

MAGASRENDŰ FELHARMONIKUS-KELTÉS
KVANTUMOPTIKAI MODELLEZÉSE KÉTSZINTES
RENDSZERBEN

Doktori értekezés tézisei



Gombkötő Ákos

Szegedi Tudományegyetem
Elméleti Fizikai Tanszék
2021

1. Bevezetés

A magasrendű felharmonikus keltés (HHG) egy erősen nemlineáris optikai jelenség, mely során anyagi közeg nagyintenzitású lézertérrel hat kölcsön, és olyan szórt sugárzás keletkezik, melyben a foton-energiák a gerjesztő nyalábot jellemző foton-energiák sokszorosai lehetnek, egy levágási frekvenciáig bezárólag. A jelenségét először 1987-ben figyelték meg, gázfázisú forrást használva, és hamar kiderült, hogy –elegendő számú, fázisrendezett felharmonikus esetén– a HHG rövid impulzusok keltésére használható (1). Azóta ezen folyamat tanulmányozása számottevő szakirodalmat hozott létre. A tudományos közösség érdeklődésének középpontjában elsősorban a minél magasabb határfok megvalósítása, illetve a minél magasabb-rendű felharmonikusok előállításának lehetőségei állnak.

Manapság a HHG az egyik legfontosabb alapjelenséggé vált az attoszekundumos fizikán belül, mivel egy határon túl a rövid impulzusok keltésének ez az egyetlen, széles körben használt módja. Ezért megkerülhetetlen azon kísérletekben, melyek az atomi, molekuláris, és szilárdtestbeli elektron-dinamika extrém időbeli feloldását tűzik ki célul. Az attoszekundumos fizika a jövőbeli kutatások szempontjából is meghatározó, és ahogyan egyre finomabb időbeli feloldások válnak lehetségessé, újabb jelenségek vizsgálata előtt nyílik meg a lehetőség.

A magas felharmonikusok keltésének elméleti modellezése, illetve az ezzel kapcsolatos széles körben használt fogalmak kidolgozása – történeti és számítástechnikai okokból – túlnyomórészt szemiklasszikus megközelítésben történik. Általánosan elfogadott, hogy a HHG folyamatát gyakorlatilag az elektronok és az elektromágneses mező kölcsönhatása határozza meg. Ennek megfelelően a modellekben három elem különíthető el: az anyagi rendszer, a gerjesztő tér, és a szórt sugárzási mező. A modellek csoportosítása az alapján lehetséges, hogy a három elem közül melyek kvantumozott jellegűt vesszük expliciten figyelembe, és melyekre vonatkozóan alkalmazzuk a klasszikus közelítést.

A hagyományos szemiklasszikus modellekben mind a gerjesztés mind a felharmonikusok klasszikus objektumként szerepelnek, csak az elektronok modellje kvantummechanikai. Bár az ilyen megközelítés általában sikeresnek tekinthető a spektrumra vonatkozó számolásoknál, de alkalmatlan arra, hogy a folyamat nem-klasszikus, kvantumoptikai vonatkozásait megragadja.

Ugyanakkor jelenleg, amikor a fotonika egyre jelentősebb szerephez jut a technológiai alkalmazásokban, kívánatos az alapjelenségek olyan formalizmusban való részletes tárgyalása, mely figyelembe veszi mind az anyagi rendszer, mind az elektromágneses mező kvantumos jellegét. Bár a nagyintenzitású fény-anyag kölcsönhatás kvantumoptikai modellezésével kapcsolatban léteznek régebbi számolások a '80-as évek elejéről [lásd a (2) összefoglaló cikket], a téma a közelmúltban újra érdeklődést váltott ki. Megemlítve néhány újabb eredményt:

-Kísérleti megerősítést nyert, hogy a gerjesztő impulzus fotonstatisztikáját a kölcsönhatás úgy módosítja, hogy abból kiolvasható a keltett felharmonikus spektrum (3).

-Molekuláris és atomi minták esetén olyan, páros felharmonikushoz közeli melléksávokat mutattak ki kísérletileg, amelyek a szemiklasszikus elméletekben nem feltétlenül kezelhetők (4).

-Perturbatív számolás szerint a felharmonikus spektrumot jellemző kvantumállapotban vannak olyan módusok, melyek nem-klasszikus szub-Poissoni, vagy préselt állapottal írhatóak le (5).

A folyamat releváns aspektusainak megértése hozzájárulhat olyan rövid optikai impulzusok forrásának a kifejlesztéséhez, melyekben a fény klasszikusan le nem írható tulajdonságainak – mint a préseltség, összefonódás, szub-Poissoni fotonstatisztika – lényeges szerep jut.

2. Célkitűzések

Bár a HHG kvantumelméleti modellezésével kapcsolatban vannak korábbi eredmények, rengeteg a nyitott kérdés azzal kapcsolatban, hogy a spektrális és fotonstatisztikai tulajdonságok milyen esetekben térnek el lényegesen az ismert fenomenológiai leírástól. A céloom ennek a részletes feltárása felé vezető első lépés volt. Ennek érdekében szigorúan a fundamentális, mikroszkopikus leírásra szorítkoztam, elhanyagolva a makroszkopikusan fontos hullámterjedési és interferencia-jelenségeket, valamint a relaxációs folyamatokat.

A leglényegesebb megvizsgált kérdés az volt, hogy a gerjesztő és szórt sugárzás klasszikus illetve kvantumos modellezésének kombinációi milyen fizikai jóságotok megtételére alkalmasak, konkrétan milyen, klasszikusan nem leírható következményei lehetnek a HHG folyamatának. Mivel a vizsgálat újdonsága miatt a kvalitatívan helyes leírás is észrevehető jelentőséggel bír, ezért precíz anyagszerkezeti számítások helyett az anyagi tulajdonságok csak paraméterként jelennek meg a modellekben. Azért, hogy a tárgyalás minél áttekinthetőbb legyen, az anyagi rendszert a kvantumoptikából jól ismert kétállapotú atomnak választottam.

3. Alkalmazott módszerek

Lézerterek és tömbi szilárdtestek kölcsönhatásának elemi modellje (egyelektron képben, dipólközelítést és sebességmértéket alkalmazva) redukálható független N-szintes rendszerek elektromágneses mezővel való kölcsönhatásának modelljére. A munkámban a következő közelítő feltételezéseket használtam:

- A gerjesztő, kvantumosan leírt mező a kölcsönhatás előtt koherens állapottal jellemezhető.
- A dipólközelítés és az egy-részecske közelítés érvényesnek tekinthető.
- Az intenzitás közepesen nagy, a két-sáv közelítés elfogadható.

Ezen feltételezésekkel a vizsgálat tárgyát visszavezettem független két-szintes rendszerek dinamikájára. Annak érdekében hogy a fizikai folyamatok

jobban áttekinthetőek legyenek, annak a speciális esetnek a (numerikus és analitikus) vizsgálatára összpontosítottam, melyben az anyagi rendszer egyetlen elemi kétnívós "atom".

Érdeemes megjegyezni, hogy a kétszintes rendszerre vonatkozó szemiklasszikus modell képes reprodukálni a kísérletileg mért spektrumok legtöbb kvalitatív jellemzőjét, vagyis a platós szerkezetet levágással; valamint (nem túl nagy intenzitásoknál) a levágási frekvencia lineáris függését a gerjesztő mező csúcs-erősségétől (6-7).

Munkám során külön-külön kezeltem illetve összehasonlítottam a klasszikusan gerjesztett klasszikus felharmonikus sugárzás, a klasszikusan gerjesztett kvantált sugárzás, illetve a kvantumosan gerjesztett klasszikus sugárzás tulajdonságait.

Megkülönböztetett fontosságot tulajdonítottam a monokromatikus gerjesztések speciális esetének, mely analitikusan könnyen vizsgálható, és amely dinamikáját jellemző legfontosabb paraméter-függést meghatároztam. A következtetések azonosan fennállnak arra az esetre is, amikor a gerjesztő impulzusok téglalap-burkolóval rendelkeznek.

A monokromatikus gerjesztés esetére olyan, analitikusan számolt eredményeket vezettem le, amelyek lehetővé teszik a felharmonikus spektrum szerkezetének egyszerű kiértékelését adott paraméterek mellett. A spektrális szerkezetet jellemző $\delta\omega$ értéket (mely a gerjesztési frekvencia páros-számú többszörösének közelében lévő két spektrumvonal elhangolódása) analitikusan megadtam.

Megjegyzem, hogy ezen optikai vonalakat a disszertációban párosrendű felharmonikusoknak neveztem az egyszerűség kedvéért, de a szakirodalomban főleg (de nem kizárólag) a "Hiper-Raman vonal" elnevezés használatos.

Kiderült, hogy a $\delta\omega$ érték erősen befolyásolja a spektrális vonalak kvantumoptikai tulajdonságait. Az értekezés során különös figyelmet fordítottam azon paraméterekre, amikor $|\delta\omega|$ maximális, vagyis amikor a páros felharmonikushoz tartozó két vonal spektrális távolsága az adott paramétertartományban a lehető legnagyobb.

Annak érdekében, hogy a gerjesztés kvantumosságát a modellbe építsem, kidolgoztam egy, Neumann János felvetésén alapuló fázisteres módszert. A számítási séma a Neumann-féle koherens rácson alapszik, mely lehetővé teszi a gerjesztést leíró Wigner-függvény időfüggésének egyszerű kiértékelését {II}.

A numerikus számításaim azt mutatják, hogy a kölcsönhatás visszahatása a gerjesztési módusokra (amely a paramétereiktől függően jelentős lehet) korlátozott hatással van a dipól-operátor várható értékére. Egy olyan formalizmusban, ahol a gerjesztést kvantáljuk de a harmonikus sugárzást klasszikusan számítjuk – vagyis ahol a dipól-operátor várható értékének időfüggése a felharmonikus sugárzás forrása – azonosítottam a spektrum módosulását okozó legalacsonyabb rendű kifejezést. Rövid kölcsönhatási időnél ez a módosulás elhanyagolható.

Felállítottam egy effektív modellt, amelyben a gerjesztés klasszikus, míg a szórt sugárzás kvantált objektumként van figyelembe véve {I}. Ezen a modellen belül kidolgoztam egy közelítő számítási módszert a kvantált sugárzási mező kollektív dinamikájának kiszámításához, az operátorok várható értékeinek Bogoliubov-Born-Green-Kirkwood-Yvon hierarchiája alapján. Kiszámítottam a foton-szám várható értékeit és a kvadratúra-szórásokat.

A fotonstatisztikát, vagyis az egy módusra vonatkozó foton-autokorrelációs függvényeket, illetve a módusok közötti foton-keresztkorrelációs függvényeket egy- és két-módus közelítésen belül számítottam ki numerikusan, és közelítő jelleggel analitikusan {IV}.

4. Új tudományos eredmények

- I. Azonosítottam a monokromatikus gerjesztés által indukált harmonikus spektrum felépítését: páratlan rendszámú felharmonikusokat, és kettős spektrális vonalakat tartalmaz az alap harmonikus páros többszöröseihez közel, mely vonalakat a disszertációban páros rendű felharmonikusnak neveztem. Analitikusan kiszámítottam a páros felharmonikusokat jellemző $\delta\omega$ érték paraméterfüggését.

Az általam levezetett (szemiklasszikus) formalizmusban az első rendű perturbációszámítás is elfogadható relatív hibán belül összhangban van a numerikusan kiszámított klasszikus spektrummal {IV}. Rövid kölcsönhatási időkre vonatkozóan a gerjesztés kvantumossal jellegének a figyelembe vétele lényegében nem módosít a dipólus operátor dinamikáján {II,III}.

- II. A kvantumosan számolt optikai vonalak spektrális helyzete megegyezik a szemiklasszikus modellen belül kapott eredményekkel, és a klasszikus háromlépcsős modell legalább kvalitatívan elfogadható magyarázatot ad a magasrendű harmonikusok megjelenési sorrendjével kapcsolatban {I,V}.

Ugyanakkor a kvantumoptikai modellen belül számított páros harmonikus vonalak gyakran lényegesen intenzívebbek, mint azt a klasszikus számítások jósolják, és a kezdeti feltételektől való függés is különbséget mutat. Ennek kvalitatív magyarázatát analitikusan, alacsonyrendű perturbáció-számítás segítségével adtam meg.

- III. A felharmonikus sugárzás mindig tartalmaz préselt állapotú módusokat (a páratlan harmonikusok általában gyengén préseltek), amely módusok száma, és a préseltség mértéke erősen függ a gerjesztési paramétereiktől. Részletes vizsgálatot a monokromatikus gerjesztés esetére végeztem. A $\delta\omega = 0$ -ot teljesítő paraméterek választása erősen préselt páros felharmonikus sugárzást eredményez, míg a $\delta\omega$ maximalizálása anti-préselt páros felharmonikusokra vezet {IV}.

- IV. Általánosságban igaz, hogy (triviális oszcillációktól eltekintve) a páratlan felharmonikus módusokat gyakorlatilag Poissoni fotonszám-eloszlás jellemzi. Kvantumoptikai szempontból különleges tulajdonságokat páros felharmonikus vonalokhoz rendelhetünk, melyek a paramétereiktől és a kölcsönhatás idejétől függően lehetnek szub-, vagy szuper-Poissoni fotonstatisztikájúak $\{I, IV\}$.

Különösen érdekes – a nem-klasszikus állapotú felharmonikusok létrehozása szempontjából – a monokromatikus gerjesztés, speciálisan a $|\delta\omega|$ -t lokálisan maximalizáló paraméterekkel. Ilyen esetekben a páros felharmonikus módusok lényegében csak a vákuum- és az 1-foton állapotokat foglalják el a Fock-térben.

Fontos megjegyezni, hogy a $|\delta\omega| = 0$ másik speciális esete annak felel meg, hogy a páros felharmonikusok kezdetben szub-Poissoni statisztikájúak, mely szuper-Poissonira nő.

- V. A páratlan-felharmonikus fotonok közötti, szokásos módon definiált korrelációk gyakorlatilag mindig egységnyi értékűek, függetlenül a gerjesztési és kölcsönhatási paramétereiktől. Hasonlóképpen, a páros és a páratlan felharmonikus fotonok között jelentős antikorrreláció mutatkozik minden általam vizsgált esetben.

Ugyanakkor a páros felharmonikus fotonok közötti korrelációk a paramétereiktől és a gerjesztés típusától függően egyaránt lehetnek egység fölöttiek, vagy közel nullák.

Monokromatikus gerjesztések esetében, ha $|\delta\omega| = 0$, a mező páros rendű felharmonikusaiból álló részhalmazát erős kollektív módus-módus keresztkorrelációk jellemzik, míg a módusokhoz egyenként jelentősen préselt kvantumállapot rendelhető. A maximális $|\delta\omega|$ -nak megfelelő paraméterek megválasztásával a felharmonikus mező páros rendű részhalmazát kollektíven erős antikorrrelációk jellemzik, míg a módusok egyenként erősen nem-klasszikus kvantumállapotban vannak. Analitikus számításom azt mutatja, hogy az antikorrrelációk nem-klasszikus összefonódásoknak feleltethetők meg $\{IV\}$.

Összefoglalva:

- A szemiklasszikus modellen belül meghatároztam a legfontosabb spektrális paraméter függését a gerjesztési és anyagi paramétereiktől, melyek elsősorban a páros felharmonikusok tulajdonságait befolyásolják.
- Egy másik megközelítésből (kvantumozott gerjesztés, klasszikus felharmonikusok) azt tapasztaltam, hogy a kölcsönhatás visszahatása a gerjesztés kvantumállapotára nem változtatja meg jelentősen a harmonikus spektrumot.
- Ez alátámasztja a HHG azon modelljét, melyben a szórt sugárzás kvantálva van, míg a gerjesztés klasszikus.
- A fundamentális, legegyszerűbb anyagi rendszerre vonatkozó modellen belül (a paramétereiktől függően) a magasrendű felharmonikusok keltés lehet erősen préselt, vagy szub-Poisszoni fotonstatisztikájú páros felharmonikusok forrása.

A következtetések kísérleti ellenőrzése, illetve esetleges alkalmazása olyan elrendezésekkel lehetséges, mint amilyenekkel a hiper-Raman vonalak jelenlétét kimutatták (4). Ilyen kísérleti elrendezés egyben szélessávú nem-klasszikus fényforrásként is funkcionálhat.

5. Tézisekkel kapcsolatos publikációk

- {I} Gombkötő Ákos, Czirják Attila, Varró Sándor, Földi Péter:
Quantum-optical model for the dynamics of high-order-harmonic generation, (2016)
Phys. Rev. A **94**, 013853
MTMT: 3099077
- {II} Gombkötő Ákos, Varró Sándor, Mati Péter, Földi Péter:
High-order harmonic generation as induced by a quantized field:
Phase-space picture, (2020)
Phys. Rev. A **101**, 013418
MTMT: 31142304
- {III} Földi Péter, Magashegyi István, Varró Sándor, Gombkötő Ákos:
Describing high-order harmonic generation using quantum optical models (2021)
Photonics **8**(7), 263
MTMT: 32119823
- {IV} Gombkötő Ákos, Földi Péter, Varró Sándor:
Quantum-optical description of photon statistics and cross correlations in high-order harmonic generation (2021)
Phys. Rev. A **104**, 033703
MTMT: 32210288
- {V} Gombkötő Ákos, Varró Sándor, Keresztes Zoltán, Gábor Bence, Földi Péter:
A magasfelharmonikus-keltés kvantumoptikai vonatkozásai, (2021)
Szimposium a hazai kvantumelektronikai kutatások eredményeiről,
pp. 64-68.
MTMT: 32024350

6. Egyéb publikációk

- (1) Gy. Farkas and Cs. Tóth:
Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases (1992)
Phys. Lett. A **168**, 447
- (2) S. Varró:
Quantum Optical Aspects of High-Harmonic Generation (2021)
Photonics **8**(7), 269
- (3) N. Tsatrafyllis, I. K. Kominis, Ivan Gonoskov, Paris Tzallas:
High-order harmonics measured by the photon statistics of the infrared driving-field exiting the atomic medium (2017)
Nature Communications **8**(1):15170
- (4) E. Bloch, B. Samuel, D. Dominique, P. Stéphane, L. François, A. Magunov, M. Yann, S. Vasily:
Hyper-Raman Lines Emission Concomitant With High-Order Harmonic Generation (2019)
New Journal of Physics **21**(7)
- (5) A. Gorlach, O. Neufeld, N. Rivera, O. Cohen, I. Kaminer:
The quantum-optical nature of high harmonic generation (2020)
Nature Communications **11**(1):4598
- (6) You, Y., Yin, Y., Wu, Y. et al.:
High-harmonic generation in amorphous solids (2017)
Nat. Comm. **8**, 724
- (7) G. Ndabashimiye, S. Ghimire, M. Wu, D. Browne, K. Schafer, M. Gaarde, D. Reis:
Solid-state harmonics beyond the atomic limit (2016)
Nature, vol. **534**, 520-523

- (8) Á. Gombkötő:
Quantum optical properties of degenerate hyper-Raman lines appearing in high harmonic generation emitted by two-level systems
(In preparation)
- (9) Á. Gombkötő, S. Varró, P. Mati, P. Földi:
Kvantált elektromágneses térrel keltett felharmonikusok,
Fizikai szemle **2020/6**
- (10) P. Földi:
A magas felharmonikusok keltésének kvantumoptikai leírása,
Fizikai szemle **2017/10**
- (11) Á. Gombkötő:
Solutions of the Ortvay Rudolf International Competition in Physics:
Exploding Refrigerator (2016/10 Problem) (2021)
The Physics Educator Vol. **03**, 2120002