

Válasz Dr. Koppa Pál bírálataira

Ezúton szeretném megköszönni Dr. Koppa Pál professzor úrnak az értekezésem alapos átolvasására szánt időt, pozitív bírálói véleményét és releváns kérdéseit. Az alábbiakban először a 7. tézisponttal kapcsolatos észrevételre válaszolok, utána pedig a feltett kérdésekre.

A 7. tézispont megítélésem szerint új tudományos eredményt tartalmaz, hiszen a szakirodalomban nem található példa nanotűk egymáshoz történő közelítésének a téremissziós áram mérésén alapuló módszerére. Tehát az általam kidolgozott, demonstrált és validált módszer „egymással szembe fordított nanotűk piezopozicionálókkal történő reprodukálható közelítésére” megfelel az eredmények újdonságával kapcsolatban támasztott követelménynek, hiszen az újdonság nem a piezopozicionálókban rejlik (ami jelen esetben egy nem túl lényeges technikai részlet), hanem a közelítés visszacsatolási mechanizmusán, amely a két tű között, x-y pásztázással mérhető áramprofil félértékszélességének meghatározásán alapul. A módszer lényegét a tézispont második felében összefoglaltam és a dolgozat 8.5 ábráján mutattam be. A módszerem nincs kapcsolatban „pl. lézer fényének üvegszála csatolásával,” már csak azért sem, mert még 4-5 mikrométer magátmérőjű, egymódusú szálaknál sem szükséges az az 50 nm alatti laterális és tengelyirányú pozicionálási reprodukálhatóság, amit a nanotűk közötti téremissziós egyenáram mérése biztosít (ld. a disszertáció 8.5 ábrája). Mindezek alapján úgy gondolom, hogy a tézispont megfogalmazása, mondat szerkesztése vélhetően félreértésre adott okot, így a 7. tézisemnek az alábbiakban megadom a kissé részletesebb, ám a lényeget változatlanul hagyó megfogalmazását. Egyúttal pedig kérem a bírálót, hogy a tézispontot a fenti tisztázás és az itteni pontosított megfogalmazás figyelembevételével szintén új tudományos eredményként ismerje el.

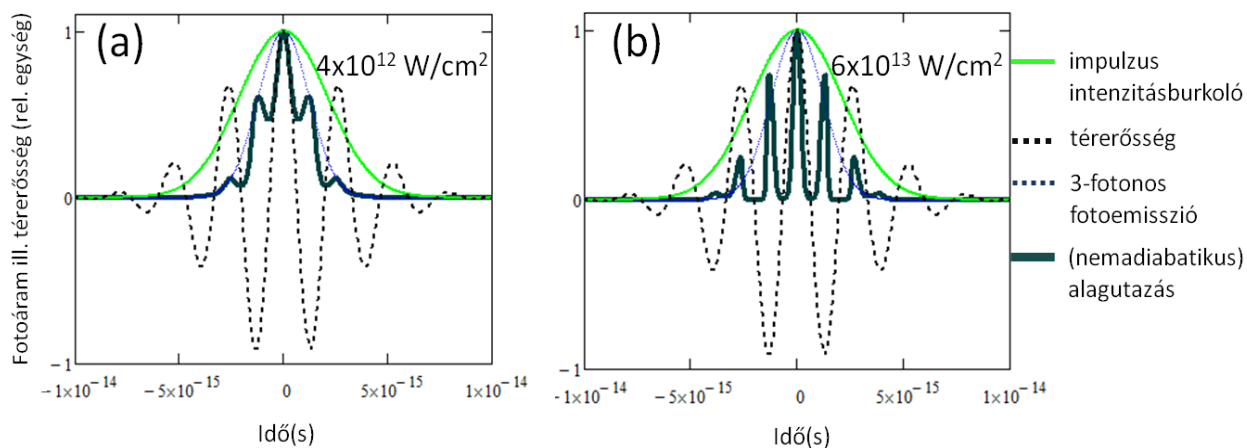
„7. tézispont Hatékony laboratóriumi módszert dolgoztam ki egymással szembe fordított nanotűknek a tűk közötti téremissziós áramprofil meghatározására épülő reprodukálható közelítésére, melynek segítségével megalapoztam egy nanoméretű, működő ultragyors vákuumdióda-elrendezést. Kísérleteim alapján optimális közelítési módszernek a következő bizonyult. Két, vákuumba helyezett, szembefordított nanotűre egyenfeszültséget kapcsoltam, majd az egyik tű síkbeli, laterális (piezopozicionálókkal történő) pásztázásával mértem a tűk közti áramot. Felismertem, hogy az áram eloszlásának a félértékszélessége egyértelmű, lineáris kapcsolatban áll a tűtávolsággal 100 nm alatti távolságokig. 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.”

Természetesen igaz az az állítás is, hogy így demonstrálni tudtunk egy nanoméretű, működő ultragyors vákuumdióda-elrendezést, amit az általam kidolgozott laboratóriumi módszerre építve sikerült megvalósítani.

1. kérdés: „Jelölt dolgozatában sokfotonos és alagúteffektuson alapuló emisszióval kibocsátott elektronokat is vizsgál. Kérdés, hogy közepes intenzitástartományban meghatározható-e a két folyamat valószínűségének aránya, és a különböző módon kibocsátott elektronok kísérleti módszerekkel megkülönböztethetők-e?”

A kérdés egy, az erős-tér kölcsönhatások szakirodalmában jelenleg is intenzíven vizsgált problémát érint. A jelenséget a dolgozatban is bemutatott Keldis-féle szám (γ) alapján lehet paraméterezni. $\gamma \gg 1$ esetben egyértelmű a többfotonos, $\gamma < 1$ -nél pedig az alagutazási emissziós csatorna.

A két egyértelmű eset közti átmeneti intenzitástartományban viszont nem beszélhetünk az egyes mechanizmusok valószínűségéről, hanem egy olyan, mindkét eset jellemzőit hordozó köztes folyamatról, amelyet a szakirodalom egy részében „nemadiabatikus alagutazásnak” is neveznek [1], jól kifejezve az ebben az intenzitástartományban lejátszódó érdekes emissziós folyamat kettős természetét. Ennek illusztrálására, a köztes folyamatot leíró elmélet [1] alapján bemutatom az intenzív lézertér által keltett többfotonos, nemadiabatikus alagutazási valamint tiszta alagutazási fotoáram időfüggését az 1. ábrán. Az 1(a) ábra vastag görbéje mind a teret követő alagutazási mind a burkolót követő többfotonos folyamat jellegzetességeit hordozza ("nemadiabatikus alagutazás"). Nagyobb intenzitások felé a fotoáram folytonosan megy át a tiszta (adiabatikus) alagutazási esetben (ld. 1(b) ábra).



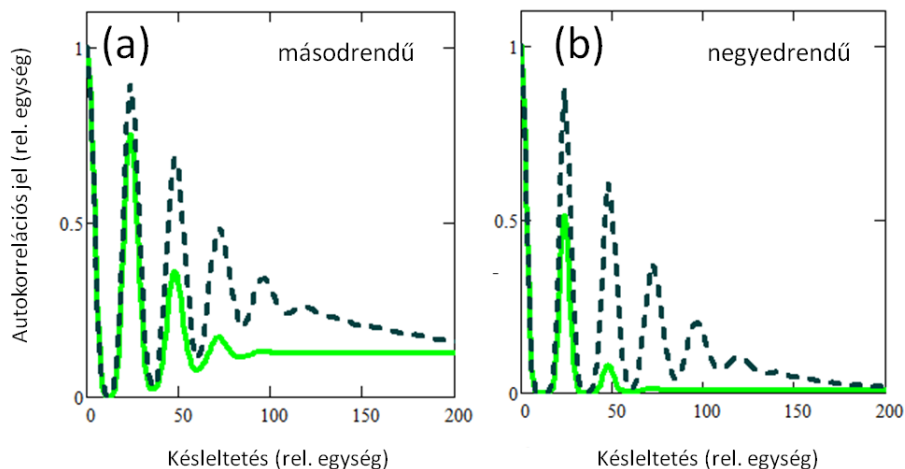
1. ábra (a) A fotoáram időbeli lefutása (vastag vonallal) 800 nm-es központi hullámhosszal rendelkező, 5 fs-os gaussi lézerpulzusra, $4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ -es *lokális* csúcshintenzitás mellett (Keldis-gamma: 3,2), a többfotonos illetve az alagutazási tartomány közti átmenet esetén. **(b)** Ugyanez $6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ -es *lokális* csúcshintenzitásra (Keldis-gamma: 0,83).

2. kérdés: „A jelölt 3.2 fejezetben megmutatja, hogy az általa felépített autokorrelációs kísérletben az elektronemisszió tipikusan 4-fotonos folyamat, amellyel negyedrendű autokorrelációs függvényt kap. Diskutálja az új módszer előnyeit a hagyományos alacsonyabb rendű korrelációméréshez képest!”

Ugyan a dolgozatban ezt a járulékos előnyt nem mutattam be részletesen, de a magasabb rendű korrelációmérés valóban számos előnyt biztosít a leginkább megszokott másodrendű autokorrelációhoz képest. Egyrészt a negyedrendű autokorreláció sokkal érzékenyebb a lézerpulzus, vagy esetünkben a plazmon-hullámcsomag bármilyen típusú fázistorzulására, melyet a 2. ábrán illusztrálok egy 5 fs-os lézerpulzus egyszerű példáján. A bemutatott (45 cm-es, levegőben történő terjedésnek megfelelő) fázistorzulás mind az oszcillációs csúcsok között mind az oszcilláló tartomány kiterjedésében lényegesen nagyobb különbséget eredményez a negyedrendű autokorreláció esetén (ld. 2(b) ábra). Ha ezen felül még a laboratóriumi munka során megszokott zajforrásokat is figyelembe vesszük, akkor egyértelműen a magasabbrendű korreláció esetén diagnosztizálható könnyebben a fázistorzulás.

A fotoemissziós korrelációmérés azonban nem csak optikai hullámcsomagok jellemzésére alkalmas, hanem pl. az elektron kilépése során esetlegesen megjelenő, véges élettartamú köztes állapotok azonosítására, amelyek befolyásolják a folyamat dinamikáját [2]. Ezt a kérdéskört az időbontott többfotonos fotoemisszió szakirodalmában részletesen is bemutatja [2]. A fotoemissziós (vagyis magasabb nemlinearitású) autokorrelációra épülő kísérleti technikát a közelmúltban kiterjesztették lokalizált plazmonok dinamikájának térben is feloldott vizsgálatára fotoelektron-

emissziós mikroszkóppal (PEEM-mel) [3]. Ezzel az új módszerrel a plazmontér lokális dinamikája szondázható. A módszer jelentős előnye a hagyományos korrelációméréshez képest, hogy nanoskálán feloldott dinamikai információt lehet nyerni nanooptikai közelterekről.



2. ábra (a) Számolt másodrendű és **(b)** negyedrendű autokorrelációs függvények gaussi, 5 fs-os, 800 nm-es központi hullámhosszal rendelkező lézerimpulzusokra, csak a pozitív késleltetést bemutatva. A folytonos görbék a transzformációkorlátozott esetet mutatják be. A szaggatott görbék esetén csekély, 8 fs^2 csoportkésleltetés-diszperziót adtam az impulzusokhoz, ami 45 cm-es levegőbeli terjedésnek felel meg. A két görbe közti különbség nagyobb a negyedrendű esetben.

3. kérdés: „Jelölt állítása szerint az autokorrelációs kísérlet pontosságát a felület nanométeres skálán mért egyenletlensége korlátozza. Lehetséges-e mesterséges nanostrukturálással pontosabb eredményt elérni?”

Az általam használt kísérleti konfigurációban a haladó plazmonhullámokat biztosító felület mesterséges nanostrukturálásával lehetséges pontosabb eredmény elérni mégpedig egy kimondottan érdekes speciális esetre vonatkozóan. Ha ugyanis a felületre periodikusan olyan nanorészecskéket helyezünk, amelyeken kelthető lokalizált plazmonoscilláció a felületi haladóhullámhoz tud csatlakozni, akkor ezeken a felületi nanorészecskéken elérhetők olyan „forró pontok,” melyeknél a térerősség lényegesen meghaladja a felület bármely egyéb pontjában mérhető. Ekkor a fotoemisszió erős nemlinearitása miatt a mért autokorrelációs jelet elsősorban az ilyen „forró pontokból” kilépő elektronok adják majd, így ezzel a módszerrel az elektromos térnek a legnagyobb térerősségű pontokban végbemenő dinamikája mérhető.

A mesterséges nanostrukturálás mellett egy másik lehetőség is elképzelhető, mégpedig ugyanennek a kísérletnek elvégzése atomi szinten sík, superpolírozott szubsztrátra készített vékonyréteggel. Ebben az esetben a kísérlet során az értekezés 3.4(b) ábrája vörös görbéjének megfelelő rövidségű autokorrelációs jel várható.

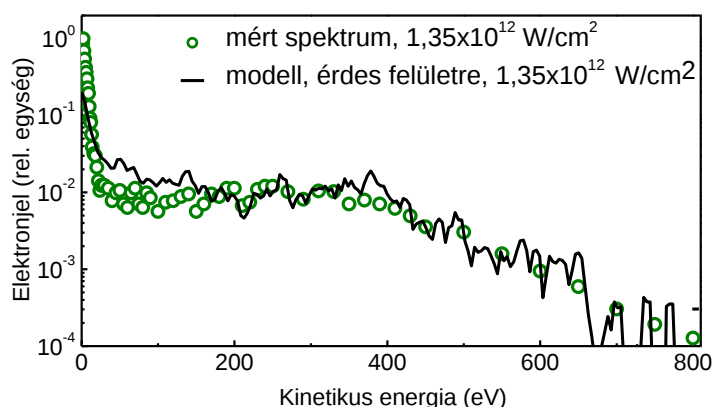
4. kérdés: „A 4.3 fejezetben vizsgált, haladó felületi plazmon terét leíró analitikus modell és a referenciaként használt numerikus modell eredménye jó kvalitatív egyezést mutat (ld. 4.6. és 4.7 ábrák), ugyanakkor jól észrevehető, hogy a numerikus modell a tengelyes szimmetriától eltérést mutat. Minek köszönhető az aszimmetria, és megfigyelhető-e az emittált elektronok pályájánál?”

Az aszimmetria a teljes visszaverődés miatt megjelenő evanescens térnek köszönhető, amit az is alátámaszt, hogy az elektromágneses térre vonatkozó numerikus modellekben hasonló jelenség akkor is megjelenik, amikor aranyréteg nélküli üvegfelületről történő totálreflexiót tekintünk. Plazmon haladóhullámok esetén tehát az észlelt jelenséget a plazmontér és a totálreflexió miatt megjelenő tér

szuperpozíciója okozza. Ezt a jelenséget a saját analitikus elektrongyorsítási modellben az általánosság megtartása érdekében nem vettük figyelembe, hiszen ez a dolgozat 4.10 és 4.11 ábráinak tanúsága szerint a modellezett elektronspektrumok karakterisztikus alakjában eltérést nem okoz.

5. kérdés: „A 4.4 fejezetben a haladó felületi plazmon terében gyorsuló elektronok spektrumát a saját analitikus modell és a referenciaként használt numerikus modell alapján diszkutálja. Miért nem hasonlítja a modellezési eredményeket az előző fejezetben megkapott kísérleti görbékhez?”

Ennek az az oka, hogy a saját analitikus modellünk nem alkalmas a felületi érdesség figyelembe vételére. A kísérleteink során viszont az derült ki, hogy a releváns jelenségek szempontjából a minták véges felületi érdességétől nem tekinthetünk el. Az analitikus modell tehát kiválóan alkalmas a folyamattal kapcsolatos kvalitatív következtetések levonására, a spektrumok reprodukálására azonban inkább a numerikus modellel nyílik lehetőség. Ez utóbbi feladatot kérésre az érdekes felület modelljét megalkotó kanadai kollégám, Scott Irvine végezte el, az ő eredményének és egy kísérleti spektrumnak az összehasonlítását mutatom be a 3. ábrán, melynek adatai azonosak a [9] publikációban közöltekkel.



3. ábra 800 nm-es központi hullámhosszal rendelkező, 6,5 fs-os lézerimpulzusokkal, $1,35 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ -es fókuszált csúcsintenzitással keltett felületi plazmonok által indukált fotoelektronok mért spektruma (zöld körök) és egy, a felületi érdességet is figyelembe vevő numerikus modellből nyerhető spektrum ugyanezen paraméterek esetén (folytonos vonal). Az adatok azonosak a [9] publikációban megjelentekkel.

Ezen túlmenően felmerült a bemutatott kísérletekhez hasonló mérések elvégzése atomi szinten sík, szuperpolírozott szubsztrátra készített vékonyréteggel, azonban ezt a kísérlet korlátozott tudományos érdekessége miatt végül is nem valósítottam meg. Ettől függetlenül az analitikus modell általános természetének köszönhetően számos érdekes jelenséget sikerült előrejeleznünk, mint például a vivő-burkoló fázisfüggő elektrongyorsítás [4], a laterálisan is nanolokalizált térbeli fotoemisszió [5] vagy a nemponderomotoros jelenségek [6], melyeket részben kísérletekkel is igazoltak a későbbiekben [7].

6. kérdés: „A 6.4 fejezetben a lokalizált felületi plazmon hatására kilépő elektronspektrumokat vizsgálja, modellezési eredményeket nagyon helyesen a kísérleti görbékhez hasonlítva, azonban a 6.5(a) ábrán a modellezett elektronspektrumokat nagyobb energiáknál elfedik a kísérleti eredmények.”

A 6.5(a) ábra ábrázolásmódja valóban nem túl szerencsés, hiszen nagy energiáknál nem látszik a folytonos görbékhez képest a szaggatott görbék helyzete. Valójában kb. 7 eV fölött a két, numerikusan számolt görbe azonos, fedik egymást. A szaggatott görbe a szokásos modellezési módszerrel nyerhető elektronokat mutatja, a folytonos görbe pedig csak a Keldis-paraméter 2-nél alacsonyabb értékeinél (nagy térerősségeknél) kilépő elektronok figyelembevételével nyerhető

spektrumokat. A 6.3 ábrával összevetve megfigyelhető, hogy a spektrum alacsonyabb energiás részeit csak akkor tudjuk jól reprodukálni, ha csak azokat az elektronokat vesszük figyelembe, amelyek a lokális Keldis-paraméter alacsonyabb értékének megfelelő térerősség mellett fotoemittálódtak, vagyis a minta „forró pontjaiból” lépnek ki. Ebből azt a következtetést vonhatjuk le, hogy a modellezés során felhasznált nemadiabatikus alagutazást is leíró fotoemissziós formula [1] alulbecsüli az alagutazási típusú emissziós események számát és fémekre csak korlátozottan használható, ahogyan arra egy közelmúltbeli tanulmányban is rámutattak [8]. Független kísérletek is alátámasztják, hogy a tisztán többfotonos és a tisztán alagutazási tartomány közötti átmenet gyorsabban lezajlik az intenzitás növelésével, mint amint azt a Yudin-Ivanov-féle nemadiabatikus alagutazási képlet [1] alapján várnánk [9,10]. Mivel azonban a többfotonos és alagutazási emissziós jelenségeket egyidejűleg máshogyan nem lehet figyelembe venni, ezért meghagytam ezt a közelítést.

7. kérdés: „A 8. fejezetben vizsgált nanoméretű, ultragyors vákuumdióda milyen alkalmazásokban lehet vetélytársa a ma használt hagyományos elektronikai eszközöknek?”

A vákuumdióda a demonstrált formában még nem alkalmas az elektronikában ezzel analóg eszköz kiváltására. Számottevő előrelépést akkor lehet elérni, ha egy ilyen eszközt integrált optikai formában, pl. üvegfelületen valósítunk meg, a szabadon terjedő nyalábot felületi plazmonnal, a hagyományos fókuszálást pedig adiabatikus nanofókuszálással [11] helyettesítve. Egy ilyen, integrált nanooptikai eszköz koncepcióját Richter Péter bírálatára adott válaszom 6. ábráján is bemutattam. Amennyiben a dióda által biztosított funkciókat (i) nanométeres méretben és (ii) az optikai frekvenciák által biztosított, akár 100 fs alatti kapcsolási időkkal meg lehet valósítani, akkor lehetővé válik az ilyen kapukra épülő optikai számítógépek építése, amely kétségkívül előnyös lenne abból a szempontból, hogy a processzorok jelenleg néhány GHz-nél megrekedt órajelét legalább a THz-es tartományig növelni lehessen [12].

Hivatkozások

- [1] G. Yudin, M. Yu. Ivanov, „Nonadiabatic tunnel ionization: Looking inside a laser cycle,” *Phys. Rev. A* **64**, 013409 (2001).
- [2] H. Petek, S. Ogawa, „Femtosecond time-resolved two-photon photoemission studies of electron dynamics in metals,” *Prog. Surf. Sci.* **56**, 239-310 (1997).
- [3] E. Marsell, A. Losquin, R. Svärd, M. Miranda, C. Guo, A. Harth, E. Lorek, J. Mauritsson, A. L. Cord, H. Xu, A. L’Huillier, A. Mikkelsen, „Nanoscale Imaging of Local Few-Femtosecond Near-Field Dynamics within a Single Plasmonic Nanoantenna,” *Nano Lett.* **15**, 6601-6608 (2015).
- [4] P. Dombi, P. Rácz, „Ultrafast monoenergetic electron source by optical waveform control of surface plasmons,” *Opt. Express* **16**, 2887 (2008).
- [5] P. Dombi, P. Rácz, B. Bódi, „Surface plasmon-enhanced electron acceleration with few-cycle laser pulses,” *Laser Part. Beams* **27**, 291-296 (2009).
- [6] P. Rácz, P. Dombi, „Non-ponderomotive electron acceleration in ultrashort surface plasmon fields,” *Phys. Rev. A* **84**, 063844 (2011).
- [7] G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde, C. Ropers, „Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion,” *Nature* **483**, 190-193 (2012).

- [8] S. V. Yalunin, M. Gulde, C. Ropers, „Strong-field photoemission from surfaces: Theoretical approaches,” *Phys. Rev. B* **84**, 195426 (2011).
- [9] 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).
- [10] R. Bormann, M. Gulde, A. Weisman, S. V. Yalunin, C Ropers, „Tip-Enhanced Strong-Field Photoemission,” *Phys. Rev. Lett.* **105**, 147601 (2010).
- [11] J. Vogelsang, J. Robin, B. J. Nagy, P. Dombi, D. Rosenkranz, M. Schiek, P. Gross, C. Lienau, „Ultrafast electron emission from a sharp metal nanotaper driven by adiabatic nanofocusing of surface plasmons,” *Nano Lett.* **15**, 4685-4691 (2015).
- [12] F. Krausz, M. I. Stockman, „Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing,” *Nature Phot.* **8**, 205-213 (2014).

Budapest, 2017. május 10.

Dombi Péter