkalommal publikálták, hogy klaszter közeget használva azonos háttérnyomáson nagyobb a keltés hatásfoka mint atomok esetén [11–13].

Egyes publikációk szerint a letörési frekvencia (a keltett legnagyobb XUV fotonenergia, ahonnan a spektrum exponenciálisan lecseng) nagyobb energiák felé tolódik, ha klasztereket használunk atomos gáz helyett [12, 14], más források ezt cáfolják [15, 16], így az irodalom alapján erről nincs általánosan elfogadott álláspont. Egy numerikus szimuláció alapján konkrét összefüggést is javasolnak a letörési frekvencia értékére: $I_P + 8U_p$ [17], ahol I_P az ionizációs potenciál (a leggyengébben kötött elektron ionizálásához szükséges energia mennyisége) és $U_p = \frac{e^2 E_{\text{dr}}^2}{4m_e \omega_{\text{dr}}^2}$ az ún. ponderomotoros potenciál (e és m_e az elektron töltése és tömege, E_{dr} és ω_{dr} a meghajtó tér amplitúdója és körfrekvenciája), de ezt még a kísérleti eredmények nem támasztják alá [12, 14].

Klaszterek esetén az intenzitás függvényében meredekebben nő a letörési frekvencia mint atomok esetén [18].

Ez alapján azt állíthatjuk, hogy magasharmonikus-keltésre a klaszterekből álló közeg nem csak alkalmas, de több tekintetben is felülmúlja a monomer gáz által keltett XUV nyaláb tulajdonságait, ezért vizsgálata továbbra is indokolt. A folyamat mechaniz-

musa eddig nem tisztázott, tekintetben a fő kérdés az maradt, hogy a visszatérő elektron hol tud rekombinálódni. Három lehetséges mechanizmus merül fel ennek a folyamatnak a lezajlására [19]: ha az elektron csak az eredeti, ún. „szülőionon” rekombinálódik, azt például „atom-to-itself” rekombinációnak nevezzük. Ha a töltésállapot delokalizálódik, ezért nagyobb a rekombinációnál szóba jövő térfogat az elektron visszatérésekor, az az „atom-to-neighbour” rekombináció, vagyis a *szomszéd* atomok bevonása a folyamatba. Ha a töltésállapot a teljes klaszterre delokalizálódik, akkor bizonyos feltételek mellett akár az is lehetséges, hogy cirkuláris polarizációval is kelthetők felharmonikusok, ezt az esetet „cluster-to-itself” rekombinációnak hívjuk.

A feladat elvégzéséhez rendelkezésemre állt egy magasharmónikus-keltésre alkalmas elrendezés femtoszekundumos lézerezőtővel és vákuumkamrával (toroidális rácsból és XUV detektorból álló spektrométer). Kísérleteimben különböző klaszterméretetek (gáz és háttérnyomás) esetére mértem az XUV jel lecsengését a keltő tér ellipticitásának függvényében. A lecsengés karakterisztikus hosszát (ε_{th} határellipticitás) minden mért klaszterméret esetén meghatároztam. Célul tűztem ki, hogy ezen kísérleti eredmények alapján megállapítom a klaszterken történő HHG mechanizmusának módját.

Eredmények

A fent bemutatott, a magasharmonikus-keltés fizikájához kapcsolódó kérdések vizsgálata során, a célkitűzéseimmel összhangban a következő új tudományos eredményeket értem el:

- 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 klaszterekben vizsgáltam a magasrendű felharmonikus-keltés mechanizmusait. A keltő tér (infravörös lézerimpulzus) polarizációs ellipticitásának függvényében meghatároztam az XUV intenzitás lecsengését, különböző klaszterméretek 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. Zaïr, "*Temporal characterization of high harmonics emitted from the long quantum path*," *New J. Phys.*, beküldésre előkészítve (2020).

Hivatkozások

- ¹R. W. Boyd and D. Prato, *Nonlinear Optics* (Elsevier Science, 2008).
- ²G. Farkas and C. Tóth, [Phys. Lett. A **168**, 447 \(1992\)](#).
- ³P. B. Corkum, [Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 \(1993\)](#).
- ⁴M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, et al., [Phys. Rev. A **49**, 2117 \(1994\)](#).
- ⁵M. Lewenstein, P. Salières, and A. L’Huillier, [Phys. Rev. A **52**, 4747 \(1995\)](#).
- ⁶J. A. Pérez-Hernández, L. Roso, and L. Plaja, [Opt. Express **17**, 9891 \(2009\)](#).
- ⁷J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, et al., [Phys. Rev. A **66**, 021801 \(2002\)](#).
- ⁸A. Wirth, M. T. Hassan, I. Grguraš, et al., [Science **334**, 195 \(2011\)](#).
- ⁹M. T. Hassan, A. Wirth, I. Grguraš, et al., [Rev. Sci. Instr. **83**, 111301 \(2012\)](#).
- ¹⁰M. T. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, et al., [Nature **530**, 66 \(2016\)](#).
- ¹¹J. W. G. Tisch, T. Ditmire, D. J. Fraser, et al., [J. Phys. B **30**, L709 \(1997\)](#).
- ¹²C. Vozzi, M. Nisoli, J.-P. Caumes, et al., [Appl. Phys. Lett **86**, 111121 \(2005\)](#).
- ¹³M. Aladi, I. Márton, P. Rácz, et al., [High Power Laser Sci. Eng. **2**, e32 \(2014\)](#).
- ¹⁴L. Feng and H. Liu, [Phys. Plasmas **22**, 013107 \(2015\)](#).
- ¹⁵H. Park, Z. Wang, H. Xiong, et al., [Phys. Rev. Lett. **113**, 263401 \(2014\)](#).
- ¹⁶Y. Tao, R. Hagmeijer, H. M. J. Bastiaens, et al., [New J. Phys **19**, 083017 \(2017\)](#).
- ¹⁷J. R. Vázquez de Aldana and L. Roso, [J. Opt. Soc. Am. B **18**, 325 \(2001\)](#).
- ¹⁸T. D. Donnelly, T. Ditmire, K. Neuman, et al., [Phys. Rev. Lett. **76**, 2472 \(1996\)](#).
- ¹⁹H. Ruf, C. Handschin, R. Cireasa, et al., [Phys. Rev. Lett. **110**, 083902 \(2013\)](#).