

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

**Ultragyors fotoemissziós folyamatok
nanolokalizált elektromágneses terekben**

Dombi Péter

MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont

Budapest

2016

A kutatások előzménye

A fotoemisszió (más néven külső fotoeffektus, fényelektromos hatás) folyamata Heinrich Hertz és Wilhelm Hallwachs közel 130 éves kísérleti eredményei (Hertz, 1887), Lénárd Fülöp további felfedezései (Lenard, 1902) és Albert Einstein 1905-ös értelmezése (Einstein, 1905) óta jól ismert fizikai jelenség. Amennyiben az elektron fémfelületről történő kilépési munkáját a felületre érkező foton energiája fedezni tudja, elektronkibocsátás történik. A fémek tipikusan 5 eV körüli kilépési munkáját az ennél nagyobb energiájú ultraibolya fotonok tudják a legkönnyebben fedezni, ezért fotoáramot leginkább az ibolyán túli fényvel lehet előállítani.

A lézerek megjelenésével azonban elég nagy fényintenzitást lehetett elérni ahhoz, hogy olyan, ún. sokfotonos folyamatokat is meg lehessen figyelni, ahol több foton egyidejű kölcsönhatására van szükség ahhoz, hogy elektronkibocsátás (vagy bármilyen más elektromos átmenet) történjen (Voronov és Delone, 1966). A sokfotonos folyamatok, a fotoionizáció és az ehhez kapcsolódó jelenségek atomokon és molekulákon történő megfigyelése és értelmezése nagy hagyománnyal bír a fény-anyag kölcsönhatással foglalkozó atomfizikusok körében. Az anyaggal kölcsönható lézer intenzitását növelve a szokásos sokfotonos folyamatokon túlmutató, további fontos felfedezések is születtek, mint például a küszöbfeletti fotoionizációé (Agostini et al., 1979). Magasabb lézerintenzitásoknál az atomi vagy a fémfelületi potenciált a lézerimpulzus tere olyan jelentősen torzítani tudja, ami akár lehetővé teszi az elektron alagutazással történő kilépését is. Az ilyen folyamatok vizsgálata a nyolcvanas évek végén elvezetett a magasrendű felharmonikusok felfedezéséhez (Ferry et al., 1988), ezen keresztül pedig – tíz évvel az első javaslat (Tóth és Farkas, 1992) publikálása után – az attoszekundumos folyamatokkal foglalkozó tudományterület kísérleti ágának megszületéséhez (Hentschel et al., 2001). A sokfotonos emisszióhoz szükségesnél nagyobb intenzitásnál lejátszódó folyamatokra az „erős-tér kölcsönhatások” (strong-field interactions) elnevezést használja a kutatói közösség.

A fizikai intuíció és a kvantummechanika törvényei szerint a lézer-atom kölcsönhatásoknak megfelelő folyamatoknak kell lejátszódnuk akkor is, amikor a lézernyaláb fémfelülettel hat kölcsön. Az analóg folyamatok (sokfotonos, küszöbfeletti és alagút-fotoemisszió) kimutatását azonban megnehezítette, illetve sok esetben ellehetetlenítette az, hogy az atomokkal és molekulákkal ellentétben itt a kölcsönhatás nem egy izolált kvantummechanikai rendszerrel, hanem egy kiterjedt szilárdtesttel történik. A kísérleteknél, még ha ultranagy vákuumot és tökéletesen adszorbeátummentes, egykristály-fémfelületet használunk, akkor sem tekinthetünk el olyan kollektív hatásoktól, mint például a fémbeli elektronok együttes válasza a gerjesztésre vagy tértöltési effektusok a fotoemisszió után. A fizikai alapjelenségek vizsgálatához ezért olyan új kísérleti megközelítések kellettek, mint például a nanoemitterek (nanotűk) és kevés optikai ciklusból álló lézerimpulzusok használata. Ezekkel aztán meglepően későn, a 2010-es években vált lehetővé például a küszöbfeletti

fotoemisszió elsőként megvalósított teljesen tiszta és egyértelmű kimutatása (Krüger et al., 2011).

Lézerterek nagy térbeli és/vagy időbeli lokalizációja tehát mind a fizikai alapjelenségek vizsgálata mind az alkalmazások szempontjából igen nagy jelentőséggel bír. Az elektromágneses tér energiáját az impulzuskompressziós módszerek továbbfejlesztésével sikerült időben koncentrálni. A különböző impulzusösszenyomási módszereknek a femtoszekundumos lézertechnológiában nagy hagyományai vannak és jelenleg is aktív kutatások zajlanak ezek továbbfejlesztésére.

Elektromágneses tereknek a hullámhossznál kisebb térbeli tartományra történő koncentrálására is léteznek ismert módszerek az optikai tartományban, melyek főleg ún. felületi plazmonokhoz köthetők. A felületi plazmonok a fémfelületi töltéssűrűség kollektív oszcillációi, melyek legcélszerűbben fénnel történő gerjesztéssel hozhatók létre. A felületi plazmon kvázirészecske elektromágneses térrel való csatolása esetén beszélnek felületi plazmon polaritonról. Ennek további érdekes tulajdonsága, hogy a felülethez kötött, evanescens jellege miatt az elektromágneses tér hullámhossza alatti lokalizációt tesz lehetővé. Az elektromágneses tér koncentrációja miatt másik fontos jellemzőjük a plazmonkeltéssel együtt járó ún. térnövekmény („field enhancement”), mely során akár a gerjesztő fény térerősségének több százszorosa is megjelenhet pl. plazmonikus nanorészecskék közvetlen közelében (Schuller et al., 2010). A két (extrém időbeli és térbeli) lokalizációs tulajdonság egyidejű kihasználására azonban kevés példát találunk, a femtoszekundumos és szub-femtoszekundumos ultragyors fizika vizsgálatainak homlokterében eddig főleg atomok és molekulák álltak.

Felületi plazmonoknak két fontos fajtája létezik. Haladóhullámként létrehozhatók kiterjedt fém vékonyrétegen, ezeket haladó felületi plazmonnak (HFP) nevezik és fénnel történő gerjesztésük csak egyedi geometriával oldható meg speciális diszperziós relációjuk miatt. Töltésszétválasztást fém nanorészecskékben is lehet indukálni, a rezonáns töltéssűrűség-oszcilláció adott részecskeméret és –geometria mellett szintén rezonánsan meghajtható külső fénnel. Az így keltett oszcillációra és az ehhez kapcsolódó elektromágneses térre a szakirodalomban a lokalizált felületi plazmon (LFP) kifejezést használják.

Fenti tulajdonságaik miatt felületi plazmonok a tudomány és technika számos területén találtak alkalmazást. Fontos szerepet játszanak a felület által erősített Raman-spektroszkópia („surface enhanced Raman spectroscopy,” SERS) jelszintjének sok nagyságrenddel történő növelésében (Nie és Emory, 1997), hatékony bioszenzorok előállításában (Anker et al., 2008), optoelektronikai alkalmazásokban (Koller et al., 2008; Falk et al., 2009) vagy akár napelemek hatásfokának növelésében is (Atwater és Polman, 2010).

A felületi plazmonok térnövekménye és nanolokalizációs tulajdonsága egy további, eddig kevésbé kiaknázott lehetőséget is magában hordoz. Egy néhány tízszeres

térnövekménnyel együtt járó ezerszeres helyi intenzitásnövekedés lehetővé teszi azt, hogy ún. erős-tér fény-anyag kölcsönhatási folyamatokat a szokásos erősített lézerrendszerek helyett akár egyszerű femtoszekundumos lézeroszillátorokkal hozzunk létre. Ennek egyik korai demonstrációját jelenti az a kísérlet, melyben fémfelületi fotoáramok akár három-négy nagyságrenddel történő növelését észlelték felületi plazmonkeltés hatására (Tsang et al., 1991). Felületi plazmonok elektromágneses terében továbbá a fotoemittált elektronok hatékony gyorsítási folyamatát is demonstrálták (Zawadzka et al., 2001; Kupersztych et al., 2001; Irvine et al., 2004).

Az ígéretes kezdeti kísérletek után a lehetőségek kiaknázása az ultragyors tudomány és a plazmonika eszközeinek és módszereinek együttes felhasználásában rejlett. Jelen értekezésben többek között erre is bemutatok számos kísérletet, melyekkel elsőként sikerült erős-tér plazmonikai alapjelenségeket demonstrálnom. Az ezen a téren 2005/2006-tól kezdeményezett kutatásaimmal és a véghezvitt jelentős laborfejlesztésekkel nemcsak az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont femtoszekundumos kísérleti kapacitásait fejlesztettem tovább, hanem két fontos, korszerű kutatási irányt is meghonosítottam. Egyrészt a femtoszekundumos lézertechnológiára épülő ultragyors tudomány területén végzett alapkutatásokat kezdtem meg, jól kiegészítve az Intézetben már meglévő femtoszekundumos lézer- és tükrőfejlesztési hagyományokat, valamint a (nano- és pikoszekundumos) fény-anyag-kölcsönhatási jelenségek kutatását. Másrészt országosan is elsőként az ultragyors nanooptika tudományterületén folytattam kísérleteket, melyek, mint azt az alábbiakban bemutatom, hazai kísérletek, valamint Budapesten fejlesztett műszerekkel végzett mérések eredményeinek magas impaktú folyóiratban (Nano Letters, Scientific Reports) történő közzétételét tették lehetővé.

Célkitűzések

A kutatásaim kezdetekor terjedtek el az olyan lézerek, illetve lézerrendszerek, amelyek először tudtak az optikai periódusidővel összemérhető impulzushosszat biztosítani (Brabec és Krausz, 2000; Dombi et al., 2004). Ilyen, ún. kevésciklusú impulzusok esetén a fény-anyag-kölcsönhatási jelenségeket már nem lehet a szokásos módon, az impulzusburkoló által meghatározottnak tekinteni, hiszen a burkoló helyett a tényleges optikai hullámforma játssza a meghatározó szerepet (Brabec és Krausz, 2000). Ennek első példáit a lézeres atomfizikai kutatások (pl. attoszekundumos impulzusok előállítás) során fedezték fel. A kétezres évek elején ezért még nem voltak ismertek olyan kísérleti eredmények, melyek az extrém rövid (kevésciklusú) lézerimpulzusok és szilárdtestek kölcsönhatását tárgyalták volna.

Felületi plazmonok keltése a lézer-szilárdtest-kölcsönhatások egy különösen is érdekes esetét jelentik. A már bemutatott, a tér-nanolokalizációval és sokszoros

térnövekménnyel kapcsolatos lehetőségek, valamint a minden korábbinál rövidebb lézerimpulzusok megjelenése felvetették a fény egyidejű tér- és időbeli koncentrációjának lehetőségét a hullámhosszal/periódusidővel összemérhető skálán. Fotoelektronok kibocsátása és azok nanométeres skálán megvalósuló oszcillációja pedig éppen ennek a tartománynak a szondázását ígérte. Ezért célul tűztem ki azt, hogy a legkorszerűbb lézerrendszerekkel, kevés optikai ciklusból álló lézerimpulzusokkal vizsgáljam a felületi plazmonok által erősített fotoemisszió és elektrongyorsítás folyamatát.

A fenti alapkérdés több részproblémára bontható. Természetesen merül fel, hogy lehetséges-e kevés optikai ciklusból álló lézerimpulzusokkal összemérhetően rövid időtartamú felületi plazmon hullámcsomagokat kelteni. Ilyen hullámcsomagok felhasználása hasonló áttörést hozhat az integrált és nanooptikában, mint amit a kevés optikai ciklusú impulzusok megjelenése hozott a lézerfizikában, új tudományterület (az attofizika) megjelenését téve lehetővé. Miként lehet az ilyen extrém rövid felületi impulzusokat helyesen karakterizálni? Kevés optikai ciklusú impulzusok segítségével lehetséges-e plazmonos alagútemissziót indukálni fémfelületekről, valamint ultrarövid plazmon-hullámcsomagokkal hatékonyan lehet-e a fotoelektronokat keV-os energiáig gyorsítani a fémfelület nanométeres környezetében? Ezen kérdések megválaszolásához korszerű fényforrásokhoz adaptált új kísérleti módszereket is ki kellett dolgoznom.

A kapcsolódó felületi plazmonos fotoemissziós és elektrongyorsítási jelenségeket korábban komplikált numerikus modellekkel vizsgálták, melyek a Maxwell-egyenletek közvetlen numerikus megoldásán alapultak (Irvine et al., 2004). A kísérletek mellett ezért részfeladatnak tűztem ki egy egyszerű modell felállítását, amely a haladó felületi plazmonter fenomenologikus leírásán alapul. Ez a numerikus végeselem, valamint véges differencia-módszerek használatát szükségteenné teszi. Fontos volt, hogy az egyszerűsítések mellett a felületi plazmonos elektronemissziós és elektrongyorsítási folyamatokról helyes képet kapjak, és a kísérletek során észlelt fizikai jelenségek hátterét is fel tudjam tární. A modell segítségével tehát céлом volt a felületi plazmonos elektrongyorsítás alapjelenségeinek a vizsgálata, pl. hogy ez a folyamat mennyire felel meg a ponderomotoros elektrongyorsításról alkotott klasszikus képnek.

A felületi plazmonok kutatásának alapkérdései mellett nem lehetett figyelmen kívül hagyni a lézerfizika ezzel párhuzamos rohamos fejlődését sem. Szintén a kétezres években jelent meg egy olyan femtoszekundumos lézerfizikai megoldás, amely számos más alkalmazási lehetőség mellett az ultragyors plazmonikai környezethez is ideálisnak bizonyult. A femtoszekundumos lézerek széles választékából ugyanis hiányzott egy olyan fényforrás, amely nagy (legalább kb. 100 kHz-től több MHz-ig terjedő) ismétlési frekvenciával biztosít a közönséges lézeroszcillátorokénál lényegesen nagyobb energiájú (több száz nJ-os) lézerimpulzusokat. Ez az impulzusparaméter-tartomány nem csak a nemlineáris plazmonikai kísérletek és mérőmódszerek terén jelent hatalmas előrelépést, hanem későbbi ultragyors integrált optikai elemek (pl. nanoméretű optikai

tranzisztorok) fejlesztésének fontos eszközét nyújtja. Kb. 15 éve ismert, hogy a kérdéses impulzusparamétereket speciális, hosszú rezonátoros titán-zafir és (később) itterbium-alapú lézeroszcillátorokkal lehet elérni, azonban az impulzusenergia skálázását és a rezonátoron kívüli impulzusösszenyomást a legelső ilyen lézerekkel nem valósították meg. Ezért céлом volt ún. hosszú rezonátoros titán-zafir lézeroszcillátor építése és a plazmonikai kísérletek érdekében történő továbbfejlesztése, valamint impulzusainak összenyomása újonnan elérhető nemlineáris száloptikai elemekkel. Ebben a témakörben nem hagytam figyelmen kívül a lézerfizikai kutatásokból adódó, ám az ultragyors plazmonika területén kívül eső alkalmazási lehetőségeket sem. Céluul tűztem ki továbbá olyan lézerfizikai fejlesztéseket is, amelyek a hosszú rezonátoros lézerek által megszabott paramétertartományon kívül eső, kevés ciklusú lézerimpulzusok hatékony összenyomását valósítják meg. Az erre épülő fényforrásokkal a későbbiekben integrált nanooptikai, nanoplazmonikai rendszerek minden korábbinál gyorsabb működtetését lehet megvalósítani.

A haladó felületi plazmonokkal végzett femtoszekundumos kísérletek természetes továbbvitele a vizsgálatok kiterjesztése plazmonikus nanorészecskékre is. Ezeknek a már bemutatott, sokoldalú felhasználása a spektroszkópiában, szenzorikában és fotovoltáikában különleges aktualitást ad az ilyen kísérleteknek. Plazmonikus nanorészecskék a lézerimpulzus energiájának mindhárom térkoordináta mentén történő nanolokalizációját lehetővé teszik, továbbá a későbbiekben az elektromos tér amplitúdóeloszlásának hatékony formálását is nyújthatják. Céloom volt tehát plazmonos fotoemissziós kísérletek elvégzése plazmonosan rezonáns és nemrezonáns nanorészecskékkel annak megválaszolásához, hogy a felületi plazmonok elektromágneses tere közvetlenül felel-e a fotoemissziós és fotoelektrongyorsítási folyamatért. A kísérleti eredményeket megfelelő modellel összevetve szándékoztam az itt szerepet játszó fizikai jelenségeket tisztázni azért, hogy a későbbiekben ezeket a jól karakterizált nanolokalizált tereket, illetve elektromos tranzienseket alkalmazások céljára is felhasználhatóvá tegyem.

Mivel mind az alagútemisszióba történő átmenet, mind az elektronok átlagos oszcillációs energiája kedvezően skálázódik a hullámhossz növelésével, ezért céluul tűztem ki a felületi plazmonos fotoemisszió és elektrongyorsítás vizsgálatát a rohamos fejlődésen keresztülment közép-infravörös femtoszekundumos fényforrásokkal is. Fém nanotűk precíz, relatív pozicionálásának megvalósításával pedig olyan, két nanoemitterből álló rendszert szándékoztam megvalósítani, amely ultrarövid lézerimpulzusokkal megvilágítva nanoméretben lejátszódó nemlineáris jelenségek vizsgálatára alkalmas, és mintegy demonstrációs eszközként nanoméretű vákuumdiódként is szolgál.

Vizsgálati módszerek

A vizsgálatokhoz számos olyan technológiai újításra volt lehetőségem építeni, melyek az elmúlt években forradalmasították a femtoszekundumos lézertechnológiát. Ezek közé tartoznak azok a korszerű impulzusösszenyomási módszerek, melyekkel i) kevés optikai ciklusból álló, 4-6 fs-os lézerimpulzusokat lehet előállítani vagy akár közvetlenül a lézeroszcillátorban, vagy erősített lézerrendszerek kimenetén (főleg csúcstechnológiás diszperziókompenzáló tükrök felhasználásával (Brabec és Krausz, 2000)), illetve ii) melyekkel ezen extrém rövid impulzusoknak nemcsak a burkolóját, hanem a hullámformáját (ún. vivő-burkoló fázisát) is kézben lehet tartani (Dombi et al., 2004). Kísérleteimhez, a felületi plazmonok keltéséhez és karakterizálásához 5 fs-os impulzusokat biztosító fázisstabilizált titán-zafír oszcillátort, többutas erősítőt és kapillárisos impulzuskompresszort használtam 6,5 fs-os, 1 mJ-os impulzusokkal. Impulzuskompressziós kísérleteimhez továbbá fehér szuperkontinuumot biztosító kettős kapillárisos elrendezést és extrém nagy sáv szélességű autokorrelátort vettem igénybe.

A fázisstabilizált lézereken kívül felhasználtam és továbbfejlesztettem olyan újfajta titán-zafír lézereket is, melyek korábban nem ismert paramétertartományban működve nagy ismétlési frekvenciával (néhány MHz) biztosítanak viszonylag nagyenergiájú, 100-800 nJ-os femtoszekundumos lézerimpulzusokat, mely a hagyományos titán-zafír oszcillátorokhoz képest két nagyságrendnyi növekedést jelent. Ez az új lézertípus, mely a rezonátor meghosszabbítására és újfajta diszperziókompenzálásra épít, különösen alkalmas bármilyen felületi plazmonos erősítő-jelenség vizsgálatára. Ennek oka, hogy a plazmonos térnövekményt is figyelembe véve ez a lézer elég nagy csúcsintenzitást biztosít a vizsgálandó folyamatokhoz, a nagy ismétlési frekvencia pedig a mérések gyors elvégzését teszi lehetővé, hagyományos kHz-es lézerekhez képest nagyságrendekkel hatékonyabban. Ilyen lézerek a 2000-es évek elején jelentek meg, és részben a bemutatandó fejlesztéseknek köszönhetően néhány éve már kereskedelmi forgalomban is beszerezhetők. Kísérleteimhez részben egy ilyen, 500 nJ-os, 55 fs-os impulzusokat 5,1 MHz ismétlési frekvenciával adó lézert részben pedig egy saját építésű, konfigurációtól függően kb. 200 nJ-os impulzusokat 3,4 MHz-es ismétlési frekvenciával adó lézert használtam 60-80 fs közti impulzushosszal.

A felhasznált fényforrások esetén egy harmadik fontos fejleményt is sikerült kihasználnom. A közép-infravörös lézerforrások jelenleg megfigyelhető rohamos fejlődése a lézerfizika történetében szinte csak a titán-zafír lézerek kilencvenes évek eleji gyors elterjedéséhez mérhető. A femtoszekundumos működésre és erősítésre alkalmas lézeryanyagok közép-infravörös tartománybeli hiánya miatt olyan új megközelítések váltak dominánssá, melyek parametrikus erősítési architektúrákra építenek ebben a hullámhossztartományban. Ennek köszönhetően olyan femtoszekundumos források állnak rendelkezésre, melyek korábban elképzelhetetlenül alacsony impulzushosszakkal biztosítanak nagy ismétlési frekvenciájú erősített

impulzusokat. Kísérleteimhez ezért egy, a barcelonai Fotonikai Tudományok Intézete (ICFO) által biztosított, ott épített közép-infravörös parametrikus erősítőt is használtam (Chalus et al., 2010), mely 3,1 μm -es hullámhosszal 90 fs-os, 3,8 μJ -os impulzusokat szolgáltatott 100 kHz-es ismétlési frekvenciával.

A plazmonikus minták készítése során két alapvető technológiára támaszkodtam: haladó felületi plazmonokhoz vékonyrétegeket vákuumpárológatással állítottam elő, míg nanorészecskéket elektronnyaláb-litográfias módszerrel készítettem több együttműködés keretében, amelyek részben a litográfias berendezéshez történő hozzáférésemet is biztosították. Fém nanotűket is magam készítettem a célul kitűzött kísérletekhez azzal az elektrokémiai maratási eljárással, melyet pásztázó mikroszkópiai módszereknél alkalmazott tűk készítésére is lehet használni. A fotoemittált és plazmontérben gyorsított elektronok detektálására a kísérletek egy részében egy saját építésű ellentéres elektronspektrométert használtam, máskor pedig egy kereskedelemben beszerezett, 5-1000 eV-os elektronok detektálására optimalizált repülési idő spektrométert.

A kísérletek során az ultragyors tudomány olyan alapvető mérőmódszereit is kiaknáztam és továbbfejlesztettem mint például a lézerimpulzusok időtartamának meghatározására szolgáló autokorrelációs módszer, valamint különböző nemlineáris száloptikai jelenségek és módszerek. Hosszú rezonátoros lézerek impulzusainak összenyomásánál különösen hasznosnak bizonyultak a 2000-es években piacra került nagy módusfelületű fotonikus optikai szálak. Ezek a magot körülvevő fotonikus struktúrának köszönhetően még akár 40-50 μm -es magátmérő mellett is egymódusú terjedést biztosítanak a rajtuk áthaladó lézerimpulzusoknak, ezáltal különösen is alkalmasak az általam használt speciális paramétertartományban működő lézerek impulzusainak spektrális és/vagy időbeli átalakítására.

Új tudományos eredmények

A rendelkezésemre álló, illetve az általam fejlesztett eszközöknek köszönhetően, és az alapkutatói célkitűzéseimnek megfelelően az ultragyors nanoplazmonika és az ilyen típusú alkalmazásokra optimalizált femtoszekundumos fényforrások kutatása területén végeztem fény-anyag-kölcsönhatási és lézerfizikai kísérleteket, valamint kisebb részben elméleti kutatásokat. Az ezeken a tudományterületeken végzett kutatásaim a következő önálló tudományos eredmények megszületéséhez vezettek:

1. tézispont Kísérleti módszert dolgoztam ki ultrarövid, néhány fs-os felületi plazmon hullámcsomagok időbeli tulajdonságainak vizsgálatára, és bizonyítékot szolgáltatam arra, hogy kevés optikai ciklusú lézerimpulzusok olyan kevés ciklusú plazmon-hullámcsomagokat tudnak keltetni, melyek kezdeti időtartama összemérhető az azokat keltő lézerimpulzusok időtartamával [T1]. Ezáltal egy új lehetőséget mutattam

meg arra vonatkozóan, hogy miként lehet a lézerfény energiájának extrém térbeli és időbeli lokalizációját egyidejűleg megvalósítani.

2. tézispont Elsőként végeztem kísérleteket kevés optikai ciklusból álló lézerimpulzusokkal történő, felületi plazmonok által erősített elektrongyorsításra vonatkozóan egy saját építésű ellenteres elektronspektrométerrel [T1]. Bebizonyítottam, hogy ennek során is hatékony, akár a keV-os tartományig terjedő energiájú elektronok hozhatók létre a hullámhossz által meghatározottnál kisebb kiterjedésű, 200-300 nanométeres térrészben [T1,T2]. A folyamat vivő-burkoló fázisérzékenységet azonban a kiterjedt forrás és a felület érdekessége elmossa.

3. tézispont A felületi plazmonos fotoemisszió és elektrongyorsítás jelenségeinek elemzésére és magyarázatára egyszerű, háromlépéses modellt állítottam fel, amely i) a haladó felületi plazmonhullám terének egyszerű és pontos analitikus meghatározásán, ii) a fotoáram tér- és időbeli eloszlásának különböző intenzitástartományokban történő modellezésén, valamint iii) a kilépett elektronok mozgásegyenleteinek numerikus megoldásán, és elektronspektrumok és -szögeloszlások meghatározásán alapul [T3,T4]. A modellre épülő numerikus szimulációk a jelentősen számításigényesebb modellekkel közel azonos eredményeket adtak. Felismertem, hogy erősen lokalizált elektromágneses térben az elektronok gyorsítása nem a megszokott skálatörvényeket követi, amit a háromlépéses modell alkalmazása széles paramétertartományban jól megerősített [T5].

4. tézispont (A) Felületi plazmonok vizsgálatánál különösen előnyös olyan lézerek felhasználása, melyek nagy ismétlési frekvenciával bocsátanak ki viszonylag nagyenergiájú, ultrarövid lézerimpulzusokat. Ezért továbbfejlesztettem az ún. hosszú rezonátoros titán-zafír lézeroszillátorokat az elérhető impulzusenergia növelése érdekében [T6], illetve a különösen is kritikus diszperziókompenzációs lépést egyetlen tükörrel oldva meg [T7], mely egyszerűbb oszcillátorarchitektúrát tett lehetővé, és a lézer stabilabb működését eredményezte.

(B) Hosszú rezonátoros titán-zafír lézerrel új spektrális kiszélesítési és impulzusösszenyomási sémákat valósítottam meg, részben az ún. nagy módusfelületű fotonikus kristály optikai szálakat kihasználva, melyekkel 70 fs-os nagyenergiás (~200 nJ) oszcillátorimpulzusok akár 15 fs-ra nyomhatók össze [T8,T9]. Ennek kapcsán felfedeztem a csörpkonverzió jelenségét, mely optikai szálak impulzuskompresszorok hatékony teljesítményskálázását és egyszerű impulzusösszenyomást tesz lehetővé [T10].

(C) Felismertem, és megmutattam továbbá, hogy az ilyen típusú lézeroszillátorok tetszőlegesen nagyméretű optikai elemek teljes apertúrájának reflexió- és diszperzióhomogenitásának érzékeny tesztelésére is felhasználhatók [T11].

5. tézispont (A) A 4. tézispontban bemutatott lézerfejlesztések felhasználásával elsőként mutattam ki kísérletileg plazmontér által indukált erős-tér fotoemisszió jelenségét fém nanorészecskék esetén [T12]. Lokalizált felületi plazmonok még a haladó felületi plazmonoknál is erősebb elektromágneses térlokalizációt tesznek

lehetővé, ezáltal erős-tér folyamatokat a hullámhossz által meghatározottnál kisebb térrészre koncentráltan, kis intenzitások mellett, nagy ismétlési frekvenciájú lézerekkel lehet kelteni. Ez a fajta megközelítés később pl. ultragyors, szub-PHz-es optikai kapcsolók demonstrálásánál lesz fontos, ahol erős nemlinearitásokat kihasználva kell alacsony szintű jeleket feldolgozni.

(B) Az erős, nanolokalizált elektromágneses térben hatékony elektrongyorsítást észlelve azt tapasztaltam, hogy a maximális elektronenergia a lokalizált plazmont keltő lézertér intenzitásával lineárisan skálázódik [T12]. Ezért modellt állítottam fel plazmonikus nanorészecskékről keltett elektronok vizsgálatára, mellyel a bemutatott mérési eredmények értelmezését sikerült megvalósítanunk. Ennek köszönhetően azt is bebizonyítottam, hogy a mért elektronspektrumok nagyenergiájú végét nanométeres hosszon történő ponderomotoros elektrongyorsítási folyamatok határozzák meg [T12]. A modell kiterjesztésével pedig ki tudtuk mutatni, hogy kevés optikai ciklusú impulzusokat szolgáltató fényforrásokkal miként lehet kevés ciklusú plazmonoszillációkat kelteni, valamint hogy az ezek által keltett fotoemisszióknak az optikai térrel (vivő-burkoló fázissal) történő, mérhető kontrolljára praktikusán csak egyciklusú lézerimpulzusokkal nyílik lehetőség [T13].

6. tézispont Közép-infravörös tartományban működő femtoszekundumos lézerrendszerrel végzett kísérleteim során példátlanul alacsony intenzitás ($<1 \text{ GW/cm}^2$) mellett mutattam ki erős-tér fotoemissziót haladó felületi plazmonok terében [T14, T15]. Az elektronok kinetikus energiájának hullámhossz szerinti négyzetes skálázását kihasználva, lényegesen nagyobb energiájú elektronokat keltettem így, mint az ultragyors tudományban bevett titán-zafír lézerekkel, hiszen már 1 GW/cm^2 fókuszált lézerintenzitással haladó felületi plazmont keltve akár több tíz eV-os elektronokat is észleltem [T14, T15].

7. tézispont Hatékony laboratóriumi módszert dolgoztam ki egymással szembe fordított nanotűk piezopozicionálókkal történő reprodukálható közelítésére, melynek segítségével megalapoztam egy nanoméretű, működő ultragyors vákuumdióda-elrendezést [T16]. Kísérleteim alapján optimális közelítési módszernek a következő bizonyult. Két, vákuumba helyezett, szembefordított nanotűre egyenfeszültséget kapcsoltam, majd az egyik tű síkbeli, laterális pásztázásával mértem a tűk közti áramot. Felismertem, hogy az áram eloszlásának a félértékisélessége egyértelmű, lineáris kapcsolatban áll a tűtávolsággal 100 nm alatti távolságokig [T16]. Az erre a módszerre épülő kísérleti elrendezést femtoszekundumos lézerimpulzusokkal meghajtva sikerült 1 ps alatti időtartammal áramot indukálnunk a két nanotű között, melyet a nanotűk fordított előfeszítésével meg lehet szüntetni.

8. tézispont Bebizonyítottam, hogy újfajta, időtartományban optimalizált fáziskorrigáló („csörpölt”) tükörrel 5 fs-nál rövidebb időtartamra lehet lézerimpulzusokat összenyomni [T17]. Az ilyen típusú tükrök még jelentős spektrális csoportkésleltetés-oszcilláció esetén is optimális impulzuskompressziót biztosítanak

még akkor is, ha az összenyomandó lézerimpulzus spektruma közel oktáv szélességű. Ennek a megoldásnak a továbbfejlesztése jelentősen hozzájárult kevés optikai ciklusú lézerimpulzusok stabil, széles körű előállításához. Így a későbbiekben olyan kompakt, minden korábbinál rövidebb impulzusú lézerforrást is létre lehet hozni nagy (GHz) ismétlési frekvenciával, amellyel integrált nanooptikai, nanoplazmonikai rendszerek minden eddiginél gyorsabb működését lehet demonstrálni.

Az eredmények gyakorlati hasznosulása

A 4(A)-(C) és az 5(A)-(B) tézispontokban hivatkozott hosszú rezonátoros titán-zafír lézeroszcillátorok, melyeknek kutatásában és fejlesztésében a kezdetektől fogva részt vettem, időközben a Femtolasers GmbH termékévé váltak, a piacra bevezetett több változatból a legnagyobb energiájú mintegy 650 nJ-os impulzusokat biztosít 4 MHz ismétlési frekvenciával és 50 fs-os impulzushosszal, amennyiben rendelkezésre áll 15 W pumpáló lézerteljesítmény. Hosszú rezonátoros titán-zafír és itterbium-alapú lézerek kimenetének nagy magátmérőjű fotonikus kristály szálakban megvalósítható spektrális kiszélesítésével, és impulzusaik összenyomásával kapcsolatos eredmények szintén termékfejlesztéshez vezettek a több csoport által folytatott kísérleteknek és az ezekről megjelent közleményeknek köszönhetően. A Femtolasers GmbH (jelenleg már a Newport-Spectra Physics cégcsoport részeként) XS néven forgalmaz egy erre épülő kiegészítőt, mellyel hosszú rezonátoros oszcillátorok impulzusait 15 fs-os időtartamra lehet összenyomni akár 350 nJ-os impulzusenergia mellett.

A 4. és 5. tézispontbeli eredményekhez vezető budapesti fényforrásfejlesztésnek és a nanooptikai mérőeszközök és laboratórium kiépítésének nem kis részben köszönhetően az ezeket magukba foglaló infrastruktúrát „Wigner Femtoszekundumos Lézerlaboratórium (FEMTOLAB)” néven országos Stratégiai Kutatásai Infrastruktúrájának nyilvánították. Ennek a laboratóriumnak továbbá a Laserlab Europe hálózat társult tagi státuszát ítelték meg 2012-ben, Budapesten azóta is az egyetlen ilyen laboratóriumként. A laboratóriumot üzemeltető kutatócsoport pedig Magyarországon elsőként „Max Planck Partnersoport” státuszt nyert el a német Max Planck Társaságtól 2014-ben. Továbbá az egyedülálló, MHz-es ismétlési frekvenciájú titán-zafír lézeroszcillátorra alapozva egyedi lézeres teszttárolást építettünk femtoszekundumos optikai komponensek roncsolási küszöbének vizsgálatára. Ennek köszönhetően az ilyen optikai elemek gyártásában vezető Layertec GmbH a budapesti laboratóriumban vizsgálta be újonnan fejlesztett tükröit, így az ultragyors tükrök technológiájának fejlesztéséhez is hozzájárultam.

Az 1-3., valamint az 5-6. tézispontokban bemutatott eredmények a felületi plazmonok erős-tér kölcsönhatásainak vizsgálatára irányulnak, ezért főleg alapkutatási természetűek. Az alkalmazások és gyakorlati hasznosulás a kutatási láncolat végén jelenik majd meg. A kutatásaim eredményei hosszabb távon elvezethetnek

elektromágneses terek nanométeres tartományban történő méréséhez a felületen újraszóródó elektronok segítségével. A mérési elv működőképességének első, durva demonstrációját a közelmúltban publikálták (nemplazmonikus) nanotűk segítségével (Thomas et al., 2013), mellyel a nanotű 1 nm-es környezetében megvalósuló átlagos térnövekmény mértékét tudták meghatározni. Plazmonikus közelterek ennél pontosabb, térben is felbontott vizsgálata és pontos mérése nagy szerepet fog a jövőben játszani a felületi plazmonok minden egyes, már jelenleg is létező alkalmazásában a fotovoltáikától kezdve a szenzorikán át egészen a spektroszkópiai alkalmazásokig.

Általánosabban nézve a vizsgált fizikai folyamatokat, a közeli jövőben elképzelhető olyan, plazmonkeltés kapcsán lejátszódó nemlinearitások kihasználása, melyekkel THz-PHz közötti frekvenciával optikai jeleket lehet kapcsolni integrált nanooptikai struktúrák segítségével. Ennek megvalósítása közelebb vihet optikai frekvencián működő tranzisztorok építéséhez, melyekkel a számítástechnikai jelfeldolgozás sebessége nagyságrendekkel megnövelhető lesz.

Az eredmények abban a tágabban vett értelemben is hasznosultak, hogy az elmúlt években több áttekintő cikk és könyvfejezet írására is felkértek. Ezek a következők:

1. P. Dombi, „Ultrafast nanoplasmonic photoemission” az „*Ultrafast Dynamics Driven by Intense Light Pulses*” c. könyvben (szerk.: M. Kitzler, S. Graefe), pp. 205-231, ISBN 978-3-319-20172-6, Springer (2016).
2. P. Dombi, A. Y. Elezzabi, „Ultrafast strong-field plasmonic phenomena” az „*Attosecond Nanophysics*” c. könyvben (szerk.: P. Hommelhoff, M. Kling), pp. 39-86, ISBN 978-3-527-41171-9, Wiley (2015).
3. P. Dombi, „Surface plasmon-enhanced photoemission and electron acceleration with ultrashort laser pulses” az „*Advances in Imaging and Electron Physics*” sorozatban (szerk.: P. Hawkes), vol. **158**, pp. 1-26, Elsevier (2009).

Irodalmi hivatkozások

- (Agostini et al., 1979) P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, N. K. Rahman, „Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms,” *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127-1130 (1979).
- (Anker et al., 2008) J. N. Anker, W. P. Hall, O. Lyandres, N. C. Shah, J. Zhao, R. P. Van Duyne, „Biosensing with plasmonic nanosensors,” *Nature Mater.* **7**, 442-453 (2008).
- (Atwater és Polman, 2010) H. A. Atwater, A. Polman, „Plasmonics for improved photovoltaic devices,” *Nature Mat.* **9**, 205-213 (2010).

- (Brabec és Krausz, 2000) T. Brabec, F. Krausz, „Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics,” *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545-591 (2000).
- (Chalus et al., 2010) O. Chalus, A. Thai, P. K. Bates, J. Biegert, „Six-cycle mid-infrared source with 3.8 mJ at 100 kHz,” *Opt. Lett.* **35**, 3204–3206 (2010).
- (Dombi et al., 2004) P. Dombi, A. Apolonski, Ch. Lemell, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, Th. Udem, K. Torizuka, J. Burgdörfer, T. W. Hänsch, F. Krausz, „Direct measurement and analysis of the carrier-envelope phase in light pulses approaching the single-cycle regime,” *New J. Phys.* **6**, 39 (2004).
- (Einstein, 1905) A. Einstein, „Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt,” *Ann. Phys.* **322**, 132–148 (1905).
- (Falk et al., 2009) A. L. Falk, F. H. L. Koppens, C. L. Yu, K. Kang, N. de Leon Snapp, A.V. Akimov, M.-H. Jo, M. D. Lukin, H. Park., „Near field detection of optical plasmons and single-plasmon sources,” *Nature Phys.* **5**, 475-479 (2009).
- (Ferray et al., 1988) M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, C. Manus, „Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases,” *J. Phys. B – At. Mol. Opt. Phys.* **21**, L31-L36 (1988).
- (Hentschel et al., 2001) M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, „Attosecond metrology,” *Nature* **414**, 509-513 (2001).
- (Hertz 1887) H. Hertz, „Über den Einfluss des ultravioletten Lichtes auf die elektrische Entladung,” *Ann. Phys.* **267**, 983–1000 (1887).
- (Irvine et al., 2004) S. E. Irvine, A. Dechant, A. Y. Elezzabi, „Generation of 0.4-keV Femtosecond Electron Pulses using Impulsively Excited Surface Plasmons,” *Phys. Rev. Lett.* **93**, 184801, (2004).
- (Koller et al., 2008) D. Koller, A. Hohenau, H. Ditlbacher, N. Galler, F. Reil, F. R. Aussenegg, A. Leitner, E. List, J. R. Krenn, „Organic plasmon-emitting diode,” *Nature Photon.* **2**, 684-687 (2008).
- (Krüger et al., 2011) M. Krüger, M. Schenk, P. Hommelhoff, „Attosecond control of electrons emitted from a nanoscale metal tip,” *Nature* **475**, 78-81 (2011).
- (Kupersztych et al., 2001) J. Kupersztych, P. Monchicourt, M. Raynaud, „Ponderomotive Acceleration of Photoelectrons in Surface-Plasmon-Assisted Multiphoton Photoelectric Emission,” *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5180-5183, (2001).
- (Lenard, 1902) P. Lenard, „Über die lichtelektrische Wirkung,” *Ann. Phys.* **313**, 149–198 (1902).

(Nie és Emory, 1997) S. Nie, S. R. Emory, „Probing Single Molecules and Single Nanoparticles by Surface-Enhanced Raman Scattering,” *Science* **275**, 1102-1106 (1997).

(Schuller et al., 2010) J. A. Schuller, E. S. Barnard, W. Cai, Y. C. Jun, J. S. White, M. L. Brongersma, „Plasmonics for extreme light concentration and manipulation,” *Nature Mater.* **9**, 193-204 (2010).

(Thomas et al., 2013) S. Thomas, M. Krüger, M. Förster, M. Schenk, P. Hommelhoff, „Probing of Optical Near-Fields by Electron Rescattering on the 1 nm Scale,” *Nano Lett.* **13**, 4790-4794 (2013).

(Tóth és Farkas, 1992) C. Tóth, G. Farkas, „Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases,” *Phys. Lett. A* **168**, 447-450 (1992).

(Tsang et al., 1991) T. Tsang, T. Srinivasan-Rao, J. Fischer, „Surface-plasmon field-enhanced multiphoton photoelectric emission from metal films,” *Phys. Rev. B* **43**, 8870-8878, (1991).

(Voronov és Delone, 1966) J. S. Voronov, N. B. Delone, „Many-photon ionization of the xenon atom by ruby laser irradiation,” *Sov. Phys. JETP* **23**, 54-58 (1966).

(Zawadzka et al., 2001) J. Zawadzka, D. Jaroszynski, J. J. Carey, K. Wynne, „Evanescent-wave acceleration of ultrashort electron pulses,” *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2130-2132, (2001).

A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

[T1] **P. Dombi**, S. E. Irvine, P. Rácz, M. Lenner, N. Kroó, G. Farkas, A. Mitrofanov, A. Baltuska, T. Fuji, F. Krausz, A. Y. Elezzabi, „Observation of few-cycle, strong-field phenomena in surface plasmon fields,” *Opt. Express* **18**, 24206-24212 (2010).

[T2] P. Rácz, S. E. Irvine, M. Lenner, A. Mitrofanov, A. Baltuska, A. Y. Elezzabi, **P. Dombi**, „Strong-field plasmonic electron acceleration with few-cycle, phase-stabilized laser pulses,” *Appl. Phys. Lett.* **98**, 111116 (2011).

[T3] **P. Dombi**, P. Rácz, „Ultrafast monoenergetic electron source by optical waveform control of surface plasmons,” *Opt. Express* **16**, 2887 (2008).

[T4] **P. Dombi**, P. Rácz, B. Bódi, „Surface plasmon-enhanced electron acceleration with few-cycle laser pulses,” *Laser and Part. Beams* **27**, 291-296 (2009).

[T5] P. Rácz, **P. Dombi**, „Non-ponderomotive electron acceleration in ultrashort surface plasmon fields,” *Phys. Rev. A* **84**, 063844 (2011).

- [T6] S. Naumov, A. Fernandez, R. Graf, **P. Dombi**, F. Krausz, A. Apolonski, „Approaching the microjoule frontier with femtosecond laser oscillators,” *New J. Phys.* **7**, 216 (2005).
- [T7] **P. Dombi**, P. Rácz, M. Lenner, V. Pervak, F. Krausz „Dispersion management of femtosecond laser oscillators with highly dispersive mirrors,” *Opt. Express* **17**, 20598-20604 (2009).
- [T8] **P. Dombi**, P. Antal, J. Fekete, R. Szipócs, Z. Várallyay „Chirped-pulse supercontinuum generation with a long-cavity Ti:sapphire oscillator,” *Appl. Phys. B* **88**, 379 (2007).
- [T9] J. Fekete, P. Rácz, **P. Dombi**, „Compression of long-cavity Ti:sapphire oscillator pulses with large-mode-area photonic crystal fibers,” *Appl. Phys. B* **111**, 415-418 (2013).
- [T10] **P. Dombi**, P. Rácz, L. Veisz, P. Baum, „Conversion of chirp in fiber compression,” *Opt. Lett.* **39**, 2232-2235 (2014).
- [T11] P. Rácz, B. J. Nagy, K. Ferencz, **P. Dombi**, „Intracavity Herriott-cell tested for large-aperture femtosecond optics,” *Laser Phys. Lett.* **11**, 125805 (2014).
- [T12] **P. Dombi**, A. Hörl, P. Rácz, I. Márton, A. Trügler, J. R. Krenn, U. Hohenester, „Ultrafast strong-field photoemission from plasmonic nanoparticles,” *Nano Lett.* **13**, 674-678 (2013).
- [T13] P. Földi, I. Márton, N. Német, V. Ayadi, **P. Dombi**, „Few-cycle plasmon oscillations controlling photoemission from metal nanoparticles,” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 013111 (2015).
- [T14] S. M. Teichmann, P. Rácz, M. F. Ciappina, J. A. Perez-Hernández, A. Thai, J. Fekete, A. Y. Elezzabi, L. Veisz, J. Biegert, **P. Dombi**, „Strong-field plasmonic photoemission in the mid-IR at $<1 \text{ GW/cm}^2$ intensity,” *Sci. Rep.* **5**, 7584 (2015).
- [T15] **P. Dombi**, „Ultrafast nanoplasmonic photoemission” in: *Ultrafast Dynamics Driven by Intense Light Pulses* (szerk.: M. Kitzler, S. Graefe), pp. 205-231, ISBN 978-3-319-20172-6, Springer (2016).
- [T16] T. Higuchi, L. Maisenbacher, A. Liehl, **P. Dombi**, P. Hommelhoff, „A nanoscale vacuum-tube diode triggered by few-cycle laser pulses,” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 051109 (2015).
- [T17] **P. Dombi**, V. S. Yakovlev, K. O’Keeffe, T. Fuji, M. Lezius, G. Tempea, „Pulse compression with time-domain optimized chirped mirrors,” *Opt. Express* **13**, 10888-10894 (2005).