

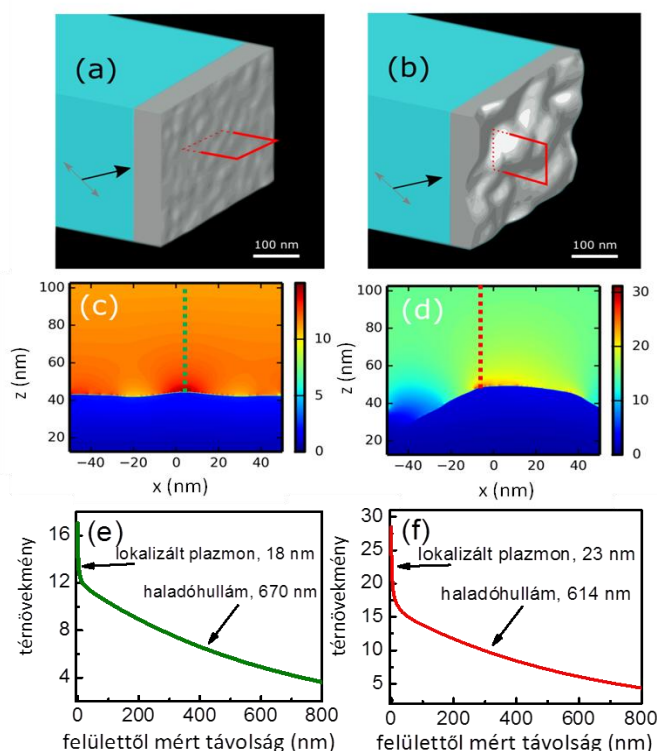
## Válasz Dr. Richter Péter bírálataira

Szeretném megköszönni Dr. Richter Péter professzor úrnak a dolgozatom gondos átolvasására szánt időt, támogató és elismerő bírálói véleményét és elgondolkodtató kérdéseit. A disszertáció fejezetbeosztása valóban nem felel meg egy az egyben a tézispontok szerinti tagolásnak, hanem inkább a szöveg önmagában való olvashatóságát tartottam szem előtt. Elnézést kérek azért, ha ezzel esetleg a bíráló dolgát szándékom ellenére megnehezítettem. A feltett kérdésekre a következő válaszokat adom:

**1. kérdés:** „A dolgozat 32. oldalán és az 1. tézispontban szerepel az állítás, hogy új lehetőséget mutatott lézerimpulzusok extrém térbeli és időbeli lokalizációjára. Számszerűen mennyire extrém térbeli a lokalizálás?”

Az 1. tézispont fém vékonyrétegen keltett plazmonhullámra vonatkozik, ezért a válaszomban elsősorban erre az esetre koncentrálok. Atomi szinten sík felület esetén felületi plazmon haladóhullám evanescens tere a felületre merőlegesen néhány száz nm-es hosszban cseng le [1], pl. 800 nm-es központi hullámhossz és 50 nm-es ezüstréteg esetén az  $1/e$  lecsengési hossz kb. 405 nm-es (1(b) ábra), 13-as térnövekmény mellett.

A minták azonban jellemzően nem rendelkeznek atomi szintű síksággal. Mivel a kísérleteim során egyértelműen látszott, hogy a kapcsolódó folyamatokban a felületi érdesség is szerepet játszik [2], ezért az várható, hogy a vékonyréteg felületi szemcséin még jobb, háromdimenziós lokalizáció is elérhető. A maximális térnövekmény értékét egy idei Nano Letters cikkünkben bemutatott módon meg is mértük [3], az a felületi érdességtől függően 17 és 31-szeres faktor közöttinek adódott. Itt a tér lokalizációja az atomi szinten sík felületnél lényegesen erősebb is lehet, mivel a felületi szemcséken a plazmon haladóhullámok lokalizált plazmonmódusokhoz csatolódhatnak. Ezt a jelenséget mutatják be a véges differencia módszerrel számolt 1(c)-(f) ábrák [3], melyek tanúsága szerint a tér lokalizációja a felületre merőlegesen a lokalizált plazmonkeltést lehetővé tevő szemcsék közelében 20 nm körüli is lehet.



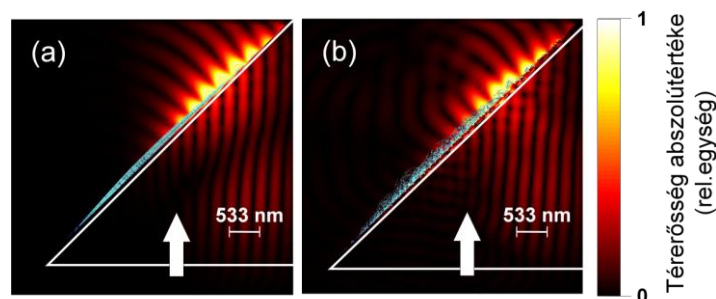
**1. ábra (a)** A plazmonbecsatolás véges differencia módszerrel modellezett geometriája 0,7 nm-es rms felületi érdességű ezüst vékonyréteggel. A metszethez használt síkot piros téglalap jelzi. **(b)** Ugyanaz, mint az (a) ábra, csak 4,7 nm-es rms felületi érdességű ezüst vékonyréteggel. **(c,d)** A 0,7 nm-es és 4,7 nm-es érdességű ezüstfelület tipikus szemcséinek közelében mérhető elektromos téramplitúdó-eloszlás. Az (e,f) ábrákon bemutatott metszetek irányát szaggatott vonalak jelzik. **(e,f)** Az elektromos tér lecsengése a felületre merőlegesen a szemcsén lokalizált és a haladó plazmonhullámok által meghatározott módon. Ábrák forrása [3].

**2. kérdés:** „A 32. oldalon a haladó felületi plazmon térnövekményt a nem atomi szinten sík felületre nagyobbak mérte, mint a sík felületre várt érték. A felület esetleges további érdesítésével ez tovább növelhető?”

Ebben a konkrét esetben a válasz igen, a nemrég kidolgozott új módszertanunk szerint ugyanis 800 nm-es gerjesztés mellett akár 31-szeres maximális térnövekmény is elérhető egy megfelelő érdességű felületen [3], ami meghaladja a disszertációban bemutatott 21,4-es értéket. A térnövekmény növelése azonban nem folytatható minden határon túl, hiszen a jelenség alapját az biztosítja, hogy a haladó plazmonhullám csatolódik a felületi szemcséken lokalizált plazmonmódusokhoz. Ez (némi leegyszerűsítve) akkor következik be, amikor a felületi plazmon hullámhossza rezonáns gerjesztést biztosít az adott szemcsén lokalizált plazmonnal, vagyis egy adott, optimális részecskeméret esetén. Akkor érhető el a legnagyobb effektív térnövekmény, ha a felületi érdesség mértéke biztosítja a lokalizált plazmon rezonanciáját az adott felületre jellemző, tipikus szemcséken, ettől eltérő (kisebb vagy nagyobb) felületi érdességnél a térnövekmény lecsökken.

**3. kérdés:** „A 38. oldalon a felületi érdesség miért mossa el az elektrongyorsításnak a lézerimpulzus vivőburkoló fázisától való függését?”

A választ a kapcsolódó tézispont alapját jelentő cikkben szereplő numerikus szimuláció adja meg [2], amelyet a dolgozatban terjedelmi okok miatt nem mutattam be külön. Az atomi szinten sík és érdes felületekről származó elektronokat a kétfajta felület közelében a mozgásegyenlet megoldásával nagy számú tesztelektron esetén könnyen meg lehet határozni. Egy adott időpillanatban a tesztelektronok pozícióit kék pontokkal mutatja be a 2. ábra. Sík felület esetén az elektronsomag jól strukturált voltát illusztrálja az elektronsomag réteges szerkezete. Ez a szerkezet már minimális felületi érdesség (2,8 nm rms) esetén is megsemmisül, kaotikus trajektóriákat eredményezve (ld. 2(b) ábra). Ez utóbbi esetben nyilvánvalóan nem várható az, hogy az elektronsomag bármilyen makroszkopikusan mérhető tulajdonságát a vivőburkoló fázissal szabályozni tudjuk.



**2. ábra** (a) Pillanatfelvétel egy prizma fűmmel bevont felűletűn Kretschmann-beccatolással gerjesztett plazmontűr eloszlásáról. A plazmontűrben gyorsított tesztelektronok pozícióját (kb. 10 fs-mal a nyaláb felűltre őrkezőse után) kék pontok jelölűk. A prizma orientációját őr a beőrkező nyalábot fehér háromszűg őr nyíl mutatja. A fűmfelűlet teljesen (atomi szinten) sík. (b) Ugyanaz, mint (a) azzal a különbsűggel, hogy a felűlet 2,8 nm rms őrdsessűgű, ami megfelel egy tipikus, vákűmpárologtatottal készűtett felűletnek. Ábra forrása: [2].

**4. kérdés:** „A 47. oldal felűletű plazmonos elektrongyorsítás leírására kidolgozott hármlűpűses modelljűnek őrdeűműyekűppen az elektron mozgására nemponderomotoros skálátűrvűnyeket kapott. Műlyen kűvetkezműnyei vannak ezeknek?”

A nemponderomotoros skálátűrvűnyek a fűny-elektron kűlcsűnhatás alapvetűen új műdját jelentűk egy bizonyos paraműtertartományban. Ennek egyik őr csak a kapcsolódó cikkűnk [4] megjűlenese után kimutatott aspektusa az elektron oszcilláló mozgásának kiiktatása egy infravűros lűzerrel megvilágított fűm nanotű kis távolsűgűn belűl lecsűngű elektromos tűrűben [5]. Ezeknek az őrdeűk skálátűrvűnyeknek fűleg az egyre inkább elterjedű kűzűp-infravűros femtoszekűndűmos lűzerek eseten lesz jelentűssűge, ahol a

lézertérbeli szabad elektron oszcillációs amplitúdója egyre inkább összemérhetővé válik a tér lecsengésével valamilyen felületi struktúra közelében [5]. Egy ilyen effektusra épülő alkalmazás a femtoszekundumos impulzussal megvilágított nanotüre épülő ultragyors elektronmikroszkópia [6]. Ez egy olyan optikai pumpa/elektronpróba módszer, melynél a lézerpulzussal valamely mintán elindított folyamatot projekciós elektronmikroszkópiával vizsgálják anyagszerkezeti szinten. Itt különösen is érdekes közép-infravörös fényforrások használata [6], melyeknél a nemponderomotoros effektusoktól már nem lehet eltekinteni.

**5. kérdés:** "71. oldal. A dolgozatban ismertetett új hosszúrezonátoros titán-zafír lézer egyik alkalmazásaként ismerteti annak femtoszekundumos optikai elemek minősítésére történő alkalmazását, nagy felületeken a reflexió és diszperzió inhomogenitásának mérésére. Mekkora ezen mérések pontossága illetve reprodukálhatósága? Befolyásolja-e a mérési eredményt az optikai elemek alakpontossága?"

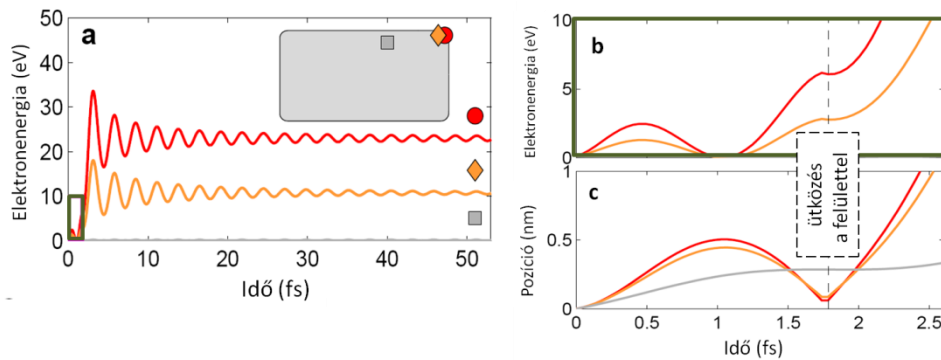
A bemutatott mérési módszer látszólag a tesztelt tükör összes lényeges paraméterét egyben vizsgálja. Azonban az esetleges reflexió inhomogenitás elsősorban a lézer kicsatolt teljesítményére, a diszperzió inhomogenitás pedig a kicsatolt impulzusok alakjára van hatással, így ez a két jellemző a tükrök megfelelő alakpontossága esetén szeparáltan mérhető. Mivel jó minőségű tükrök esetén a tesztfolyamat során csak minimális ingadozások észlelhetők a lézerteljesítményben és a spektrumban, ezért ilyenkor biztosak lehetünk abban, hogy a multiréteg reflexió és diszperzió inhomogenitása valamint az alakpontosság is megfelelő.

Érdekes felvetés, hogy az észlelt eltérésekben szerepet játszhatott-e a ~100 mm-es átmérőjű tükör esetlegesen kisebb alakpontossága, ami a gyártó (Optilab Kft.) szerint kb.  $\lambda/4$ -es értékű (ennek pontos meghatározása a nagy apertúra és a szükséges, igen nagy, 16-30 m közötti görbületi sugár miatt nem magától értetődő). Mivel a lézeroszillátor kimeneti teljesítménye ezen rosszabb minőségű tükör esetén is 3%-on belül stabil volt, így feltehető, hogy a spektrumok eltérését okozó elsődleges effektus a diszperzió inhomogenitás volt. Fontos megemlíteni, hogy mind a 75 mm-es mind a 100 mm-es tükröt ugyanaz az elismert vállalkozás készítette és a technológiai korlátot elsősorban a rétegek inhomogenitásaként azonosították. Ez a rétegzéskor a nagyméretű szubsztrát befogására használt szerszám planetáris mozgásának hiányára vezethető vissza, így feltételezhető, hogy az alakpontosság kisebb hatást gyakorol a mérési eredményekre.

A kérdés másik részére is válaszolva: a dolgozatban bemutatott ~100 mm-es átmérőjű, rosszabb minőségű tükör esetén a különböző méretű Herriott-körökkel folytatott teszteléskor a mérési eredmények jól reprodukálhatóak voltak, a spektrum és az autokorreláció szignifikánsan és azonos módon változik adott Herriott-körátmérő beállításakor.

**6. kérdés:** "A plazmonikus nanorészecskékről történő ultragyors fotoemisszió modellje alapján végzett szimulációi szerint a legnagyobb energiájú elektronok a kilépő, majd a felülettel újraütköző elektronok (82. oldal). Miért van ez?"

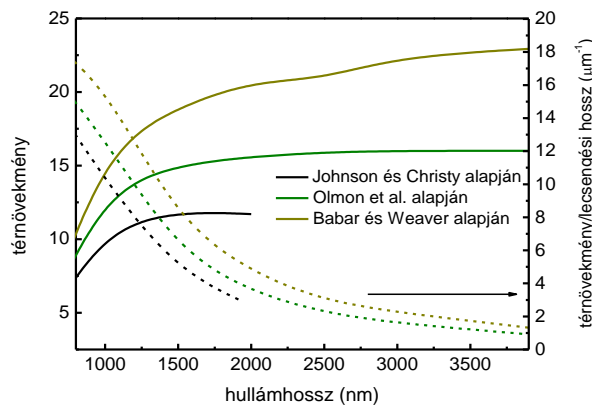
Ha a felülettel történő elasztikus újraütközés a lézertér megfelelő fázisában történik, akkor az elektron mozgás egyenletének megoldásával kimutatható, hogy maximálisan a ponderomotoros potenciál kb. 10-szeresének megfelelő elektronenergia áll elő [7]. Ez a numerikus érték a trajektóriaanalízisből következik, az effektus szemléltetését a [8] publikációhoz kapcsolódó „supporting information” dokumentumban is bemutattuk (3. ábra). Az effektus lényege, hogy ha az elektron felülettel történő elasztikus újraütközése a megfelelő időpillanatban (fázisban) történik, akkor az adott fázisú plazmontér jelentősen tovább tudja gyorsítani. Az optimális esetben számolható trajektóriából adódik a 10-es numerikus prefaktor. Ez az effektus egyébként az atomfizikai esetben (fotoionizáció és újraszóródás) is jól ismert, a küszöbfeletti ionizáció alapjelensége. 10,007-es tényező kvantummechanikai számításokkal is megerősíthető [7], ebben az esetben a jelenséget a fémfelületi potenciállépcsőhöz visszatérő elektron-hullámcsomag reflexiójaként lehet felfogni, a reflektált hullámcsomag amplitúdójából pedig (visszatérve a klasszikus képhez) az elasztikus szórás valószínűsége származtatható.



**3. ábra (a)** Plazmonikus nanorészecske sarkáról (piros), éléről (narancssárga) és felületéről (szürke) származó, a felülettel optimális fázisban újraütköző elektronok energiája, bemutatva a rugalmas szórás során nyert jelentős energiatöbbletet. **(b,c)** A mozgás kezdeti fázisának nagyítása a pillanatnyi elektronenergia szempontjából valamint az elektrontrajektóriák ábrázolása. A bekeretezett területek felelnek meg a kinagyított tartománynak.

**7. kérdés:** "A közép infravörös tartományra történő áttérés (88. oldal) a meghajtó lézerefény időbeli és térbeli koncentrációját lerontja. Kompenzálja ezt a plazmonos térnövekmény növekedése?"

A kérdésre a konkrét plazmontér-lecsengési és térnövekmény-paraméterek egyidejű vizsgálatával lehet választ adni, az ezekre a mennyiségekre használható zárt kifejezések alapján [1]. Ezek a kifejezések a dielektromos állandók hullámhosszfüggése és az arra vonatkozó eltérő irodalmi adatok alapján meglehetősen különböző, ám azonos tendenciát mutató eredményeket adnak (4. ábra). Az itt alapul vett aranyrétegre felhasznált adatok a klasszikusnak számító Johnson&Christy-cikkből [9], és két újabb adatsorból [10,11] származnak. A 4. ábrán külön ábrázoltam a térnövekményt (folytonos vonalak) és a kérdés lényegét tükröző,  $1/\mu\text{m}$  dimenziójú térnövekmény/lecsengési hossz paramétert (szaggatott vonalak). Látható, hogy míg a térnövekmény kb.  $1,5\text{-}2\ \mu\text{m}$ -es hullámhossz fölött nem nő tovább, addig a hullámhosszal növekvő lecsengési hossz miatt a lokalizáció ezen „jósági” paramétere erősen lecsökken. A szaggatott görbék alapján tehát a válasz egyértelmű „nem”.



**4. ábra (a)** Plazmonikus aranyréteg térnövekményének (folytonos) és a térnövekmény/lecsengési hossz paraméternek (szaggatott) hullámhosszfüggése [9-11] referenciák dielektromos állandói alapján.

**8. kérdés:** "A nanoméretű vákuumdióda nanotűinek pozicionálásakor a tűk közötti áram a lézeres megvilágítás mellett volt mérve? (98. oldal). Milyen lézerparaméterekkel? Milyen rövid áramimpulzusok érhetők el?"

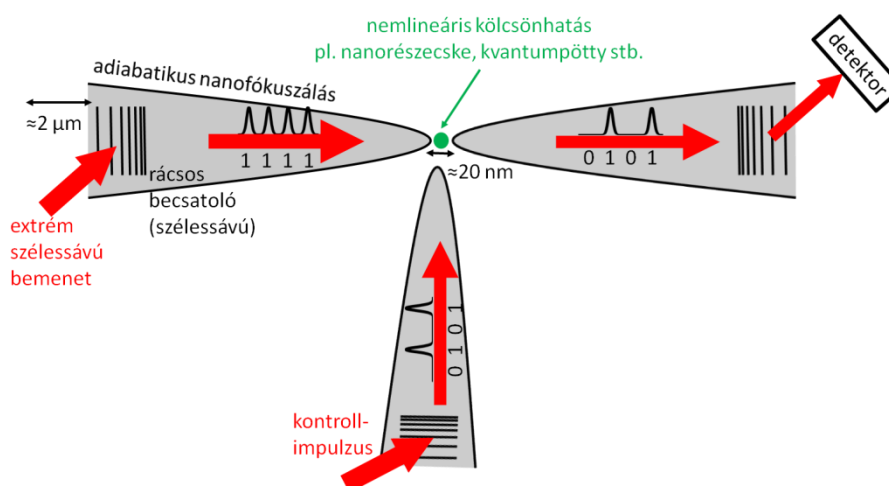
A 98-100. oldalak között leírt módszer lézeres megvilágítás nélkül, a tűkre pár száz voltig terjedő egyenfeszültséget adva nyújt lehetőséget nanotűk igen pontos relatív pozicionálására [12]. Az anódon mérhető maximális (egyen)áram a  $300\ \text{pA}$ -t nem haladhatja meg az átütés és a tűk deformálódásának elkerülése érdekében. Így tehát nem áramimpulzusokról, hanem egyenáramról van szó az említett helyen. A lézeres megvilágítás a megfelelő pozicionálás után következik.

**9. kérdés:** "Az időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükrökkel sikerült 5 fs-nál rövidebb (4,3 fs) impulzusú lézerpulzust előállítani (108. oldal). Ezzel a technikával meddig csökkenthető az impulzushossz?"

Az ebben a témakörben az elmúlt tíz évben született irodalom vizsgálata alapján elmondható, hogy az általam demonstrált impulzuskompressziós technika nemcsak úttörő jellege miatt volt fontos, hanem azért is, mert az újonnan bemutatott technológiával az abban a korban elérhető legrövidebb lézerpulzusokat demonstráltam. Későbbi, független kísérletek is igazolták az ilyen tükrökkel elérhető effektív sávszélességet, hiszen másoknak sikerült a segítségükkel 4,4 fs-os transzformációkorláttal rendelkező szuperkontinuumot 4,6 fs-os impulzusokká összenyomni [13]. Az időtartománybeli és a (spektrális) fázis-célfüggvényhez történő optimalizálási módszereket szisztematikusan összehasonlító publikáció [13] szerzői szerint jó esély van akár 3 fs-nál rövidebb impulzusok összenyomásához is az időtartománybeli módszerrel tervezett tükröket használni, hiszen ez és a hagyományos módszer az összes vizsgált esetre összehasonlítható eredményeket ad. Véleményem szerint két fő ok azonosítható, amiért a létező legrövidebb lézerpulzusok összenyomásához főleg még mindig spektrális tartománybeli fázis-célfüggvényeket használnak. Az egyik a két módszer bizonyítottan hasonló teljesítménye, a másik pedig a hagyományos tervezési módszer széleskörű hozzáférhetősége az ehhez használt programcsomagokban.

**10. kérdés:** "111. oldal. Újfajta nanooptikai áramkörök alapjaként említi az elért eredményeket. Mik lennének ezek, milyen előnyök várhatóak?"

Az optikai áramkörökkel kapcsolatban két elvárás fogalmazódik meg: (i) optikai természetüknek megfelelően ultragyors üzemmódra legyenek képesek, nagyságrendekkel meghaladva elektronikus eszközök sebességét és (ii) a kívánt funkciókat nanoméretű komponensek segítségével valósítsák meg. Míg az első feltétel a fény/plazmonhullámok esetén triviálisan teljesül, addig a második követelmény kielégítése a fény diffrakciós korlátja miatt csak felületre integrált plazmonikus komponensekkel (hullámvezetőkkel, nyálábosztókkal, interferométerekkel stb.) valósítható meg. Egy optikai tranzisztorként (ultragyors kapcsolóként) is működtethető elrendezés koncepcióját mutatom be az 5. ábrán, ahol egy felületi, plazmonikus átviteli csatorna jelét lehet egy megfelelő nemlinearitással rendelkező nanocsomópontban létrejövő kölcsönhatás segítségével modulálni. Egy ilyen elrendezés kivitelezése (az ehhez kapcsolódó számos kihívás teljesítése esetén) fontos lépést fog biztosítani logikai funkciók optikai sebességgel történő megvalósításához.



**5. ábra** Szélessávú (ultrarövid impulzusokat lehetővé tevő) integrált optikai jelátvitel és kapcsoló koncepciója (nem méretarányos). A felületre integrált vékonyított plazmon-hullámvezetőkből (szürke) szélessávú rácsokkal becsatolt optikai jelet adiabátikus nanofókuszálás után a nanocsomópontban létrehozott nemlineáris kölcsönhatással lehet szabályozni illetve kapcsolni. Egy ilyen séma megvalósítása az első lépés lehet optikai számítógép-funkciók integrált optikai kialakításának irányába.

## Hivatkozások

- [1] H. Raether, „Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings,” Springer, Berlin (1988).
- [2] 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).
- [3] P. Rácz, Z. Pápa, J. Budai, I. Márton, P. Wróbel, T. Stefaniuk, C. Prietl, J. R. Krenn, P. Dombi, „Measurement of nanplasmonic field enhancement with ultrafast photoemission,” *Nano Lett.* **17**, 1181-1186 (2017).
- [4] P. Rácz, P. Dombi, „Non-ponderomotive electron acceleration in ultrashort surface plasmon fields,” *Phys. Rev. A* **84**, 063844 (2011).
- [5] G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde, C. Ropers, „Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion,” *Nature* **483**, 190-193 (2012).
- [6] 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).
- [7] M. Busuladžić, A. Gazibegović-Busuladžić, D. B. Milošević, „High-order above-threshold ionization in a laser field: Influence of the ionization potential on the high-energy cutoff,” *Laser Phys.* **16**, 289–293 (2006).
- [8] 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).
- [9] P. B. Johnson és R. W. Christy, „Optical Constants of the Noble Metals,” *Phys. Rev. B* **6**, 4370-4379 (1972).
- [10] R. L. Olmon, B. Slovick, T. W. Johnson, D. Shelton, S.-H. Oh, G. D. Boreman, M. B. Raschke, „Optical dielectric function of gold,” *Phys Rev. B* **86**, 235147 (2012).
- [11] S. Babar és J. H. Weaver, „Optical constants of Cu, Ag, and Au revisited,” *Appl. Opt.* **54**, 477-481 (2015).
- [12] T. Higuchi, L. Maisenbacher, A. Liehl, P. Dombi and P. Hommelhoff, „A nanoscale vacuum-tube diode triggered by few-cycle laser pulses,” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 051109 (2015).
- [13] V. Pervak, I. Ahmad, J. Fülöp, M. K. Trubetskov, A. V. Tikhonravov, „Comparison of dispersive mirrors based on the time-domain and conventional approaches, for sub-5-fs pulses,” *Opt. Express* **17**, 2207 (2009).

Budapest, 2017. május 10.

Dr. Dombi Péter