

Válasz Prof. Földes István opponensi véleményére

Köszönöm az opponens munkáját, a dolgozatom gondos átolvasására szánt időt, támogató és elismerő bírálói véleményét és elgondolkodtató kérdéseit. Az észrevételekre és a feltett kérdésekre azok eredeti sorrendjében az alábbiakban válaszolok.

nemzetközileg is rendkívüli tekintélynek örvend. Elve az új lehetőséggel, amely lehetővé teszi azt, hogy az MTA doktori fokozatáért a jelölt egy viszonylag kompakt összefoglalást adjon és releváns publikációit mellékelje, Dr. Geretovszkyné Dr. Varjú Katalin „*Attoszekundumos impulzusok keltése, karakterizálása és alkalmazásai*” című doktori értekezése a hivatkozásokkal együtt mindössze 51 oldal, amelyet mintegy 200 oldalnyi releváns publikáció követ. Maga a doktori értekezés így valójában egy kibővített tézisgyűjteménynek felel meg. Kétségtelen, hogy a tömörebb forma könnyebbséget jelenthet a jelöltnek, megszabadítva attól a nehézségtől, hogy le kelljen fordítania saját, többnyire angol nyelvű publikációit, amit aztán igen kevesen fognak elolvasni. Ezzel szemben azoknak, akik az értekezést olvassák, ez a forma igen nagy nehézséget okoz, hiszen sok alapvető részlet, előzmény nem került bele. Összegezve úgy gondolom, hogy ez a forma megfelelő ahhoz, hogy megmutassa a kutató eredményeit, bizonyítsa azt, hogy az MTA doktori fokozat jó kezekbe kerül, de alkalmatlan a témakörben nem járatos olvasó témakörben való összképének kialakításához.

Az MTA XI. Fizikai Tudományok Osztálya által a doktori eljárásra vonatkozóan kiadott követelmények nem tárgyalják részletesen a rövid disszertációval szemben támasztott elvárásokat, és a disszertáció beadásának idején nem találtam már elfogadott, követhető példákat. A Doktori Tanács dokumentumaiból az az elv körvonalazódott számomra, hogy a rövid disszertáció célja a tudományterület olvasmányos összefoglalásával, a (csatolandó publikációkban szereplő) technikai részletek mellőzésével készítenő mű, mely a fizikusok szélesebb közössége számára nyújt rálátást a tudományterületre és betekintést a jelölt munkájába. Ez a forma ugyanakkor valóban nagyobb munkát ró a bírálókra, ami miatt elnézést kérek tőlük. Céлом az volt, hogy tudományterületem szépségeit minél több olvasó számára tudjam bemutatni.

alpontot is tartalmaz. Szerencsésebb lett volna, ha Dr. Geretovszkyné Dr. Varjú Katalin a tézispontokban összefoglal eredményeket, nem ad szinte minden mellékelt publikációnak külön tézispontot. Így például a 3., 4.1 és 4.2 tézispontok könnyen összevonhatók, hiszen mindegyik a csőrp kompenzálását tárgyalja különböző módszerekkel. Hasonló módon a 12.1 és 12.2 pontokat is felesleges külön pontban tárgyalni. Ezek a megjegyzések nem érintik Dr. Geretovszkyné Dr. Varjú Katalin munkásságát, hiszen a mellékelt 27 elsőrangú publikáció fényesen igazolja az eredményes tevékenységet. Ezért a tézisekben felsorolt eredményeket Dr. Geretovszkyné

A tézispontok megfogalmazása során vívódtam az alpontokra való bontás szükségességét illetően. Végül azért rendeztem őket kétszintű számozással, hogy az összetartozó állítások közös tézispontokként jelenjenek meg. Elfogadom az opponens véleményét, hogy kevesebb pont is elegendő lehetett volna.

Köszönöm, hogy a dolgozatot „jó magyarsággal íródottként” jellemezte, komoly erőfeszítés volt részemről, hiszen ezt a tudományterületet elsősorban (az oktatói munkától eltekintve) angol nyelven művelem. Az opponens formai megjegyzéseit köszönöm, belátom, hogy minden

szándékom ellenére is maradtak a dolgozatban tovább pontosítható megfogalmazások. Szándékom elkészíteni a dolgozat javított verzióját, hogy referenciaként szolgálhasson a tudományterület iránt érdeklődők számára. Ebben ki fogom javítani az opponens által megjegyzett hibákat.

Szakmai megjegyzések

1. A 37. oldalon túlságosan tömören említi, hogy "az IR tér képes az elektronoknak energiát átadni, amikor azok az infravörös lézertér nulla pillanatnyi értékénél keletkeznek". Ez így önmagában gyakorlatilag érthetetlen, a hivatkozott [T24, T25] cikkekből derül ki, mit is jelent. A magas harmonikus sugárzással fotoionizált szabad elektron akkor tud a lézertérből fotonokat felvenni, ha a fotoelektron kiszabadulása akkor történik, amikor az infravörös lézerimpulzus térerőssége éppen zéró. Ez az elméletileg és kísérletileg is alátámasztott nagyon szép eredmény megérdemelt volna az egy

mondatnál kicsit részletesebb tárgyalást. Ugyanezen az oldalon szintén hiányolható a momentumleképező elektronspektrométer leírása, és a kapcsolódó eredmények kicsit behatóbb részletezése.

Köszönöm a megjegyzést. Sajnálom, ha a tömörségre való törekvésem az érthetőséget rontotta. A 37. oldalon említett kísérletnél az 5.a ábrán illusztrált „sávkamera elrendezésre” kellett volna visszautalnom, hiszen a folyamat azzal azonos: az XUV foton által t_i időpillanatban ionizált elektron a lézer terétől momentumot nyer:

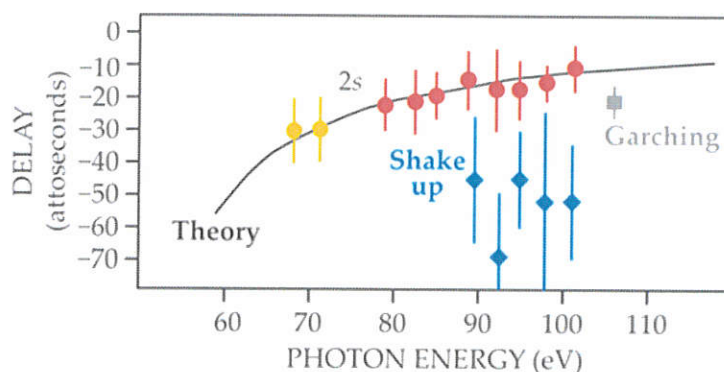
$$\Delta p(t_i) = m_e q \int_{t_i}^{\infty} E(t) dt .$$

Ez az érték a szinuszosan változó lézertér esetében a t_i függvényében változik, maximális azokban a pillanatokban, amikor a lézer-térerősség éppen nulla; ekkor tapasztaljuk az elektronok momentumának/energiájának maximális eltolódását. A t_i az XUV impulzus(ok) és a lézertér közötti késleltetéssel hangolható, ezt figyeltük meg és értelmeztük a [Johnsson, 2005, 2006] publikációkban. Az általunk végzett kísérlet érdekessége, hogy az elektronsomagokat impulzussorozattal hoztuk létre (a sávkamera elrendezésben általában egyetlen, izolált XUV impulzus szerepel [Goulielmakis, 2004]), melyben az impulzusok T/2 időkésleltetéssel követik egymást. A teljes elektronspektrumot megfigyelve olyan elektronok interferenciáját látjuk, melyek az elektromos tér π fázissal eltérő pillanataiban születtek. Ez az interferencia az izolált impulzussal végzett kísérlethez képest más információt is tartalmaz. A hivatkozott publikációk ezen eredményeket és a kísérletben használt eszközöket (köztük a momentumleképező elektronspektrométert) részletezik. A disszertációban ennél bővebb kifejtésre nem volt lehetőségem, a terjedelmi korlátot (néhányszor tíz oldal) így is kihasználtam.

2. A különböző átmenetekből történő fotoionizáció késleltetésének időfüggését a 20. ábrán foglalja össze leírás nélkül. Kérem, ismertesse a különbséget a sávkameras illetve a RABBIT módszerrel kapott eredmények között az előnyök ill. hátrányok megemlítésével.

A két mérés összehasonlítását, illetve elméleti számításokkal összevetve az eredmény

értelmezését a lundi csoport publikálta [Isinger, 2017]. Az első eltérés a két mérés között, hogy az XUV fotonenergia különbsége okán más-más energiatartományban végezték a méréseket (sávkamera ~105 eV, RABITT 80–100 eV). Ennél fontosabb különbség, hogy a RABITT módszert alkalmazó csoportban az egyes harmonikusok keskeny sávzélessége lehetővé tette a különböző ionizációs csatornák (2s illetve shake-up állapotok) spektrális elkülönítését, így a 2s pályáról történő ionizációt leíró elmélettel való egyezés is sokkal jobb.



1. ábra: Neon 2s és 2p állapotból történő fotoionizációja esetén fellépő késleltetésbeli különbség RABITT és sávkamerás mérési eredményeinek összehasonlítása

A dolgozathoz kapcsolódó kérdések:

1. A 25. oldalon írja, hogy a fázisillesztés 800 nm hullámhossz és $4,5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ esetén az elérhető fotonenergiát 110 eV körül korlátozza. Meg tudna adni egy ezt leíró összefüggést ill. skálátörvényt? Hogyan függ ez a választott nemesgáztól?

Magasharmonikus-keltés esetén a folyamat makroszkopikus volta miatt a fázisillesztés problémájával találkozunk. A közeg kimenetén az infravörös lézerimpulzus által a terjedés különböző pontjain keltett elemi XUV sugárzások szuperpozícióját figyeljük meg. A két impulzusra vonatkozó hullámszámvektor különbsége számos komponensből áll, ezeket kell kiegyenlíteni ahhoz, hogy a kimeneten számottevő harmonikus sugárzást figyelhessünk meg.

$$\begin{array}{l}
 \text{atomi diszperzió} \\
 \Delta k_q = q \cdot \omega_1 \cdot (n_q - 1)/c \quad \leftarrow \\
 \Delta k_l = q \cdot \omega_1 \cdot (n_l - 1)/c \quad \rightarrow \\
 \text{plazma diszperzió} \\
 \Delta k_p = q \cdot \omega_1 \cdot (n_p - 1)/c \quad \leftarrow \\
 \text{Gouy-féle fázistolás} \\
 \Delta k_G = q \cdot \nabla \phi_G \quad \leftarrow \\
 \text{atomi fázis} \\
 \Delta k_a = \nabla \phi_a = -\alpha \cdot \nabla I \quad \leftrightarrow
 \end{array}$$

2. ábra: Az XUV magas rendű harmonikusok és a keltő lézerimpulzus közötti fázisillesztetlenség komponensei, a dolgozat 15.b) ábrája ([Major 2017]) alapján.

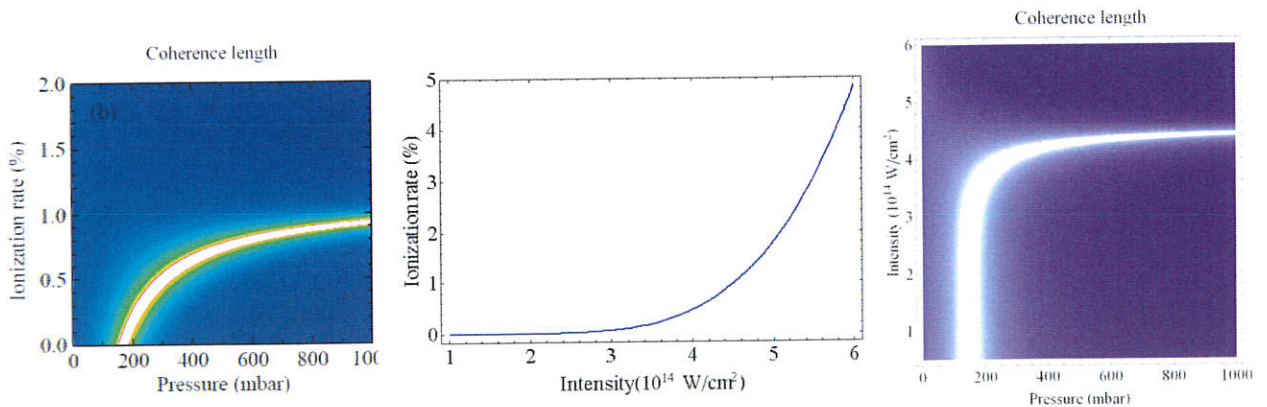
Fázisillesztés eléréséhez a 15.b ábrán bemutatott fázisillesztetlenségi komponensek összegét kell minimalizálni. Első közelítésben az atomi fázisból származó késleltetést elhanyagoljuk (a rövid pályák esetén ez kicsi), és a pozitív atomi diszperziót, a plazma negatív diszperziójával (szabad elektronok) és a Gouy-fázis hatásával kompenzáljuk. Ehhez a kontrollparamétereink a fókuszálás erőssége, a keltő gáz minősége és nyomása, illetve az ionizációs ráta (amit a keltő impulzus intenzitása és a gáz ionizálhatósága befolyásol). Ezek értékeit egy adott geometria esetén az alábbi táblázatban foglalom össze:

$\Delta k(n_{XUV})/p$ (rad/m)/bar	$\Delta k(n_{IR})/p$ (rad/m)/bar	$\Delta k(n_p)/N_e$ (rad/m)/(bar $\times\%$ $_{ion}$)	$q\nabla\varphi_G$ rad/m	$ \nabla\varphi_{at} $ rad/m
-4370	15053	-17486	> -4140	< 900

1. táblázat: A fázisillesztetlenség komponenseinek numerikus értéke, 800 nm-es, 42 μ m-es nyalábnyakra fókuszált keltőimpulzus neonban keltett 29-dik felharmonikusára (45 eV). Az atomi fázisból származó komponenst 4×10^{14} W/cm² intenzitásra határoztuk meg. [Balogh, PhD]

Adott lézerimpulzus és fókuszálási geometria esetén a gáz nyomása a legkönnyebben kontrollálható paraméter a fázisillesztés optimalizálásához, ezért a laboratóriumi gyakorlatban a HHG jel optimalizálásának első lépése a gáznyomás hangolása.

Az előbbieken megadott paraméterek esetén a koherenciahossz kiszámolható a gáz nyomása és az ionizációs fok ismeretében (lásd 1.a ábra). Látható, hogy adott ionizációs fokhoz jól definiált nyomásra van szükség a koherenciahossz, következésképp a HHG-jel maximalizálásához. Kihasználva az ionizációs fok–intenzitás értékek kapcsolatát (1.b ábra – kísérleti cikkekből vagy az ADK modellből is meghatározható) egy olyan görbét kapunk, mely adott intenzitáshoz megadja az optimális nyomás értékét (1.c ábra). Ebből a számításból azt a következtetést vonhatjuk le, hogy bizonyos intenzitás fölött már nem található a fázisillesztést biztosító gáznyomás, emiatt korlátos, hogy milyen intenzitás esetén érhető el fázisillesztés.

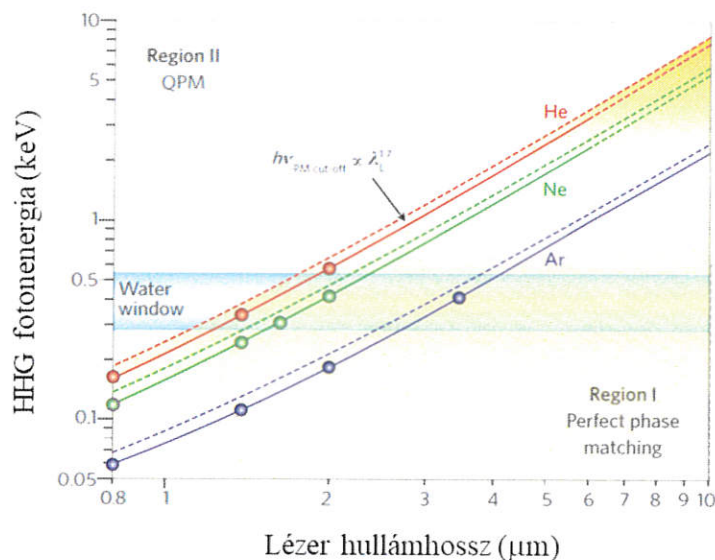


3. ábra: A makroszkopikus levágás meghatározásának illusztrálása. (a) A koherenciahossz függése a gáz nyomásától és ionizációs fokától. (b) A lézerimpulzus intenzitása és az ionizációs fok összefüggése rögzített impulzushosszra. (c) A koherenciahossz a gáz nyomásának és a lézerimpulzus intenzitásának függvényében.

Paraméterek: lézerimpulzus: 800 nm, 35 fs, 42 μ m nyalábnyak, neonban keltett 29. felharmonikus, a színskálával jelzett koherenciahossz 0–20 mm. [Balogh, PhD]

Ismert, hogy a HHG spektrum levágása a keltő impulzus intenzitásától függ. Ha az intenzitást az előbbieket miatt korlátoznunk kell, akkor az az elérhető maximális fotonenergiát is korlátozni fogja. Ez magyarázza a makroszkopikus (fázisillesztési) levágás megjelenését.

Esetünkben az intenzitás kb $4,3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ -re korlátozódik, ami $U_p[\text{eV}] = 9,33 \times I[10^{14} \text{ W/cm}^2] \times \lambda[\mu\text{m}]^2 = 25,67 \text{ eV}$ és az $I_p + 3,2 U_p$ összefüggésekből 105 eV körüli értéket eredményez. Mint a levezetésből is látszik, a skálázási törvény meghatározása nem triviális. Leginkább a disszertációm 17.a ábrájaként bemutatott [Popmintchev, 2010]-ből származó eredményt tudom válaszul bemutatni.



4. ábra: A makroszkopikus levágás értéke a keltő lézerimpulzus hullámhosszának függvényében, He, Ne és Ar gázban történő HHG esetén.
Forrás: [Popmintchev, 2010]

Ez kvalitatíve jól illusztrálja az opponens által feltett kérdésre vonatkozó választ:

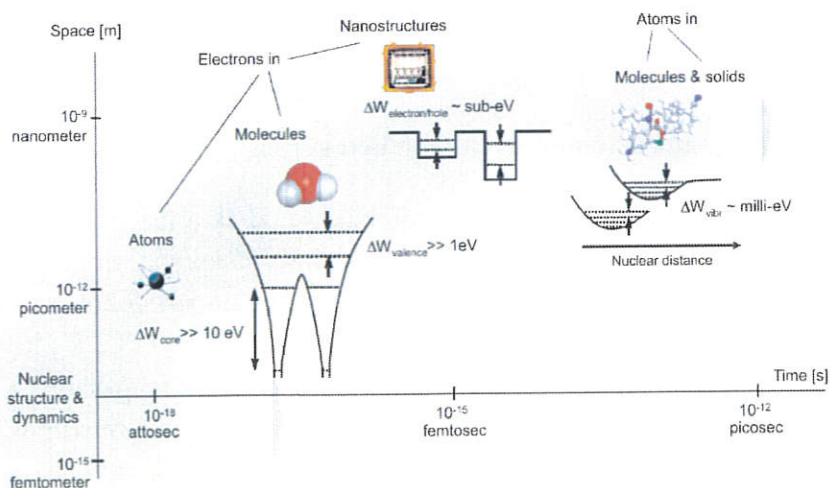
- 1) A különböző nemesgázoknál a színes görbék mutatják a fázisillesztési levágás értékét (az I_p és a törésmutató értékei eltérőek ezekben a gázokban, de még fontosabb, hogy különböző az ionizálhatóságuk, ezért egy adott ionizációs fokot a kisebb rendszámú gázoknál nagyobb intenzitás mellett érjük el, vagyis az $I_p + 3,2 U_p$ kifejezésben mind I_p , mind U_p nagyobb, és emiatt az elérhető fotonenergia is magasabb.
- 2) A hullámhossz és a nemesgáz meghatározza az alkalmazható maximális intenzitást (az ionizálhatóságon keresztül), ami definiálja az elérhető fotonenergiát. Az ábrán minden nemesgázhoz két-két görbe tartozik (folytonos vonal 8 ciklusú keltőimpulzus, szaggatott vonal 3 ciklusú keltőimpulzus) – hiszen az ionizációs fok függ attól, hogy hány periódusban történik az ionizáció.
- 3) A levezetésből látszik, hogy egyetlen skálátörvény meghatározása nem lehetséges. A bemutatott ábra segítségével (log-log grafikonon szinte minden egyenes) közelítő összefüggés lenne meghatározható.

2. Rendkívül perspektivikus az izolált attoszekundumos impulzusok létrehozásának az a módszere, ami a keltő lézerimpulzus mellé egy THz-es impulzust használ. Magyarországon erős hagyományai vannak a THz-es vizsgálatoknak, mégis, eddig a területen a Max-Born Intézettel való együttműködésben végzett kísérletet említ. Tervez-e a közeljövőben az ELI-ALPS berendezés THz-es csoportjával együttműködésben ilyen kísérletet a T18-nál hosszabb hullámhosszú sugárzással?

THz és XUV tartományba eső impulzusok együttes jelenléte tudomásom szerint még egyetlen kutatólaboratóriumban sem megoldott. A legfőbb technikai kihívás, hogy a THz-es impulzusok keltéséhez néhány 100 fs nagyságrendű impulzushosszra, míg az XUV impulzusok keltéséhez ennél 1–2 nagyságrenddel rövidebb lézerimpulzusra van szükség. Az ELI ALPS-ban dolgozunk ilyen kísérleti elrendezés kialakításán. Ha ez elkészül, akkor akár THz – XUV pumpa-próba kísérletek elvégzésére, akár a THz-asszisztált HHG tesztelésére is lehetőségünk nyílik majd.

3. A 6.4 és 6.5 pontokban említett elektronkorrelációs és molekula-vizsgálatok izgalmas területek, de nem a saját munkán alapulnak. Mi indokolja ezeknek a 6.2 és 6.3-ban említett saját munkákkal azonos súlyú megjelenítését? Kapcsolódó kérdés: A molekulák femtoszekundumos spektroszkópiájáért korábban Zewail kapott Nobel-díjat. Melyek azok a folyamatok, ahol az a felbontás már nem elég, attoszekundumos spektroszkópiára van szükség?

Megértésem szerint a rövid értekezés célja nemcsak a jelölt saját eredményeinek, hanem a kutatási területnek az átfogó bemutatása, melyben a jelölt saját eredményeit elhelyezi. Ezt az elvet követve mutattam be az attoszekundumos tudomány alkalmazásait a 6. fejezetben.



5. ábra: Elemi folyamatok természetes időskálája a vizsgált anyagi összetevő méretének függvényében. Forrás: [Krausz, 2009]

Attoszekundumos időfelbontásra elektronok vizsgálatához van szükség, amit leggyakrabban az 5. ábrával illusztrálunk [forrás: Krausz, 2009]. Az attoszekundumos spektroszkópiával elért eredményeket egy 2022-es áttekintő cikk foglalja össze [Borrego-Varillas, 2022]. Attoszekundumos impulzusok használata pumpa-próba elrendezésekben egyrészt az

időfeloldás javításához vezet, másrészt a magas fotonenergia lehetővé teszi a vizsgált minta ionizációját, ami egy tranziens állapotot okoz; ennek relaxációja a femtoszekundumnál rövidebb – néhány femtoszekundum tartományba esik. Az első XUV foton által kiváltott ionizációt követő relaxációs folyamatot [Drescher, 2002] 2002-ben írták le (relaxációs idő 7,9 fs). A femtoszekundumos tartományban elterjedt pumpa–próba vizsgálatoknak megfelelő attoszekundumos tranziens spektroszkópiában többnyire egy femtoszekundumos lézerimpulzus által kiváltott tranziens vizsgálják akár az XUV próbaimpulzus abszorpcióját, akár reflexióját detektálva (attosecond transient absorption spectroscopy, ATAS és attosecond transient reflection spectroscopy, ATRS). Ezzel a módszerrel femtoszekundumosnál jobb felbontással vizsgáltak már atomi, molekuláris vagy szilárdtest mintákban végbemenő folyamatokat.

Az attoszekundumos spektroszkópia hasznosságát a 2023-as fizikai Nobel-díj erősíti [X]. Az első olyan mérés, melyben attoszekundumos időtartományt határoztak meg, a dolgozatomban 6.3 fejezetében leírt – és a 2023-as Nobel-díj indoklásában is szereplő – különböző kezdeti állapotokból történő fotoionizáció idejének összehasonlítása. Az időkülönbségekre vonatkozó eredmények a 10–70 attoszekundumos tartományba esnek. [Schultze, 2010, Isinger, 2017]

Hivatkozások:

[Balogh, PhD] E Balogh, *Macroscopic study and control of high order harmonic and attosecond pulse generation in noble gases*. PhD thesis (2014)

[Borrego-Varillas, 2022] Borrego-Varillas, Lucchini and Nisoli, *Attosecond spectroscopy for the investigation of ultrafast dynamics in atomic, molecular and solid-state physics*. Rep. Prog. Phys. **85**, 066401 (2022).

[Drescher, 2002] M Drescher, M Hentschel, R Kienberger, M Uiberacker, V Yakovlev, A Scrinzi, T Westerwalbesloh, U Kleineberg, U Heinzmann and F Krausz, *Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy*. Nature **419** 803–7 (2002)

[Goulielmakis, 2004] E Goulielmakis, M Uiberacker, R Kienberger, A Baltuska, V Yakovlev, A Scrinzi, Th Westerwalbesloh, U Kleineberg, U Heinzmann, M Drescher, F Krausz, *Direct measurement of light waves*. Science **305** 1267–9 (2004)

[Isinger, 2017] M Isinger, RJ Squibb, D Busto, S Zhong, A Harth, D Kroon, S Nandi, CL Arnold, M Miranda, J M Dahlström, E Lindroth, R Feifel, M Gisselbrecht, and A L'Huillier, *Photoionization in the time and frequency domain*. Science **358**, 6365, 893-896 (2017)

[Johnsson 2005] P Johnsson, R López-Martens, S Kazamias, J Mauritsson, C Valentin, T Remetter, **K Varjú**, MB Gaarde, Y Mairesse, H Wabnitz, P Salières, Ph Balcou, KJ Schafer, A L'Huillier, *Attosecond Electron Wave Packet Dynamics in Strong Laser Fields*. Physical Review Letters **95**, 013001 (2005)

[Johnsson, 2006] P Johnsson, **K Varjú**, T Remetter, E Gustafsson, J Mauritsson, R López-Martens, S Kazamias, C Valentin, Ph Balcou, MB Gaarde, KJ Schafer, A L'Huillier, *Trains of Attosecond Electron Wave Packets*. J. Mod. Optics **53**, 233 (2006)

[Krausz, 2009] F Krausz, M Ivanov, *Attosecond physics*, Rev Mod Phys **81**, 160 (2009)

[Major, 2017] B Major., PCs Kőrös, **K Varjú**, *Attoszekundumos impulzuskeltés makroszkopikus optimalizációja*. Fizikai Szemle **10**, 331-335 (2017)

[Popmintchev, 2010] T Popmintchev, M-C Chen, P Arpin, MM Murnane and HC. Kapteyn, *The attosecond nonlinear optics of bright coherent X-ray generation*. Nat. Photonics **4**, 822 (2010)

[Schultze, 2010] M Schultze, M Fiess, N Karpowicz, J Gagnon, M Korbman, M Hofstetter, S Neppl, AL Cavalieri, Y Komninos, Th Mercouris, CA Nicolaides, R Pazourek, S Nagele, J Feist, J Burgdörfer, AM Azzeer, R Ernstorfer, R Kienberger, U Kleineberg, E Goulielmakis, F Krausz, VS Yakovlev, *Delay in photoemission*. Science **328**, 1658 (2010)

[X] <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2023/advanced-information/>

Szeged, 2025. október 25.


Dr. Geretovszkyné Dr. Varjú Katalin