

Intenzív lézerimpulzussal kölcsönható atomi és szabad elektronok dinamikája és sugárzása

Doktori (Ph.D.) értekezés tézisei

Hack Szabolcs

Témavezetők:

Dr. Czirják Attila

tudományos munkatárs, c. egyetemi docens

Szegedi Tudományegyetem, Elméleti Fizikai Tanszék

ELI-ALPS, Szeged

Prof. Dr. Varró Sándor

tudományos tanácsadó, egyetemi magántanár

Wigner Fizikai Kutatóintézet, Budapest

ELI-ALPS, Szeged



SZEGEDI TUDOMÁNYEGYETEM

FIZIKA DOKTORI ISKOLA

TERMÉSZETTUDOMÁNYI ÉS INFORMATIKAI KAR

ELMÉLETI FIZIKAI TANSZÉK

Szeged

2021

Bevezetés

Az atomokban, molekulákban lejátszódó ultragyors folyamatok valós időben történő vizsgálata mára rutinszerűen végezhető a világ vezető laboratóriumában [1, 2], egyszersmind a fizika egyik leggyorsabban fejlődő tudományterületévé vált [3, 4]. Jelen értekezés írásakor ultragyorsnak azokat a folyamatokat tekintjük, amelyek karakterisztikus időskálája a száz attoszekundum (as) nagyságrendjébe esik. Ezek a folyamatok, amelyek legtöbb esetben az atom vagy molekula elektronrendszerének dinamikájával vannak kapcsolatban, jelentik jelenleg a mérési időtartomány alsó határát.

A fény-anyag kölcsönhatáson alapuló legkorszerűbb, legfinomabb időfelbontással rendelkező mérési eljárások az ún. pumpa-próba elven működnek, amelyek 50-100 as időtartamú dinamikai folyamatokat képesek feloldani [5, 6]. Ennek elengedhetetlen része a tipikusan extrém ultraibolya – lágy röntgen spektrális tartományban lévő attoszekundumos fényimpulzus keltés, amely általában nemesgáz atomokon történő magasrendű harmonikus-keltéssel valósul meg [7, 8, 9]. Ennek a módszernek, a másodlagos sugárforrás sajátosságai miatt, egyrészt megvannak a maga korlátai az emittált fényimpulzus intenzitására és hullámhosszára vonatkoztatva. Másrészt jól ismert tény, hogy ezekben az úttörő kísérletekben is alkalmazott, néhány-ciklusos, femtoszekundumos lézerimpulzusok vivő-burkoló fáziskülönbsége a vizsgált időskálán befolyásolja az atomi- vagy molekuláris rendszerek különbözőféle folyamatait. A közelmúltban azonban kimutatták, hogy ezekben a pumpa-próba kísérletekben jelentős szerepe lehet az attoszekundumos fényimpulzusok vivő-burkoló fáziskülönbségének is [10, 11].

Az erős lézertérben lejátszódó ionizáció alapvető szerepet játszik az attoszekundumos fizikában. Egy megfelelően erős lézerimpulzus lehetővé teszi az elektron számára, általában alagúteffektust feltételezve, hogy az atomi kötött állapotából kiszabaduljon, ami a széles körben ismert háromlépéses modell első lépése [12, 13, 14]: (i) az elektron optikai alagúteffektussal kiszabadul az atomi Coulomb-potenciálból, (ii) klasszikus dinamikával jól közelíthető mozgás során kinetikus energiát nyer a lézertérből, (iii) végül megfelelő

körülmények között visszatér az iontörzshöz és rekombinálódik vele, aminek eredményeképpen ultraibolya sugárzást bocsát ki. Ez az elméleti modell alapozza meg a folyamatról alkotott fizikai képünket. Jelenleg az elektron alagutazási idejének és a kezdeti impulzusának problémája kiemelkedő jelentőségű mind a kvantumelmélet, mind az attoszekundumos mérés technika szempontjából [15].

Célkitűzés

Az értekezésben bemutatott doktori munka célja az attoszekundumos fényimpulzus keltéssel és a használatban lévő elméleti modellekkel kapcsolatos még nyitott kérdések vizsgálata, és ezek közül néhány megválaszolása volt.

Ahogy az előző szakaszban említettük a nemesgáz atomokon magasrendű harmonikus-keltéssel történő attoszekundumos fényimpulzus előállításnak megvannak a maga fizikai korlátai a nemesgáz atomok, azaz a másodlagos sugárforrások tulajdonságai miatt. Éppen ezért természetesen adódott a motivációnk új, alternatív módszer keresésére. A nemesgáz atomokon történő felharmonikus-keltés egyik fő problémája, hogy az általuk létrehozott attoszekundumos fényimpulzus maximális intenzitása limitált: az atomokból vagy molekulákból álló mintán sem lehet akármilyen nagy intenzitású lézerimpulzust alkalmazni, hiszen a túl intenzív lézertér ionizálja a gázt, így a rekombináció és az ultraibolya sugárzás kibocsátása nem valósul meg.

Régóta ismert jelenség, hogy elektromágneses sugárzás szabad, nagy sebességre gyorsított elektronon történő szóródásakor, amelyet az energetikai viszonyok alapján Thomson- vagy Compton-szórásnak nevezünk, a szórt sugárzásban megjelennek a lézertér központi frekvenciájánál jóval nagyobb frekvenciájú komponensek is [16, 17, 18, 19]. Az is tudott, hogy sok részecskét tartalmazó elektroncsomag megfelelő kísérleti körülmények között koherens sugárzás kibocsátására képes, amit korábban mono-energetikus sugárzás előállítására használtak [20, 21]. Erre a két megállapításra, valamint az elektron nano-csomagokkal kapcsolatos úttörő szimulációkra [22, 23] és kísérletekre [24, 25] alapozva célul tűztük ki, hogy megvizsgáljuk annak a lehetőség-

gét, hogy megfelelő paraméterekkel rendelkező elektronsomag és lézertér kölcsönhatása képes-e makroszkopikusan detektálható és a kísérletekben jól használható attoszekundumos fényimpulzus kibocsátására.

Az atomok vagy molekulák optikai ionizációja a hozzá kapcsolódó fundamentális fizikai kérdések miatt önmagában is érdekes jelenség. Emellett nem csak a nemesgáz atomok segítségével történő attoszekundumos fényimpulzus előállítás szempontjából fontos folyamat, hanem számos modern eszközzel végzett mérési eredmény kiértékelése és értelmezése miatt is. Ezek a mérési eljárások egyedi ionizációs eseményeket tudnak vizsgálni a belőlük származó elektronok, ionok és egyéb fragmentumok detektálása alapján.

Célunk volt az erős lézertérben lejátszódó ionizáció mint időfüggő jelenség kvantum- és klasszikus dinamikáját vizsgálni és a két dinamikát összehasonlítani a fázistéren. Vizsgáltuk, hogy a Schrödinger-egyenlet megoldásából származó kvantumdinamikát milyen kezdeti feltételekkel rendelkező klasszikus dinamika írja le a legjobban. Továbbá, fontos és messzemenőig nem triviális kérdés, hogy egy ilyen időfüggő kvantummechanikai folyamat esetén a fázistér mely pontjától közelíthető a dinamika a klasszikus fizika eszközeivel. A klasszikus- és kvantumdinamika összevetése alapján azt a kérdést is vizsgáltuk, hogy a klasszikus dinamika determinisztikus voltát kihasználva, hogyan lehet mérhető fizikai mennyiségekből visszakövetkeztetni a kvantumdinamikát legjobban modellező klasszikus trajektória kezdeti paramétereire.

Módszerek

A fény-anyag kölcsönhatás leírására szolgáló, leggyakrabban használt elméleti modellek közül a vizsgált fizikai problémák sajátosságai miatt a klasszikus fény és klasszikus anyag, illetve a szemi-klasszikus leírást használtuk.

A relativisztikus Thomson-szórás esetén az elektron energiájának megváltozását elhanyagoljuk a fény energiájának változása mellett. Ezen fizikai probléma tárgyalásakor az elektront klasszikus fényforrásnak, a szóródó lézerteret pedig klasszikus elektromágneses mezőnek tekintettük. Így az elektron a relativisztikus Newton-Lorentz egyenletek alapján mozog a lézer-

tér hatása alatt, és egy megfelelően távol lévő térbeli pontban az elektron által kisugárzott tér spektrális eloszlását a Liénard-Wiechert-féle potenciálokra alapuló jól ismert összefüggés segítségével kaphatjuk meg. Bár manapság egyre elterjedtebbek a numerikus módszerek a hasonló problémák kezelésére, mi mégis, amíg lehetőségünk adódott, szorítkoztunk a mozgásegyenlet egzakt, analitikus tárgyalásánál maradni, numerikus módszereket csak az elektron vagy az elektronsomag által kisugárzott tér kiszámításakor használtunk. Amikor nem egyetlen elektron, hanem nagy számú részecskét tartalmazó, ideálisnak tekintett elektronsomag sugárzási terét számítottuk ki, úgy tekintettük, hogy az elektronok ugyanolyan trajektórián haladnak végig, csupán a trajektóriák kezdeti értékeiben van különbség. Ezért az eredő sugárzási tér számításakor az egyetlen emittertől származó sugárzási tér spektrumát a koherencia tényezővel megszorozva megkaptuk az adott paraméterrel rendelkező elektronsomag sugárzási terét.

Az erős-teres ionizáció összetettebb probléma, abban az értelemben, hogy a modellként szolgáló hidrogénatom elektronját klasszikus és kvantumdinamikai szempontból is le kívántuk írni. Így amikor klasszikus részecskeként vettük figyelembe, akkor megmaradtunk a korábban használt Newton-Lorentz egyenlet nem relativisztikus alakjánál, valamint annak részben analitikus, részben numerikus kezelésénél. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet megoldásakor a modellként szolgáló hidrogénatom alapállapotában lévő elektron és lézertér kölcsönhatásának leírásakor dipól-közelítést és hossz-mértéket alkalmaztunk. Ezért az elektron hullámfüggvénye nem függ a polarizáció iránya körüli azimutális szögtől, a háromdimenziós Schrödinger-egyenletet célszerűen hengerkoordináta-rendszerben oldottuk meg. Így a megoldásakor egy operátor bontáson (operator splitting) alapuló hibrid Crank–Nicolson módszert alkalmaztunk [26]. A kvantummechanikai problémát, a klasszikus fizikával történő jobb összevetetőség érdekében a fázistéren vizsgáltuk a Wigner-függvény és a belőle származtatott ún. kvantummomentum függvény segítségével.

Tudományos eredmények

Az alábbiakban röviden ismertetem a disszertációban bemutatott új tudományos eredményeimet öt tézispontban összefoglalva. A megállapításaimat tartalmazó publikációkat, amelyek listája a disszertáció végén megtalálható, a tézispontok címében hivatkozom.

1. Attoszekundumos fényimpulzus előállításának lehetősége megfelelő elektroncsomagon történő Thomson-szórással [T1,T2]

Partikuláris megoldást adtam egy olyan ponttöltés relativisztikus trajektóriájára, amely kölcsönhat egy, a gyakorlatban sokszor alkalmazott, szinusznégyszet burkolóval modellezhető lézerimpulzussal. Felhasználva az elektron analitikus trajektóriáját, kiszámoltam egy intenzív, egy-ciklusos, lineárisan polarizált, közeli infravörös lézerimpulzus által egy monoenergetikus elektron nano-csomagon Thomson-szórással létrehozott elektromágneses sugárzás spektrális eloszlását, időbeli alakját, valamint vizsgáltam a térbeli függését is. Megállapítottam, hogy egy megfelelő tulajdonságokkal rendelkező elektron-csomag spektrális szűrés nélkül, csupán a sugárzás kollektív mivoltából adódóan képes félértékszélességben egyetlen optikai ciklust tartalmazó, 16 attoszekundum impulzushosszúságú, 99 nJ energiájú fényimpulzust kisugározni. Ennek spektruma az extrém-ultraibolya–lágý-röntgen spektrális tartományba esik, és az élettudományi szempontból kiemelkedő fontosságú 2,33–4,37 nm hullámhossz közötti „víz ablakot” is tartalmazza.

2. Javaslat attoszekundumos fényimpulzus vivő-burkoló fáziskülönbségének dinamikus szabályozására [T2]

Megvizsgáltam, hogy a relativisztikus Thomson-szóráskor az elektron nano-csomag által kisugárzott elektromágneses mező hogyan függ a gerjesztő femtoszekundumos lézerimpulzus vivő-burkoló fáziskülönbségétől. Megállapítottam, hogy a gerjesztő lézerimpulzus vivő-burkoló fáziskülönbsége és a

Thomson-szórás során létrejövő attoszekundumos fényimpulzus vivő-burkoló fáziskülönbsége között egyszerű, lineáris kapcsolat van, amely dinamikusan kontrollálhatóvá teszi az attoszekundumos fényimpulzus vivő-burkoló fáziskülönbségét, ami különösen fontos például a pumpa-próba kísérletek szempontjából.

3. Javaslat nagy impulzusenergiájú attoszekundumos fényimpulzus előállítására [T3]

Megállapítottam, hogy az elektron-csomagon szóródó lézerimpulzus intenzitását növelve a szórás során létrejövő attoszekundumos fényimpulzus hossza csak kis mértékben növekszik, azonban az intenzitása jelentősen, nemlineárisan nő egy bizonyos telítési értékig, amely a kölcsönhatás paramétereitől függ. Továbbá, amennyiben a bejövő lézerimpulzust fázismoduláltnak teteleztem fel, azt találtam, hogy a megfelelően megválasztott negatív fázismoduláció úgy módosítja a kisugárzott tér spektrális eloszlását, hogy az attoszekundumos fényimpulzus időbeli alakját lényegesen nem befolyásolja, azonban az energiája elérheti a μJ energiatartományt.

4. Új típusú klasszikus trajektória bevezetése az erős-teres ionizáció közelítő leírására [T4]

Atom és erős lézertér kölcsönhatásakor az atomi potenciálból „kiszabaduló” elektron közelítő leírására újfajta kezdőfeltétellel rendelkező klasszikus trajektóriákat vezettem be. Ezek kezdőfeltételeit a teljes kölcsönhatást leíró pillanatnyi potenciálfüggvényhez tartozó olyan stacionárius trajektória inflexió pontja szolgáltatja, amit az adott időpillanatbeli kvantummomentum függvény éppen az inflexió pontban metsz. Az atomi potenciálból kiszabadult elektront leíró hullámcsomag Wigner-függvényével és a kvantummomentum függvénnyel történő összevetés alapján megállapítottam, hogy az általam bevezetett trajektóriák az összetett kvantummechanikai folyamat helyes klasszikus reprezentációját adják. Továbbá, a kezdeti időpillanat függvényében számot adnak mind a direkt ionizációról, mind az újraszóródásról. Megállapított-

tam, hogy a trajektórián haladó klasszikus elektron kezdeti energiája a potenciálgát feletti ionizáció tartományába esik, ami feloldja és megmagyarázza a nem-nulla kezdőimpulzus problémáját a szokásos alagúteffektust feltételező modellekben.

5. Rekonstrukciós eljárás a direkt ionizálódott elektron klasszikus kezdeti paramétereinek meghatározására [T4]

Felhasználva az általam bevezetett fenti trajektóriákat egy iteratív eljárást javasoltam arra, hogy a direkt (azaz újraszóródás nélkül) ionizálódott elektron detektoron mért impulzusértékéből hogyan lehet rekonstruálni a klasszikus trajektória kezdeti időpillanatát, helykoordinátáját, majd ezekből az adatokból az impulzusát. Az általam javasolt eljárást numerikus kísérlet segítségével teszteltem a számításba jöhető kezdeti időpontok intervallumára, különböző lézerezintenzitás és vivő-burkoló fáziskülönbség értékek esetén. Megállapítottam, hogy a módszer legfeljebb kb. 2 atomi időegység (kb. 50 as) eltéréssel adja meg a klasszikus trajektória kezdeti időpillanatát, azonban a valószínűbb trajektóriák esetén az eltérés kevesebb, mint 5 as, a kezdeti pozícióra pedig kevesebb, mint a Bohr-sugár egytizede (5 pm).

A t zispontokhoz kapcsol d  refer lt foly iratcikkek:

- [T1] Sz. Hack, S. Varr  and A. Czirj k, „Interaction of relativistic electrons with an intense laser pulse: HHG based on Thomson scattering”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **369**, 45-49 (2016)
- [T2] Sz. Hack, S. Varr  and A. Czirj k, „Carrier-envelope phase controlled isolated attosecond pulses in the nm wavelength range, based on coherent nonlinear Thomson-backscattering”, *New Journal of Physics* **20**, 073043 (2018)
- [T3] Sz. Hack, Z. T th, S. Varr  and A. Czirj k, „Isolated attosecond pulses of μJ energy via coherent Thomson-backscattering, driven by a chirped laser pulse”, *The European Physical Journal D* **73**, 77 (2019)
- [T4] Sz. Hack, Sz. Majorosi, M. G. Benedict, S. Varr  and A. Czirj k, “Quantum interference in strong-field ionization by a linearly polarized laser pulse, and its relevance to tunnel exit time and momentum” (*bek ldve*); arXiv:2103.12699

Hivatkozások

- [1] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, „Attosecond metrology,” *Nature* **414**, pp. 509–513, 2001.
- [2] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. D. Silvestri, and M. Nisoli, „Isolated single-cycle attosecond pulses,” *Science* **314**, pp. 443–446, 2006.
- [3] P. B. Corkum and F. Krausz, „Attosecond science,” *Nature Physics* **3**, pp. 381 – 387, 2007.
- [4] F. Krausz and M. Ivanov, „Attosecond physics,” *Review of Modern Physics* **81**, pp. 163–234, 2009.
- [5] E. Goulielmakis, Z.-H. Loh, A. Wirth, R. Santra, N. Rohringer, V. S. Yakovlev, S. Zherebtsov, T. Pfeifer, A. M. Azzeer, M. F. Kling, S. R. Leone, and F. Krausz, „Real-time observation of valence electron motion,” *Nature* **466**, pp. 739–743, 2010.
- [6] M. Schultze, M. Fieß, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman, M. Hofstetter, S. Neppl, A. L. Cavalieri, Y. Komninos, T. Mercouris, C. A. Nicolaides, R. Pazourek, S. Nagele, J. Feist, J. Burgdörfer, A. M. Azzeer, R. Ernstorfer, R. Kienberger, U. Kleineberg, E. Goulielmakis, F. Krausz, and V. S. Yakovlev, „Delay in photoemission,” *Science* **328**(5986), pp. 1658–1662, 2010.
- [7] M. Ferray, A. L’Huillier, X. Li, G. Mainfray, and M. C., „Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases,” *Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics* **21**, pp. 31–35, 1988.
- [8] G. Farkas and C. Tóth, „Proposal for attosecond light pulse generation using laser-induced multiple harmonic conversion processes in rare gases,” *Physics Letters A* **168**, p. 447, 1992.

- [9] F. Ferrari, F. Calegari, M. Lucchini, C. Vozzi, S. Stagira, G. Sansone, and M. Nisoli, „High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields,” *Nature Photonics* **4**, pp. 875–879, 2010.
- [10] L.-Y. Peng and A. F. Starace, „Attosecond pulse carrier-envelope phase effects on ionized electron momentum and energy distributions,” *Physical Review A* **76**, p. 043401, 2007.
- [11] Z. Tibai, G. Tóth, M. I. Mechler, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, „Proposal for carrier-envelope-phase stable single-cycle attosecond pulse generation in the extreme-ultraviolet range,” *Physical Review Letters* **113**, p. 104801, 2014.
- [12] P. Corkum, „Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization,” *Physical Review Letters* **71**, p. 1994, 1993.
- [13] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum, „Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields,” *Physical Review A* **49**, pp. 2117–2132, 1994.
- [14] S. Varró and F. Ehlotzky, „A new integral equation for treating high-intensity multiphoton processes,” *Nouvo Cimento* **15 D**, pp. 1371–1396, 1993.
- [15] A. S. Landsman and U. Keller, „Attosecond science and the tunnelling time problem,” *Physics Reports* **547**, pp. 1 – 24, 2015.
- [16] E. S. Sarachik and G. T. Schappert, „Classical theory of the scattering of intense laser radiation by free electrons,” *Physical Review D* **1**, pp. 2738–2753, 1970.
- [17] E. Esarey, S. K. Ride, and P. Sprangle, „Nonlinear Thomson scattering of intense laser pulses from beams and plasmas,” *Physical Review E* **48**, p. 3003, 1993.

- [18] S. Chen, A. Maksimchuk, and D. Umstadter, „Experimental observation of relativistic nonlinear Thomson scattering,” *Nature* **396**, pp. 653–655, 1998.
- [19] Y. Y. Lau, F. He, D. P. Umstadter, and R. Kowalczyk, „Nonlinear Thomson scattering: A tutorial,” *Physics of Plasmas* **10**(5), pp. 2155–2162, 2003.
- [20] G. Sarri, D. J. Corvan, W. Schumaker, J. M. Cole, A. Di Piazza, H. Ahmed, C. Harvey, C. H. Keitel, K. Krushelnick, S. P. D. Mangles, Z. Najmudin, D. Symes, A. G. R. Thomas, M. Yeung, Z. Zhao, and M. Zepf, „Ultrahigh brilliance multi-mev gamma-ray beams from nonlinear relativistic Thomson scattering,” *Physical Review Letters* **113**(22), p. 224801, 2014.
- [21] K. Khrennikov, J. Wenz, A. Buck, J. Xu, M. Heigoldt, L. Veisz, and S. Karsch, „Tunable all-optical quasimonochromatic Thomson x-ray source in the nonlinear regime,” *Physical Review Letters* **114**(19), p. 195003, 2015.
- [22] N. Naumova, I. Sokolov, J. Nees, A. Maksimchuk, V. Yanovsky, and G. Mourou, „Attosecond electron bunches,” *Phys. Rev. Lett.* **93**, p. 195003, 2004.
- [23] A. Sell and F. X. Kärtner, „Attosecond electron bunches accelerated and compressed by radially polarized laser pulses and soft-x-ray pulses from optical undulators,” *Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics* **47**, p. 015601, 2014.
- [24] C. G. R. Geddes, C. Toth, J. van Tilborg, E. Esarey, C. B. Schroeder, D. Bruhwiler, C. Nieter, J. Cary, and W. P. Leemans, „High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding,” *Nature* **431**, pp. 538–541, 2004.
- [25] C. M. S. Sears, E. Colby, R. Ischebeck, C. McGuinness, J. Nelson, R. Noble, R. H. Siemann, J. Spencer, D. Walz, T. Plettner, and R. L.

Byer, „Production and characterization of attosecond electron bunch trains,” *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams* **11**, p. 061301, 2008.

[26] S. Majorosi and A. Czirják, „Fourth order real space solver for the time-dependent Schrödinger equation with singular Coulomb potential,” *Computer Physics Communications* **208**, pp. 9–28, 2016.