

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS

**Ultragyors fotoemissziós folyamatok
nanolokalizált elektromágneses terekben**

Dombi Péter

MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont

Budapest

2016

Tartalomjegyzék

Rövidítések és szakkifejezések	3
1 Tudományos előzmények	4
1.1 Nemlineáris fotoemisszió és fotoionizáció	4
1.2 Skálatulajdonságok és a fotoemisszió lefutása a Keldis-paraméter alapján	6
1.3 Haladó és lokalizált felületi plazmonok	8
1.4 Felületi plazmonos elektrongyorsítás	10
1.5 Új fizikai jelenségek nanoemitterek felhasználásával	12
1.6 A kutatásokhoz kapcsolódó femtoszekundumos lézerfizika	14
1.6.1 Diszperziókompenzálás	15
1.6.2 Módusszinkronizált titán-zafír lézeroszcillátorok	16
1.6.3 Hosszú rezonátoros lézerek	18
1.6.4 Vivő-burkoló fázisstabilizálás	19
2 Célkitűzések	23
3 Kevésciklusú, haladó felületi plazmon hullámcsomagok időbontott vizsgálata	26
3.1 Kísérleti módszerek	26
3.2 Kísérleti eredmények	28
3.3 A kísérleti eredmények kiértékelése	30
3.4 Összefoglalás	32
4 Elektronok gyorsítása haladó felületi plazmonok elektromágneses terében	34
4.1 Kísérleti módszerek	34
4.2 Kísérleti eredmények	35
4.3 Modell evanescens elektromágneses térbeli elektrongyorsításra	39
4.4 Összevetés a Maxwell-egyenletek megoldására épülő modellel	45
4.5 Nemponderomotoros hatások	47
4.6 Összefoglalás, következtetések	51
5 Hosszú rezonátoros oszcillátorok fejlesztése és az ehhez kapcsolódó ultragyors optikai kutatások	52
5.1 Előzmények	52
5.2 Hosszú rezonátoros oszcillátorok impulzusenergiájának 0,5 μJ -ra növelése	54
5.3 Diszperziókompenzálás erősen diszperzív tükrökkel	58

5.4 Nagyenergiájú oszcillátorimpulzusok kompressziója	62
5.4.1 Az impulzusok spektrális kiszélesítése	62
5.4.2 Impulzusösszenyomás	66
5.4.3 A csörpkonverzió jelensége	68
5.5 Hosszú rezonátoros oszcillátorok femtoszekundumos optikai elemek tesztelésére	71
5.6 Összefoglalás, kitekintés	73
6 Ultragyors fotoemisszió plazmonikus nanorészecskékről	75
6.1 Kísérleti módszerek	75
6.2 Kísérleti eredmények	77
6.3 Modell plazmonikus nanorészecskékről történő ultragyors fotoemisszióra	80
6.4 Szimulációs eredmények	81
6.5 Kevés optikai ciklusú impulzusokkal meghajtott plazmonoszcillációk	82
6.6 Összefoglalás	87
7 Ultragyors plazmonos fotoemisszió a közép-infravörösben	88
7.1 Kísérleti módszerek	89
7.2 Kísérleti eredmények	90
7.3 Összefoglalás, kitekintés	93
8 Nanoméretű vákuumdióda megvalósítása	95
8.1 Kísérleti berendezés	96
8.2 Nanotűk relatív pozicionálásának megvalósítása	98
8.3 A nanoméretű vákuumdióda működése	101
8.4 Összefoglalás, konklúziók	103
9 Impulzusösszenyomás időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükrökkel	104
9.1 Az impulzuskompresszióhoz használt újfajta tükrök	104
9.2 Extrém sáv szélességű impulzusok összenyomása és jellemzésük	106
10 Összefoglalás, hasznosulás, alkalmazási lehetőségek	110
11 Köszönetnyilvánítás	112
12 A tézispontokhoz kapcsolódó referált folyóiratcikkek jegyzéke	113
13 Irodalomjegyzék	115

Rövidítések és szakkifejezések

A dolgozatban próbálom elkerülni a csak túl szűk szakterületek által használt rövidítéseket, helyett az olvashatóság érdekében sok esetben inkább egyszerűsítő, ám a dolgozat kontextusában egyértelmű szóhasználatat élek (például „felületi plazmon” a „felületi plazmon polariton” helyett). Azon kevés betűszót és rövidítést, melyeket a fentiek ellenére célszerű bevezetni és használni, az alábbiakban adom meg.

HFP	haladó felületi plazmonhullám
LFP	lokalizált felületi plazmon
Ti:S	titán-zafír (az ábrák egy részénél)
CsKD	csoportképletelés-diszperzió, a csoportképletelés körfrekvencia szerinti deriváltja. Ha ez a mennyiség a frekvenciától független konstans, akkor „lineáris csörpnek” is nevezik.

A „chirped mirror” kifejezés „csörpölt tükör”, „diszperziókompenzáló tükör” ill. „fáziskorrigáló tükör” magyar fordításai közül az utóbbit használom, és „chirp” esetén fázismodulációról írok. A magyar szakirodalomban bevett „sokfotonos” kifejezést csak akkor használom, amikor valóban „sok” fotonról van szó. Két- vagy háromfotonos folyamatok gyűjtőneveként a „többfotonos” kifejezés jobban érzékelteti a folyamat lényegét. Ehelyütt tartom fontosnak megemlíteni azt a konvenciót is, hogy impulzushossz alatt a lézerimpulzus időbeli intenzitás-félértékszélességét értem.

1 Tudományos előzmények

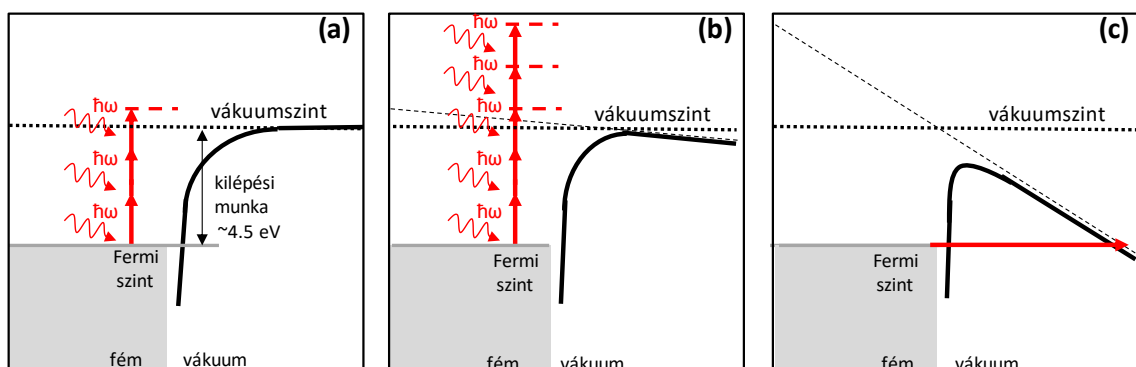
A fotoemisszió, más néven külső fotoeffektus, vagy fényelektromos hatás közel 130 éve ismert, és több, mint 100 éve helyesen értelmezett fizikai alapjelenség, melynek napjainkban is számos gyakorlati alkalmazása létezik az elektronmikroszkópiában vagy a fotodetektor-technológiában. A folyamat lényege, hogy amennyiben az elektron fémfelületről történő kilépési munkáját a felületre érkező foton energiája meghaladja, 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 fénnel lehet előállítani.

Heinrich Hertz és Wilhelm Hallwachs korai észlelései és kísérleti eredményei (Hertz, 1887), valamint Lénárd Fülöp további felfedezései (Lénárd, 1902) után Albert Einstein 1905-ben adta meg a jelenség helyes értelmezését (Einstein, 1905). A lézerek kora előtt a fotoemisszió lineáris változata volt könnyen vizsgálható, vagyis amikor egy foton egy elektront vált ki. Ez a korlátozó tényező fotoemissziós kísérletek ultraibolya fénnel történő vizsgálatára szűkítette a kísérleti lehetőségek körét.

1.1 Nemlineáris fotoemisszió és fotoionizáció

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 elektromágneses átmenet) történjen (Voronov és Delone, 1966; Agostini et al., 1968). 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 az egyre jobban megismert sokfotonos kölcsönhatásokon túlmutatóan olyan további fontos felfedezéseket is tettek a hetvenes és a nyolcvanas években, mint például a küszöbfeletti fotoionizáció észlelése (Agostini et al., 1979). Magasabb lézerintenzitásoknál az atomi vagy a fémfelületi potenciált a lézerimpulzus tere olyan jelentősen torzítani tudja, ami lehetővé teszi akár az elektron alagutazással történő kilépését is. Az ilyen folyamatok vizsgálata a nyolcvanas évek végén elvezetett a magasrendű felharmonikuseltetés 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 „erőstér-kölcsönhatások” (strong-field interactions) elnevezést használja a kutatói közösség.

A fizikai intuíció és a kvantummechanika törvényei szerint a lézer-atom kölcsönhatásokkal analóg folyamatoknak kell lejátszódnia akkor is, amikor a lézerfoton 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 akkor sem tekinthetünk el kollektív hatásoktól (mint például a fémbeli elektronok együttes válasza a gerjesztésre vagy tértöltési effektusok a fotoemisszió után), ha a mérések során ultranagy vákuumot és adszorbeátummentes, egykristály-fémfelületet használunk. A fotoemissziós folyamatok említett fajtáit az 1.1 ábrán mutatom be.



1.1 ábra Fotoelektron-emissziós mechanizmusok különböző lézerintenzitások esetén. (a) Alacsony intenzitás mellett több foton egyidejűleg hat kölcsön a fémfelületi elektronnal, ennek hatására történik a kilépés. (b) Az intenzitás növelésével a fémfelületi potenciál még csak enyhén torzul a lézertér hatására (ennek potenciáljárulékát egy adott időpillanatban ld. szaggatott vonallal). Ebben az esetben is több foton egyidejű kölcsönhatásaként tekinthetjük a folyamatot, azonban a minimálisan szükségesnél több foton elnyelése is bekövetkezhet. Ez a küszöbfeletti fotoemisszió jelensége. (c) Amikor a lézertér elég erős a potenciál számottevő torzításához, a Fermi-szintről történő közvetlen alagutazás is lehetővé válik. Ezt néha erőstér-fotoemissziónak is hívják.

A fizikai alapjelenségek vizsgálatához ezért olyan új kísérleti megközelítések kellenek 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 (Schenk et al., 2010; Krüger et al., 2011).

1.2 Skálatulajdonságok és a fotoemisszió lefutása a Keldis-paraméter alapján

Az $E_L(t) = E_0(t) \cos(\omega_L t)$ által adott lézerimpulzus (síkhullám) terében könnyen megoldható egy szabad elektron klasszikus mozgásegyenlete. Azzal a fontos előfeltevéssel, hogy $E_0(t)$ impulzusburkoló a $2\pi/\omega_L$ periódusidőnél sokkal lassabban változik, az elektron több lézerciklusra átlagolt kinetikus energiája a következő módon adott:

$$U_p(t) = \frac{e^2 E_0^2(t)}{4m\omega_L^2}, \quad (1.1)$$

ahol e és m jelöli az elektron töltését és nyugalmi tömegét. ω_L a körfrekvencia, és a lézertér pillanatnyi oszcillációs amplitúdóját $E_0(t)$ jelöli.

Térben inhomogén elektromágneses terek esetén is definiálható ez a mennyiség. Például egy fókuszált lézerimpulzus esetére $U_p(t)$ általánosítható, amennyiben a tér egy pontjában vett értékét tekintjük: $U_p(t) \rightarrow U_p(t, \mathbf{r})$, követve az elektromos téramplitúdó térbeli eloszlását, $E_0(t, \mathbf{r})$ -t. Az $U_p(t, \mathbf{r})$ mennyiséget hívják ponderomotoros potenciálnak, hiszen látható, hogy egy szabad elektron inhomogén lézertérben történő oszcilláló mozgását és kinetikus energiájának optikai ciklusról optikai ciklusra történő változását leginkább ez a mennyiség határozza meg (Boot és Harvie, 1957).

Az így definiált, potenciálszerű mennyiség továbbá rendkívül hasznosnak bizonyult a nemlineáris fotoemisszió (és fotoionizáció) különböző fajtáinak elkülönítésében. Keldis ehhez kapcsolódó számításai a jól ismert γ perturbációs paramétert eredményezték (Keldis 1965), amely tetszőleges lézerindukált kötött-szabad-átmenet (pl. fotoemisszió és -ionizáció) skálázását általánosan leírja:

$$\gamma^2 = \frac{W}{2U_p} = \left(\frac{\omega_L \sqrt{2mW}}{eE_0} \right)^2, \quad (1.2)$$

ahol W a fémfelületre vonatkozó kilépési munka (vagy atomok/molekulák esetén az ionizációs potenciál). Megmutatható, hogy $\gamma \gg 1$ (kis lézerintenzitás) esetén a sokfotonos fotoemissziós, $\gamma \ll 1$ (nagy lézerintenzitás) esetén az alagutazási mechanizmusok dominálnak.

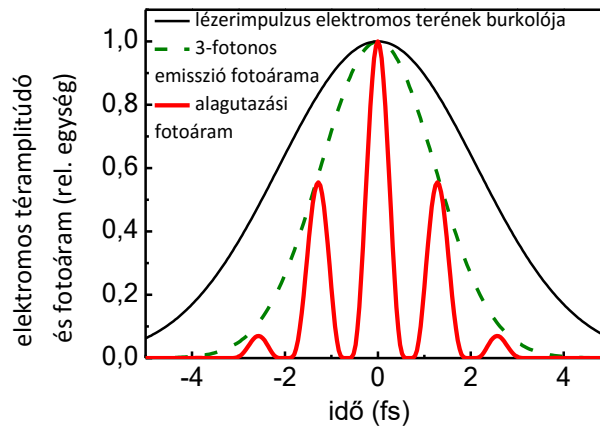
A sokfotonos $\gamma \gg 1$ esetben a nemlineáris fény-anyag kölcsönhatást perturbatív módszerekkel kielégítően le lehet írni, hiszen ekkor a lézertérből származó potenciál a rendszer Hamilton-operátorának perturbációjaként jól kezelhető. Ennek következményeként a kölcsönhatás nemadiabatikus és alapvetően a lézertér amplitúdójának időbeli lefutása határozza meg, más szóval a lézerimpulzus intenzitásburkolója. Fémek esetén, melyek tipikusan 4-6 eV kilépési munkával rendelkeznek, a sokfotonos emisszió jellemzően látható vagy infravörös gerjesztés hatására megy végbe, tipikusan 2-5 fotonnal egy elektron kiváltásához. Az ilyen n fotonos folyamat energiamérlege a következő alakot ölti:

$$n\hbar\omega_L = E_{\text{kin}} + W, \quad (1.3)$$

ahol E_{kin} a fotoemittált elektron kinetikus energiája, W a kilépési munka, melyet n , egyenként $\hbar\omega_L$ energiájú foton fedez. Ebben az esetben feltételezhető, hogy a fotoáram-sűrűség időbeli lefutása, $j(t)$ közelítőleg a lézertér pillanatnyi intenzitásának n -edik hatványával arányos:

$$j(t) \sim I_L^n(t), \quad (1.4)$$

ahol az $I_L(t)$ pillanatnyi intenzitás az elektromos tér amplitúdójából az $I_L(t) [\text{W}/\text{cm}^2] = (1/2Z_0)E_0^2(t) [\text{V}/\text{cm}]$ összefüggéssel származtatható, ahol $Z_0 = 377 \text{ V/A}$ a vákuumimpedancia ($Z_0^2 = \mu_0\epsilon_0$). Az (1.4) összefüggés a sokfotonos fotoemisszió időbeli lefutását jó közelítéssel írja le, amint azt egy fémekre közelmúltban elvégzett teljes kvantummechanikai tárgyalás is alátámasztotta (Lemell et al., 2003). Ebben az esetben, amint azt az 1.2 ábra is bemutatja egy gaussi lézerimpulzusra, az elektromos tér pillanatnyi amplitúdója határozza meg az emissziós valószínűséget. A fotoemissziós görbe időbeli félértékszélessége az impulzushossz $\sqrt{n}$ -edrésze. A kísérletekben a fotoáram intenzitásfüggésének méréséből és kétszer logaritmikus skálán történő ábrázolásából az n exponens könnyedén meghatározható egyenes illesztésével.



1.2 ábra Az elektronemisszió időbeli lefutása különböző intenzitású kevés femtoszekundumos lézerimpulzusok fémfelülettel történő kölcsönhatása esetén. A gaussi impulzus burkolójának (vékony fekete görbe) intenzitás-félértékszélessége 3,5 fs. Szaggatott görbe ábrázolja a fotoáram időbeli lefutását háromfotonos fotoemisszió esetére (1.4) egyenlet alapján. A vörös görbe pedig a fotoáram időbeli lefutása alagutazás esetén, a Fowler-Nordheim-egyenlet alapján.

A sokfotonos folyamatoknál nagyobb lézerintenzitás esetén erőstér-fotoemisszió (alagutazás) is bekövetkezhet. Ez esetben a kölcsönhatást (az alagútáramot) nyilvánvalóan a lézerimpulzus pillanatnyi elektromos tere határozza meg. A fotoáram ilyenkor számottevő késleltetési és átlagolási hatások nélkül követi az elektromos tér lefutását. Az áram időbeli lefutása ilyenkor a sokfotonosnál komplexebb összefüggéssel írható le. Zárt analitikus kifejezést kvantummechanikai alagutazási megfontolásokból nyerhetünk. Az irodalomban fémek és sztatikus vagy oszcilláló

elektromos tér esetén a leggyakrabban használt összefüggés a Fowler–Nordheim-egyenlet (Fowler és Nordheim, 1928), mely szerint az alagútáramsűrűség időbeli lefutását a

$$j(t) = \frac{e^3 E_L^2(t)}{8\pi\hbar W s^2(w)} \exp\left(-\frac{8\pi\sqrt{2m}W^{3/2}}{3\hbar e|E_L(t)|} v(w)\right) \quad (1.5)$$

összefüggéssel adhatjuk meg, ahol az eddig használt jelöléseken kívül $\hbar$ a Planck-állandó, $v(w)$ egy lassan változó függvény, amely az alagutazó elektron tükörtlítésének hatását veszi figyelembe tipikusan $0,4 < v(w) < 0,8$ közötti értékekkel. Az $s(w)$ függvény értéke $s(w) \approx 1$ -nek vehető alagutazás esetén (Hommelhoff et al., 2006a), ahol:

$$w = \frac{e^{3/2} \sqrt{E_L / 4\pi\epsilon_0}}{W}. \quad (1.6)$$

A $j(t)$ görbe gyors változását is bemutatja az 1.2 ábra, ahol látható, hogy az alagútáram az elektromos tér lefutását követi. A $\gamma \ll 1$ feltételnek megfelelő tiszta alagutazás kísérleti kimutatása nem egyszerű, hiszen tömbi fémfelületek és fém vékonyrétegek roncsolási küszöbe 10^{13} W/cm²-es intenzitás körül van, amely nagyon közel van ahhoz az intenzitáshoz, ahol a $\gamma \sim 1$ feltétel teljesül.

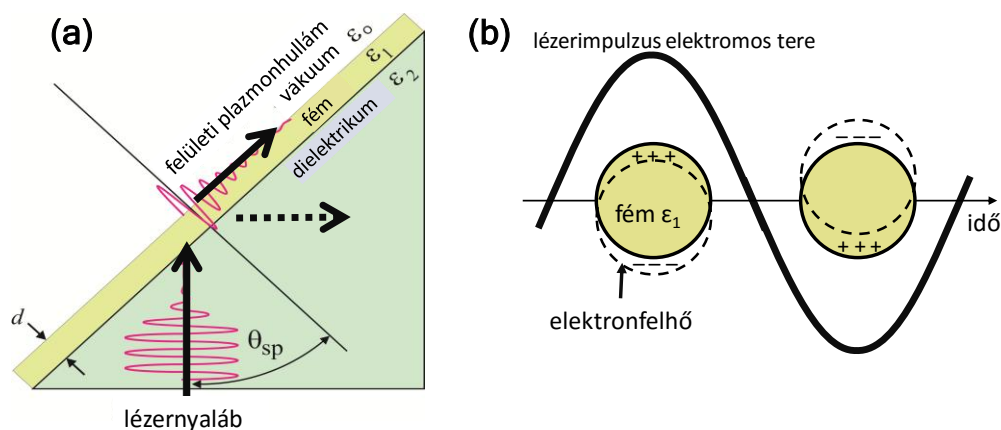
1.3 Haladó és lokalizált felületi plazmonok

Lézerterek nagy térbeli és/vagy időbeli lokalizációja 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.

Másrészt 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 töltések kollektív oszcillációi, melyek például fénnel történő gerjesztéssel is létrehozhatók. További érdekes tulajdonságuk, hogy a felülethez kötött, evaneszcens jellegük miatt az elektromágneses tér hullámhossza alatti lokalizációt tesznek lehetővé (Raether 1988; Maier 2007). Az elektromágneses tér koncentrációja miatt másik fontos jellemzőjük az ezzel együtt járó ún. térnövekmény („field enhancement”), mely során akár a felületi plazmont keltő fény térerősségének több százszorosa is megjelenhet plazmonikus nanorészecskék közvetlen közelében (Atwater 2007; Schuller et al., 2010). A két extrém (időbeli és térbeli) lokalizációs tulajdonság egyidejű kihasználása 30 fs alatti impulzushosszakra azonban példa nélküli volt.

A felületi plazmonoknak két fontos fajtája létezik. Haladóhullámként létrehozhatók kiterjedt fém vékonyrétegen, ezeket haladó felületi plazmonnak (HFP)

vagy felületi plazmon polaritonnak nevezik, és fénnel történő gerjesztésük csak egyedi geometriával oldható meg speciális diszperziós relációjuk miatt. A plazmonkeltés alapját jelentő töltésszétválasztást fém nanorészecskékben is lehet indukálni, és az ilyen töltéssűrűség-oszcilláció adott részecskeméret és –geometria mellett szintén rezonánsan meghajtható külső fénnel. Az így keltett oszcillációt és az ehhez kapcsolódó elektromágneses teret lokalizált felületi plazmonnak (LFP) nevezik, ezek tipikus gerjesztését fém vékonyrétegen illetve nanorészecskén az 1.3 ábra mutatja be.



1.3 ábra Felületi plazmonok tipikus keltése szabadon terjedő elektromágneses hullámokkal (a) Kretschmann–Raether-konfigurációban egy adott rezonáns θ_{sp} beesési szög alatt és (b) fém nanorészecskéken, ahol az elektronfelhő lézertér hatására bekövetkező kollektív mozgása is megfigyelhető. Az (a) esetben keltett, felülethez kötött elektromágneses hullám elnevezése haladó felületi plazmon (HFP), míg a (b) esetben lokalizált felületi plazmonok (LFP) keletkeznek. A nyilak a lézernyaláb illetve a plazmonhullám terjedési irányát jelölik. Tökéletes haladó felületi plazmonbecsatolás esetén a fémfelületről visszavert, szaggatott nyíllal jelölt nyaláb eltűnik.

Fenti tulajdonságaik miatt a felületi plazmonokat a tudomány és technika számos területén alkalmazzák. 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 térnövelési 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. Ezt a lehetőséget vetítette előre az a kísérlet, melyben fémfelületi fotoáramok akár három-négy nagyságrenddel történő növelését észlelték felületi

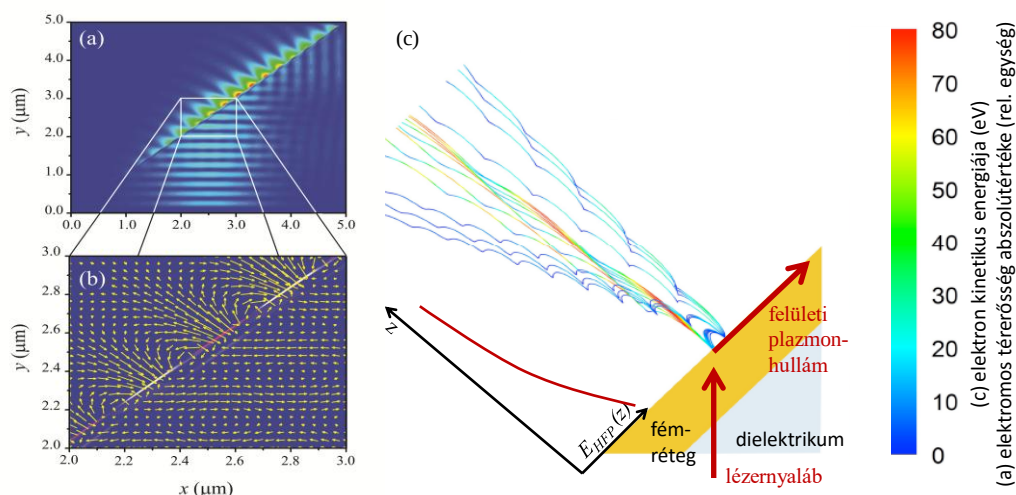
plazmonkeltés hatására (Tsang et al., 1990, 1991). Felületi plazmonok elektromágneses térben továbbá a fotoemittált elektronok hatékony gyorsítási folyamatát is demonstrálták (Zawadzka et al., 2001; Kupersztych et al., 2001; Irvine et al., 2004). Az ígéretes kezdeti kísérletek után a lehetőségek kiaknázása az ultragyors tudomány és a plazmonika eszközeinek és módszereinek együttes felhasználásában rejlett. Doktori értekezésemben erre mutatok be számos olyan kísérletet, mellyel elsőként sikerült erős-tér plazmonikai alapjelenségeket demonstrálni és az elektromágneses tér extrém térbeli és időbeli lokalizációját egyidejűleg elérni.

1.4 Felületi plazmonos elektrongyorsítás

Ahogy azt a korábbiakban már láttuk, intenzív lézerterek a fény-anyag kölcsönhatás alapvető jellegét tudják befolyásolni. Azt is bemutattam, hogy intenzív elektromágneses terek létrehozásához nem feltétlenül csak a fókuszált intenzitás növelésén keresztül vezet út, a plazmonos térnövekmény kihasználásával akár egyszerű femtoszekundumos oszcillátorokkal is nagy térerősséget lehet létrehozni. Vegyünk például egy csúcskategóriás, hosszú rezonátoros titán-zafír oszcillátort 500 nJ-os impulzusenergiával valamint 50 fs-os impulzushosszal. Így ~ 10 MW-os lézerimpulzus-csúcseljesítmény valamint erős fókuszálás ($1 \mu\text{m}^2$ -es fókuszolt) mellett akár kb. 10^{15} W/cm^2 intenzitást is el lehet érni. Ez az intenzitásérték felületi plazmontérben (erősen lokalizáltan) akár nagyságrendekkel nagyobb is lehet figyelembe véve az akár százszoros plazmonos térnövekményt és az intenzitás négyzetes skálázását az elektromos térerősséggel. A plazmontérben elérhető maximális térerősségnek tipikusan csak a felület vagy a nanostruktúra roncsolási küszöbe szab határt. Az innovatív lézertechnológia és a plazmonos térnövekmény kombinálásával tehát a fény-anyag kölcsönhatás új aspektusaiba nyerhetünk bepillantást.

A felületi plazmontérbe fotoemittált elektron gyorsítási folyamaton megy keresztül, amennyiben nem homogén intenzitáseloszlású elektromágneses térben tartózkodik. Ez könnyen belátható azt figyelembe véve, hogy amennyiben az adott optikai ciklus az elektront például egy kisebb intenzitású térrész felé viszi, akkor az ott ráható, ellentétes irányúra forduló erő már kevésbé löki vissza. Ha ez a folyamat többször is megismétlődik (márpedig az elektron térbeli oszcillációs amplitúdója 800 nm-es hullámhossz és nagy, 10^{15} W/cm^2 -es intenzitás mellett is csak 8 nm, lényegesen kisebb mint pl. egy lézerfókuszolt átmérője), akkor az elektron a közvetlenül a tér által okozott, lézercikluson belüli gyorsításon kívül, ciklusról ciklusra is nettó (ún. ponderomotoros) gyorsításon megy át (Boot és Harvie, 1957).

Szabad elektronok hatékony gyorsításához tehát nagy amplitúdógradiensű, nanolokalizált elektromágneses terek jól felhasználhatók. Felületi plazmonok tere éppen ilyen tulajdonságokkal bír, például egy haladó felületi plazmonhullám terének eloszlását, valamint az így végbemenő elektrongyorsítási folyamatot az 1.4 ábrán mutatom be.



1.4 ábra (a) Az elektromos térerősség színekódolt abszolútértéke felületi plazmonhullám becsatolásakor egy adott időpillanatban Kretschmann-Raether becsatolási geometriában. (b) Elektromos térerősségvektorok ugyanebben az esetben. (c) Néhány reprezentatív, pillanatnyi kinetikus energia szerint színekódolt elektrontrajektória fotoemittált és a felületi plazmontérben gyorsított elektronokra. (Az (a) és (b) részabrákat Scott Irvine bocsátotta rendelkezésre).

Ezt a jelenséget, vagyis a felületi plazmonos elektrongyorsítást a kétezres évek elején kezdték el intenzíven kutatni. A gyorsítási folyamat hatékonyságát, keV-os energiák elérését spektrálisan feloldott elektrondetektálással vizsgálták.

Az egyik első ilyen kísérletet Zawadzka és munkatársai végezték el (Zawadzka et al., 2000, 2001). Kretschmann-Raether HFP-becsatolással keltettek plazmonhullámot fémfelületen 100 fs és 150 fs közti félértékszélességű lézerimpulzusokkal. A fotoemittált és plazmontérben gyorsított elektronok energiája akár 400 eV-ot is elért $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ fókuszált lézerintenzitás mellett. Kupersztich és munkatársai aranybevonatú diffrakciós rácson keltettek haladó felületi plazmont 60 fs-os $8 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ csúcsintenzitású titán-zafir lézerimpulzusokkal (Kupersztich et al., 2001). Itt az észlelt maximális elektronenergiák némileg alacsonyabbak voltak (50 eV), mindazonáltal még mindig sokkal magasabbak annál, mint amit pl. küszöbfeletti fotoemisszióval magyarázni lehetne.

Irvine és munkatársai egy még érdekesebb jelenséget demonstráltak, mégpedig azt, hogy egy egyszerű femtoszekundumos oszcillátor 1,5 nJ-os, 27 fs-os impulzusait fókuszálva ($1,8 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ csúcsintenzitás mellett), ezekkel felületi plazmont becsatolva kvázi-monoenergiás elektroncsúcsot észleltek 300 eV-os energia környékén $\sim 80 \text{ eV}$ -os félértékszélességgel (Irvine et al., 2004).

Az első kísérletek kapcsán azonban további kérdések is felmerültek, pl. hogy miként zajlik le ez a folyamat, amikor a lézerimpulzusok hossza a felületi plazmonélettartammal összemérhető, és ekkor végbemehet-e hatékony elektrongyorsítás. Továbbá lehetséges-e egyáltalán kevés optikai ciklusú lézerimpulzusokat hasonlóan rövid felületi plazmontranzienseké átalakítani. Igenlő válasz esetén felmerül az a kérdés is, hogy lehetnek-e olyan további hatások, amelyek a klasszikus ponderomotoros elektrongyorsítási törvényszerűségek körén kívül esnek.

Az ezekkel kapcsolatos vizsgálataimat a tézispontok kapcsán részletesen is bemutatom.

1.5 Új fizikai jelenségek nanoemitterek felhasználásával

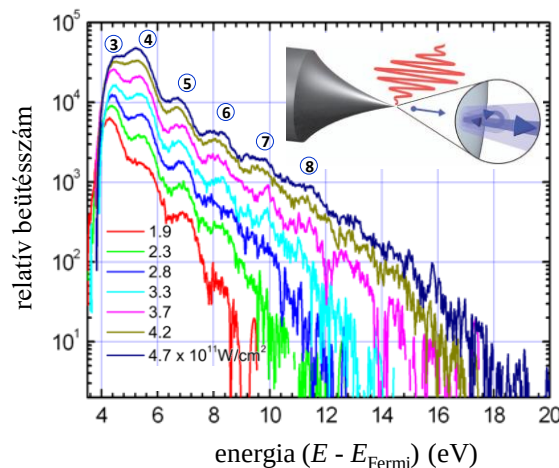
A felületi plazmonokkal kapcsolatos kutatásoktól függetlenül a kétezres években egy másik kutatási irány bontakozott ki, melynek alapja nanotűk femtoszekundumos lézerimpulzusokkal történő megvilágítása, és az így létrehozott fény- és elektronemissziós jelenségek vizsgálata volt. Hegyes, 50 nm-nél kisebb görbületi sugárban végződő nanotűk az atomi szintű képalkotás több módszerében is kulcsszerepet játszottak az ötvenes évektől kezdve, elsősorban a térionmikroszkópiában (Müller, 1951), az alagút- és atomi erő mikroszkópoknál. Ennek köszönhetően fém nanotűk különböző kémiai maratási módszerekkel történő előállítási módszerei jól ismertek (Ibe et al., 1990; Kim és Seidman, 2003).

A kétezres években azonban egy új fejlemény miatt ismét az érdeklődés középpontjába kerültek fém nanotűk. Az ultragyors elektrondiffrakciós és -mikroszkópiai módszerek kutatása ugyanis szükségessé tette olyan elektronforrások fejlesztését, melyek nagy ismétlési frekvenciával biztosítanak jól kontrollált módon ultrarövid elektroncsomagokat. Az ultragyors elektrondiffrakció ugyanis egy olyan új, pumpa-szonda típusú módszer (Zewail, 2006), ahol egy intenzív femtoszekundumos lézerimpulzus által kiváltott folyamatot (például fém olvadását, Siwick et al., 2003) az anyagszerkezeti információt közvetlenül biztosító elektrondiffrakcióval tapogatnak le ultranagy (szub-pikoszekundumos) időbeli felbontással (Dwayne Miller, 2014). Az időfelbontás további növelésének a diffrakciós képalkotáshoz felhasznált elektroncsomagok hossza szab jelenleg határt. Mivel az alkalmazott lézerrendszerek tipikusan kHz-es ismétlési frekvenciájúak, ezért lövésenként kb. százezer elektron kell ahhoz, hogy belátható időn belül időbontott diffrakciós képsorozatot lehessen felvenni. Az ehhez felhasznált elektronnyalábot tipikusan hagyományos sík fotokatód femtoszekundumos lézerimpulzussal történő megvilágításával keltik, azonban az elektroncsomag a mintához érve tértöltési kiszélesedéssel pikoszekundumosra nyúlik. Mindebből következik, hogy lényegesen nagyobb (MHz-es) ismétlési frekvenciával és lövésenként mindössze néhány elektron kiváltásával az időfelbontás nagyságrendekkel növelhető lenne. Ehhez jól definiált, pontszerű femtoszekundumos elektronforrás szükséges, ami motivációt és lendületet adott a lézerimpulzusokkal megvilágított nanotűk kutatásának is (Hommelhoff et al., 2006a-b; Ropers et al., 2007a).

Az ultrarövid lézerimpulzusokkal megvilágított nanotűk és az azokról létrejött fotoemisszió kutatása a kezdeti alkalmazáscentrikus kísérletek után érdekes fordulatot vett: számos új alapjelenséget is kimutattak segítségükkel. Így került sor a küszöbfeletti fotoemisszió (Schenk et al., 2010) valamint az optikai téremisszió, az alagutazás nanoemitterekről történő elsőkénti megfigyelésére (Bormann et al., 2010)

vagy femtoszekundumos lézerimpulzusok (nanotűkön történő) adiabatikus nanofókuszálásának kimutatására (Ropers et al., 2007b).

Az ultrarövid lézerimpulzusokkal megvilágított nanotűk egy olyan alapvető kérdésre is választ adtak, amelyet a küszöbfeletti ionizáció 1979-es felfedezése óta (Agostini et al., 1979) senkinek sem sikerült tisztázni, nevezetesen, hogy miként lehet fémfelületekről küszöbfeletti fotoemissziót elérni (ld. az 1.1(b) ábrát). A válasz természetesen a megfelelő fókuszált intenzitástartomány megtalálásában és a tértöltési kiszélesedés elkerülésében rejlik. Fémek esetén a zavaró tértöltési effektusokat (Girardeau-Montaut és Girardeau-Montaut, 1991) kizárólag nanoemitterekkel lehet elkerülni. Kiterjedt fémfelületek megvilágítása esetén ugyan többen is észleltek szokatlanul nagy energiájú elektronokat (Fann et al., 1991; Farkas és Tóth, 1991), a küszöbfeletti emissziós folyamat egyértelmű bizonyítékát szolgáló lépcsőket a fotoelektronspektrumban azonban csak nanoemitterekkel lehetett láthatóvá tenni (1.5 ábra). Az elmúlt évtizedek kísérleti eredményeinek, azok interpretálásának számos vitáját így sikerült lezárni. Egy további érdekes fejleményt jelentett a küszöbfeletti elektronok vivő-burkoló fázisstabilizált impulzusokkal megvalósított attoszekundumos kontrollja (Krüger et al., 2011).



1.5 ábra Nanotűről küszöbfeletti fotoemissziós folyamattal kiváltott elektronok spektruma különböző intenzitásértékek mellett. A kísérleti geometria és az egyes spektrális csúcsokhoz tartozó fotonszám is látható. (Ábra forrása: Schenk et al., 2010)

Az ultragyors nanoemitterek vizsgálata napjainkban tehát két irányban fut tovább: mind a fent bemutatott érdekes alapkutatói aspektusok, mind pl. ultragyors fotokatód-alkalmazások miatt (Li et al., 2013; Hobbs et al., 2014) egy olyan nemzetközi kutatási területté vált, ahol a folyamatosan fejlődő femtoszekundumos lézertechnológia hónapról hónapra jelentős új kutatási eredmények elérését teszi lehetővé egy egyre növekvő kutatói közösség számára. A következő fejezetekben több kapcsolódó saját eredményt is bemutatok az elmúlt évekből.

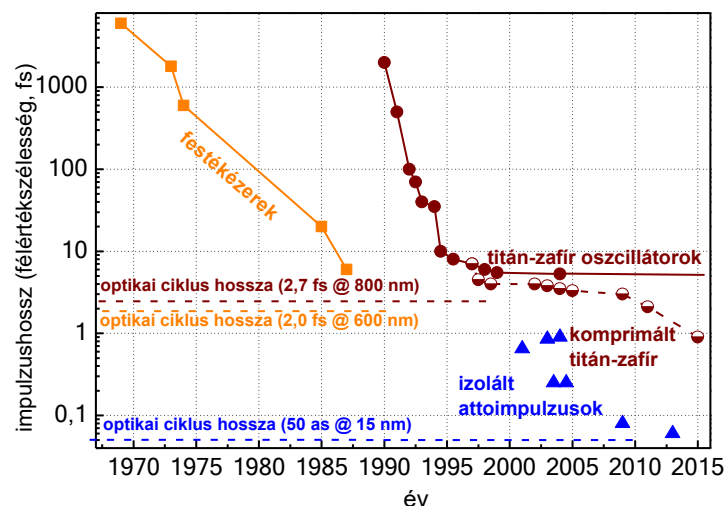
1.6 A kutatásokhoz kapcsolódó femtoszekundumos lézerfizika

A titán-zafír lézerek megjelenése a kilencvenes évek elején forradalmi változásokat hozott a femtoszekundumos lézerek kínálatában. Ez a minőségi ugrás azonban nem vezethető vissza a titán-zafír lézerek közeg egyetlen tulajdonságára, inkább az anyagi, spektroszkópiai tulajdonságok olyan kombinációjáról van szó, amely együttesen alapozta meg ezen lézertípus sikerét és széleskörű elterjedését.

A lézerek közegként történő optimális felhasználást elősegítette a zafírkristály nagy keménysége, jó optikai és hővezetési tulajdonságai és egyszerű előállíthatósága viszonylag nagy méretben is. A környezeti hatásokkal szembeni ellenállóképesség további fontos eleme, hogy a kristály nem higroszkópos, ellentétben számos más lézerek kristállyal. A zafírkristály tulajdonságai közül azonban a legfontosabb az, hogy az alumínium-rács helyek jelentős részére könnyen titánionok juttathatók, melyek vibrációs és elektronátmenetei négyszintes lézerműködést tesznek lehetővé („vibronikus lézer”). A lézernívók vibrációs felhasadása továbbá olyan extrém széles sávokat alakít ki (Moulton, 1986), ami mind a pumpálás szempontjából mind a lézertámenetnél páratlan sávszélességet biztosít a lézerműködéshez, részben a közeli infravörös, részben a látható tartományt lefedve, és előrevetítve minden korábbinál rövidebb lézerimpulzusok előállítását. Erre jó példa, hogy titán-zafír fluoreszcenciafény-spektrumának (konstans spektrális fázissal történő) Fourier-transzformálásával 4 fs-os intenzitás-félértékszélességű lézerimpulzusokat kapunk, és tényleges laboratóriumi lézerműködés során is ehhez nagyon közeli, 5 fs-os impulzusokat tudtak előállítani (Ell et al., 2001).

Az extrém rövid impulzusokat lényegében a rezonátor egyes elemei által biztosított lineáris (diszperzív) és nemlineáris (lézerezősítés, önfázismoduláció, önamplitúdómoduláció) effektusok komplex kölcsönhatása teszi lehetővé, mely mind a módusszinkronizált működés felépülését mind annak stabilan tartását biztosítja (Haus, 2000). A rezonátoron belüli komplex impulzusformálási folyamatot jelen dolgozatban nincs módom részletesen bemutatni, azonban fontos megjegyezni, hogy ez az impulzusformálás sok hasonlóságot mutat optikai szálakban létrejövő szolitonok kialakulásához, mivel abban az esetben szintén az anyagi diszperzió és az önfázismoduláció egyensúlya teszi lehetővé a stabil impulzusokat (Mollenauer et al., 1980). A két eset közti fő különbség abban áll, hogy míg optikai szálak esetén ezek a hatások elosztottan, egymással párhuzamosan jelentkeznek az impulzus terjedése során, addig egy titán-zafír lézerben külön-külön optikai elemek biztosítják a kívánt lineáris és nemlineáris optikai hatásokat.

Mindezekből levezethető a titán-zafír technológia átütő sikere, melynek egy aspektusát, az elérhető legrövidebb impulzushosszak változását az 1.6 ábra mutatja be a lézerek fejlődése során.



1.6 ábra Az elérhető legrövidebb lézerimpulzusok hosszának változása és technológiai váltás a kilencvenes évek elején, amely a titán-zafir lézertípus felfedezésének és fejlesztésének köszönhető. Különbséget tettem a közvetlenül a titán-zafir oszcillátorokból kinyerhető impulzusok és a posztkompressziós, nemlineáris spektrális kiszélesítésen és összenyomáson alapuló sémák impulzusai között (utóbbit ld. „komprimált titán-zafir” néven). Összehasonlításként feltüntettem a magasrendű felharmonikuskeléssel elért izolált attoszekundumos impulzusok hosszát is.

Az ábráról egyértelmű, hogy a titán-zafir lézerek adta lehetőségeket a kilencvenes évek elején maximálisan kiaknázták jónéhány további technológiai újításnak köszönhetően, melyek közül legjelentősebbeknek a magyar találmányként számon tartott fáziskorrigáló („csörpölt”) tükröket (Szipőcs et al., 1994) és a kapillárisos impulzuskompresszorokat tartom (Nisoli et al., 1996). Lényeges, ezeken túlmutató előrelépést a későbbiekben a szintén titán-zafirra épülő erősítőrendszerek továbbfejlesztése jelentette (Backus et al., 1998), melynek köszönhetően ma már akár PW-os impulzus-csúcsteljesítményt nyújtó, a titán-zafir technológiára épülő erősítőláncok is elérhetők (Perry et al., 1999). Ezzel összefüggésben lehetővé vált attoszekundumos impulzusok magasrendű felharmonikuskeléssel történő előállítása is (Hentschel et al., 2001). Mivel az egyik tézispontban a titán-zafir oszcillátorok egy új fajtájánál elért eredményeimet mutatom be, ezért ehelyütt eltekintek a titán-zafir lézerek erősítők bemutatásától.

1.6.1 Diszperziókompenzálás

Ultrarövid lézerimpulzusok létrehozásánál és terjedésüknél kulcskérdés a diszperzió. Az ilyen impulzusok széles spektrumának komponensei minden közegben különböző fázissebességgel terjednek (a látható tartományban: normális diszperzió),

ezt pedig valamilyen alkalmas optikai rendszerrel kompenzálni kell a rövid impulzushossz elérése vagy megtartása érdekében. Az erre szolgáló eszközök, prizma- és rácsparók közül kiemelkednek az ún. fáziskorrigáló („csörpölt”) tükrök, melyekben nem a szokásos $\lambda/4$ -es rétegstruktúra található, hanem folytonosan változó periodicitású rétegrendszer, amely a különböző spektrális komponensekre különböző behatolási mélységet, és így végeredményben optikai úthossz-diszperziót tesz lehetővé (Szipócs et al., 1994). Mivel a diszperzió előjele és a diszperziós függvény alakja (széles határok között) megválasztható, ezért egy jól megtervezett tükrök tetszőleges közeg diszperzióját kompenzálni tudja.

A lézerimpulzusra ható diszperziót az impulzus (jelen esetben széles) spektrumához tartozó fázisfüggvény, $\varphi(\omega)$ segítségével lehet felírni. A fázisfüggvény deriváltjainak neve csoportképleltetés (CsK) és csoportképleltetés-diszperzió (CsKD) a következő definíciók szerint:

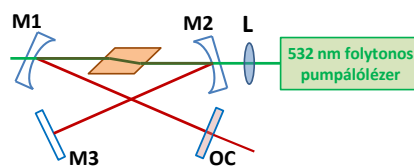
$$CsK(\omega) = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega}, \text{ valamint } CsKD(\omega) = \frac{d^2\varphi(\omega)}{d\omega^2}. \quad (1.7)$$

A tiszta csoportképleltetés ($CsK(\omega) = \text{konstans}$) hatása egy lézerimpulzusra a burkoló időtengely mentén történő eltolása, ez az impulzus alakját nem változtatja meg. A tiszta CsKD (vagyis $CsKD(\omega) = \text{konstans}$) azonban már igen: az impulzus burkolóját torzítja. Ha egy lézerimpulzus bármilyen oknál fogva (pl. anyagon történő áthaladás) CsKD-val rendelkezik, és pl. a fáziskorrigáló tükrökkel ellentétes előjelű $CsKD(\omega)$ függvényt tud biztosítani, akkor a kettő eredőjéből az adott spektrumhoz tartozó lehető legrövidebb impulzushossz adódik. Ezt, a spektrális amplitúdó konstans fázissal történő Fourier-transzformálásával előállítható lézerimpulzust nevezik transzformációkorlátozott impulzusnak.

Fáziskorrigáló tükrök előállításának tehát az a fő célja, hogy egy adott közegben történő lineáris vagy nemlineáris terjedésből származó $CsKD(\omega)$ függvényt kompenzáljuk, ezáltal a spektrum által meghatározott lehető legrövidebb impulzushosszat elérjük. Erre a technikára számos alkalmazást mutatnak be a későbbiekben, és két tézispont is erősen épít ilyen tükrök használatára.

1.6.2 Módusszinkronizált titán-zafír lézeroszcillátorok

A fentiekben már említett komplex (lineáris és nemlineáris optikai) impulzusformálást a kiforrott technológiára épülő titán-zafír oszcillátorokban meglepően egyszerű architektúrával meg lehet valósítani (ld. 1.7 ábra).



1.7 ábra Tükörkompenzált titán-zafír lézeroszcillátor felépítése. L: lencse a pumpáló nyaláb fókuszálására. M1, M2: dikroikus és fáziskorrigáló („csörpölt”) tükrök 800 nm-re nagy reflexióval, 532 nm-re nagy transzmisszióval. M3: (fáziskorrigáló) végtükör, OC: nyitótükör 800 nm-es lézerfény kicsatolására.

A titán-zafír kristályt 532 nm-es folytonos lézer pumpálja, ez legtöbbször rezonátoron belül frekvenciakétszerezett Nd:YVO₄ lézer, melyet legalább 6-7 gyártó kínál jó minőségben, akár 5-18 W közötti teljesítményekkel is. A pumpálólézer fénye fókuszálás után M2 dikroikus tükrön keresztül lép a rezonátorba, a titán-zafír kristályban előálló nyalábnyakkal. A keletkező 800 nm-es lézerfény a pumpálónyalábbal párhuzamosan halad a kristályban, M1 dikroikus tükrök és M3 végtükör tartja a rezonátoron belül. OC részben áteresztő nyitótükör biztosítja a kicsatolást. Ez a lézer alapesetben folytonos működésre képes.

A módusszinkronizált működés felépülését a Kerr-lencsehatáson alapuló önamplitúdómoduláció biztosítja (Haus, 2000): a rezonátort úgy tervezik, hogy optimális lézererősítés (vagyis a pumpáló- és a rezonátornyalábok kristálybeli optimális átfedése) csak akkor legyen, ha a lézerbeli nagy intenzitás miatt kialakul ún. Kerr-lencse, mely a 800 nm-es nyaláb önfókuszálását biztosítja. Ahhoz, hogy a Kerr-lencsehatás érvényesüljön és a folytonos működésből módusszinkronizáció alakuljon ki, megfelelő zaj bevitelével nagy csúcsintenzitású tranzienseket kell kelteni a lézerben, ezt tipikusan a végtükör meglökésével valósítják meg. Így néhány körülmény után kialakul egy olyan femtoszekundumos lézerimpulzus, mely aztán stabilan kering a rezonátorban. A spektrum lézerkristálybeli önfázismodulációs kiszélesedésével a lézererősítés miatti spektrális szűkülés („gain narrowing”, ld. Siegman 1986) tart egyensúlyt. Ugyanilyen egyensúly érvényes az önfázismodulációval együtt járó pozitív diszperzióra és M1-M3 tükrök negatív diszperziójára. Az 1.7 ábrán látható tipikus lézer tehát már maximálisan kihasználja a fáziskorrigáló („csörpölt”) tükrök technológiáját és az általuk nagy sáv szélességben biztosított negatív diszperziót.

Egy ilyen lézer jellemzően néhány nJ-os impulzusenergiát tud biztosítani a 2 m-es rezonátorhossznak (vagyis 4 m-es rezonátorkörülménynek) megfelelő 75 MHz körüli ismétlési frekvenciával. Legfontosabb tulajdonságként azonban, ha M1-M3 és OC elemek reflexiók és diszperziók sáv szélessége elég nagy, akkor akár 5 fs körüli félérték szélességű lézerimpulzusok is kicsatolhatók a lézerből (Ell et al., 2001). Az impulzusenergiát aztán titán-zafír erősítőkben lehet tovább növelni az ismétlési frekvencia „feláldozása” révén, hiszen az erősítők tipikusan 1 kHz, maximálisan 100-200 kHz körüli ismétlési frekvenciával üzemelnek (Backus et al., 1988). Ugyan nemrég 1,7 MHz-es regeneratív titán-zafír erősítőt is demonstráltak valamivel 1 μ J

fölötti impulzusenergiával (Zhang et al., 2012), azonban a pumpáláshoz szükséges közel 30 W lézerteljesítmény, a kristály kriogenikus hűtésének követelménye és a komplex erősítőarchitektúra miatt a rendszer stabilitása és üzembiztonsága nem összemérhető egy lézeroszcillátoréval.

1.6.3 Hosszú rezonátoros lézerek

A fent bemutatott oszcillátortervezési elvek ismeretében természetesen merül fel a kérdés, hogy lehetséges-e közvetlenül titán-zafir oszcillátorból lényegesen nagyobb energiájú impulzusokat nagy ismétlési frekvenciával nyerni. Sajnos a pumpálóteljesítmény növelése nem célravezető megoldás, hiszen egy hagyományos oszcillátorban kb. 10 W fölött olyan káros nemlinearitások jelennek meg, melyek a stabil módusszinkronizált impulzus felbomlásához, kettősimpulzusok kialakulásához vagy folytonos lézerhátter megjelenéséhez vezetnek. Az oszcillátorfej átépítésével, a kristályban lényegesen nagyobb nyalábnyakak kialakításával pedig a módusszinkronizáció felépüléséhez és stabil működéséhez szükséges önamplitúdómoduláció és önfázismoduláció kényes egyensúlyát tesszük tönkre. A kétezres évekig az egyetlen megoldás nagyenergiájú impulzusok lézeroszcillátorból történő kinyerésére a rezonátorürítés („cavity dumping”) volt. Ennek a lényege, hogy a rezonátort két nagy reflexiójú végtükörrel „lezárjuk” és valamilyen aktív (akusztó- vagy elektrooptikai) elemmel a felépülő módusszinkronizált impulzusokat periodikusan a rezonátor belsejéből kicsatoljuk (Siegman, 1986). A módszer hátránya, hogy a beépített aktív elemek tönkreteszik a diszperziókompenzálást és hátrányosan érintik a stabil lézerműködést is. Ezzel a módszerrel ugyan el lehet érni 100-200 nJ-os impulzusokat, de a szükséges elektronika és nagyfeszültségű kapcsolók komplexitása miatt csak néhány tucat kHz-es ismétlési frekvenciával (Rimington et al., 2001; Zhavoronkov et al., 2005).

Nagyenergiájú módusszinkronizált impulzusok nagy ismétlési frekvenciával történő előállítására azonban egy további, egyszerűbb és hatékonyabb út kínálkozik: közel változatlan pumpálással és oszcillátorfejjel (ld. pl. 1.7 ábrán az M1-kristály-M2 vonalat) a rezonátor hosszának számottevő megnövelése. Ekkor, változatlan módusszinkronizált átlagteljesítményt feltételezve, az ismétlési frekvencia (körüljárási idő) csökkenésével (növelésével) fordított (egyenest) arányban növelhető az egy impulzusra jutó energia.

Ezt az utat követve azonban három fő tényezőt kell kiküszöbölni, hogy a stabil, módusszinkronizált lézerműködést megtartsuk:

i) az 1.7 ábrát tekintve M3 és OC M1/M2-től való távolítása során a rezonátorstabilitás nyilvánvalóan összeomlik, hiszen az eredeti optikai elemek ABCD-mátrixaihoz olyan nagy propagációs járulékokat adunk, amely megghiúsítja a nyalábok rezonátoron belül maradását.

ii) fenn kell tartanunk a módusszinkronizáció zajból történő felépülésének feltételét, vagyis a kellően nagy önamplitúdómodulációs tényezőt. A tapasztalat szerint ez a rezonátor hosszának növelésével egyre nehezebbé válik.

iii) a kialakuló nagy impulzusenergiák pedig nem okozhatnak olyan káros nemlineáris hatásokat, melyek az impulzusok felbomlásához vezetnek.

Nem egyszerű olyan lézerrezonátort tervezni, amely i)-iii) feltételeknek egyidejűleg eleget tesz. A tézispontokhoz kapcsolódva ezért azokat a lézerfizikai kutatásaimat is bemutatom, amelyek a hosszú rezonátoros titán-zafír lézerek ma is használt konfigurációjához és azok elterjedéséhez vezettek. Ezek az egyedi paramétertartományban működő lézerek néhány érdekes ultragyors optikai jelenség demonstrálását is lehetővé tették, melyeket az 5. fejezetben szintén tárgyalok.

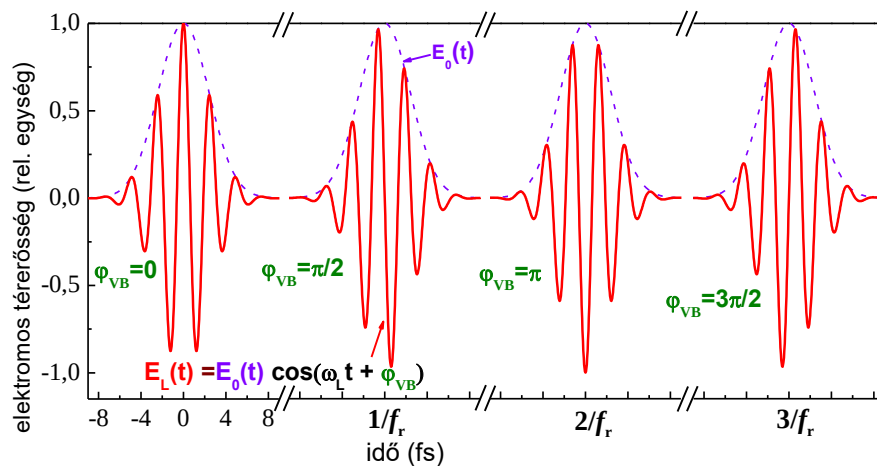
Nagyenergiájú módusszinkronizált impulzusok nagy ismétlési frekvenciával történő előállítása a plazmonikai kutatásaim szempontjából pedig azért bír nagy jelentőséggel, mert ultragyors, erős terekben lejátszódó plazmonikai jelenségeket optimálisan lehet velük indukálni. Fém vékonyréteg illetve nanostrukturált minták esetén a plazmonos térnövekményt kihasználva erőstér-jelenségeket is demonstrálni tudtam, egyedülálló módon néhányszor tíz mikrométeresre fókuszált oszcillátorimpulzusokkal. A nagy ismétlési frekvencia pedig nemcsak egy alkalmazásközelibb kísérleti környezetet biztosított, hanem számos elektronspektroszkópai mérés idejét is jelentősen le tudtam csökkenteni. Ezért a bemutatandó ultragyors plazmonikai kísérleti program szerves részét képezték a tézispontokban foglalt fényforrásfejlesztési lépések is.

1.6.4 Vivő-burkoló fázisstabilizálás

A kétezres évekre előállt az az előnyös helyzet, hogy a lézertechnológiai fejlesztéseknek köszönhetően ultrarövid lézerimpulzusok hossza összemérhetővé vált az optikai ciklussal (vagyis a hullámhossznak megfelelő periódusidővel, $2\pi/\omega_L$ -l), amint azt a fentiekben bemutattam. Ez a helyzet azonban egy új kérdést is felvetett. Ilyen esetekben ugyanis a lézerimpulzus alakjának

$$E_L(t) = E_0(t) \cos(\omega_L t + \varphi_{VB}) \quad (1.8)$$

leírásában a φ_{VB} , ún. vivő-burkoló fázis tag szerepe is jelentőssé válik. Amint azt könnyen beláthatjuk, ha például az $E_0(t)$ burkoló egy olyan Gauss-függvény, amelynek félértékszélessége az optikai ciklushossznál lényegesen nagyobb, az $E_L(t)$ -függvény lefutásában a φ_{VB} fázis tag szerepe elhanyagolható. Ez azonban jelentősen megváltozik, amint $E_0(t)$ félértékszélessége és $2\pi/\omega_L$ összemérhetővé válik, vagyis ún. kevés ciklusú impulzusok esetén. A vivő-burkoló fázis optikai hullámformára gyakorolt hatását illusztrálja az 1.8 ábra.



1.8 ábra Kevés optikai ciklusból álló, 4 fs-os, 800 nm központi hullámhosszal rendelkező, gaussi burkolójú lézerimpulzusok vivő-burkoló fázisa és az impulzusonkénti fáziscsúszás. Ha a félértékszélesség és az optikai ciklus összemérhető, a vivő-burkoló fázis jelentős hatással van az optikai hullám alakjára. (f_r adott esetben a módusszinkronizált impulzusvonalat ismétlési frekvenciája).

Természetesen merül fel a kérdés, hogy a legalapvetőbb fény-anyag kölcsönhatási folyamatok vizsgálata során vajon a φ_{VB} fázistag játszik-e bármilyen szerepet. A fenti megfontolás alapján az is látható, hogy pozitív választ csak akkor kaphatunk, ha kevés ciklusú lézerimpulzusok kölcsönhatását tekintjük. Mindennek kísérleti megerősítéseként elsőként részben a szerző, részben mások kimutatták, hogy a vivő-burkoló fázis meghatározó szereppel bír akár a fémfelületi fotoemisszió szempontjából (Dombi et al., 2003, 2004; Apolonski et al., 2004), akár ultrarövid lézerimpulzusokkal indukált magasharmonikus-keltésnél (Baltuska et al., 2003). Így felmerül a kérdés, hogy vajon ez a fázisparaméter a felületi plazmonok által közvetített jelenségek szempontjából is meghatározó-e, így a jelen műben többek között ennek vizsgálatával is részletesen foglalkozom.

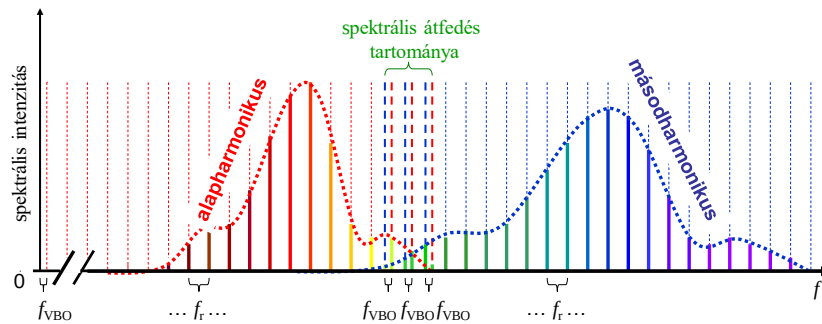
Bevezetésként mindössze annak rövid bemutatására vállalkozom, hogy miként lehet a vivő-burkoló fázist egy lézer(rendszer) kimenetén stabilizálni, mi az a lézerfizikai felfedezés, amely a fázisstabilizált impulzusokkal végzett kísérleteket lehetővé tette. Az alapötlet megértéséhez tekintsünk egy tipikus módusszinkronizált lézeroszillátort, ahol az impulzusok oszcillátoron belüli fázis- és csoportsebességviszonyait a különböző termikus, nemlineáris optikai és egyéb hatások jelentősen befolyásolják. Mivel az impulzus burkolója csoport-, a vivőhullám fázissebességgel terjed, ezért a vivő-burkoló fázis jelentősen fluktuál, egy tipikus módusszinkronizált oszcillátorban korántsem tekinthető stabilnak. Ezért fontos egy olyan aktív visszacsatolási mechanizmus megvalósítása, amely lehetővé teszi ennek a fontos

impulzusparaméternek a stabilizálását. A stabilizálás megvalósításához szükséges mennyiségeket azonban nem egyszerű mérni, ahhoz egy alapvető lézerfizikai újítás volt szükséges.

A 2005-ös fizikai Nobel-díjban jelentős szerepet játszó felfedezés lényege a következő (Cundiff, 2002). Ismert, hogy a módusszinkronizált impulzusvonulat spektruma egy egyenközü frekvenciafésű, amelynek a burkolója a ténylegesen mérhető lézerspektrum, a fésű fogai pedig f_r távolságra vannak egymástól, ahol f_r az impulzusok ismétlési frekvenciája (ld. 1.8 és 1.9 ábrák). Az impulzusvonulat frekvenciatartománybeli képében a legérdekesebb a fésűstruktúra nullfrekvenciás ofszetje (f_{VBO}), amely egyszerű kapcsolatban áll az impulzusvonulaton belüli, impulzusról impulzusra történő vivő-burkoló fáziscsúszással:

$$\Delta\varphi_{VB} = \frac{2\pi f_{VBO}}{f_r} . \quad (1.9)$$

Ha tehát a nullfrekvenciás ofszetet valahogyan mérni lehetne (eddig ugyanis nyilvánvalóan nem terjed az oszcillátor spektruma), akkor éppen az impulzusonkénti vivő-burkoló fáziscsúszásról szerezni információt. Itt jön a képbe egy egyszerű, ám annál hatékonyabb technika: amennyiben a módusszinkronizált impulzusvonulat frekvenciafésűje oktáv szélességű és ezt a megfelelő tartományban frekvenciakétszerezésnek vetjük alá, úgy az alapharmonikus és a másodharmonikus frekvenciafésű közti lebegés éppen a keresett f_{VBO} frekvenciát szolgáltatja (1.9 ábra), amelyet ezért a továbbiakban vivő-burkoló ofszetfrekvenciának nevezek.



1.9 ábra Vivő-burkoló fázisstabilizálás alapelve a módusszinkronizált (az illusztráláshoz nem gaussi spektrumú) impulzusvonulat frekvenciakétszerezésével. Amennyiben az oszcillátorspektrum oktáv szélességű és a teljes spektrumot frekvenciakétszerezjük, az átfedési tartományban előálló lebegési frekvencia éppen az alapharmonikus frekvenciafésű nullfrekvenciás ofszetjével egyezik meg.

f_{VBO} mérésével és az ebből egyszerűen származtatható hibajel visszacsatolásával tehát $\Delta\varphi_{VB}$ is mérhetővé, ezáltal pedig aktívan stabilizálhatóvá válik. Az oszcillátorkimenet frekvenciakétszerezését egy megfelelő ún. f - $2f$ interferométerben véghez lehet vinni és az alapharmonikus és másodharmonikus nyalábokat interferáltatni (amennyiben szükséges, akkor az optikai oktávhoz nélkülözhetetlen spektrális kiszélesítés után). Az így mért f_{VBO} és egy tetszőleges referenciafrekvencia közti hibajelét a lézeroszillátorba

visszacsatolva f_{VBO} és ezáltal $\Delta\varphi_{VB}$ stabilizálható. Leghatékonyabban a pumpálónyaláb (pl. akusztóoptikai) teljesítménymodulálásával érhetjük el azt a hatást, hogy a csoport- és fázissebességviszonyokat (többfajta nemlineáris mechanizmuson keresztül) úgy változtatjuk meg, hogy létrejöjjön az oszcillátorba történő visszacsatolás. Ezzel a technológiával tehát gyakorlatilag a módusszinkronizált oszcillátorkimenet tetszőleges impulzusának vivő-burkoló fázisát meghatározott értéken tudjuk tartani ($f_{VBO} = \text{konst.}$, vagyis $\Delta\varphi_{VB} = \text{konst.}$), illetve egy további lépéssel a teljes impulzusvonulat fázisát stabilizálni tudjuk ($f_{VBO} = 0$, $\Delta\varphi_{VB} = 0$). Nem mellesleg pedig egy olyan stabil, optikai frekvenciafésűvel is rendelkezünk, amely ultrapontos frekvenciametrológiára is használható (Udem et al., 2002; Ma et al., 2004).

Ha az oszcillátor viszonylag gyors (MHz-es) fázisingadozásának stabilizálását a fent bemutatott pumpálóteljesítmény-modulálással megoldjuk, akkor femtoszekundumos erősítők vivő-burkoló fázisa is könnyen stabilizálható. Nincs másra szükség, mint egy fázisstabilizált oszcillátorral létrehozni az erősítő magimpulzusait. Mivel az erősítők tipikusan már csak kHz-es ismétlési frekvenciájúak, ezért egy további, „lassú” (kHz-es) szervókörrrel kell az erősítőben létrejövő vivő-burkoló fázisingadozást kompenzálni. Ezzel a kettős szervóköros módszerrel (ld. a későbbiekben pl. a 4.2 ábrát) több, mint egy évtizede fázisstabil, erősített lézerimpulzusokat is létre lehet hozni (Baltuska et al., 2003). A femtoszekundumos oszcillátorok és erősítők fázisstabilizálásának módszereit a 4. fejezetben bemutatandó, új tudományos eredmények demonstrálásánál is használni fogom.

2 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 során fedezték fel olyan kísérletek során, ahol kevésciklusú lézerimpulzusok nemesgázatomokkal hatottak kölcsön. Az ilyenkor lejátszódó folyamatok, a küszöbfeletti ionizáció (Paulus et al., 2003), a magasrendű felharmonikusok keltése (Baltuska et al., 2003), valamint a nemszekvenciális kettősionizáció kivétel nélkül vivő-burkoló fázisérzékenynek, vagyis az optikai tér által meghatározottnak bizonyultak (Liu et al., 2004). A 2003-as évben viszont még nem volt ismert olyan kísérleti eredmény, amely az extrém rövid (kevesciklusú) lézerimpulzusok és szilárdtestek kölcsönhatására vonatkozott volna. Az első olyan felfedezésünket, amely a közönséges sokfotonos fémfelületi fotoemisszió vivő-burkoló fázisérzékenységét mutatta meg, ekkor publikáltuk (Apolonski et al., 2004; Dombi et al., 2004).

Mindezeken túlmutatva, haladó és lokalizált 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 nanooptikai 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 olyan rövid időtartamú felületi plazmonhullámcsomagokat keltetni, melyek időtartama összemérhető a gerjesztő impulzuséval. Ilyen plazmonhullámcsomagok 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 (Ivanov és Krausz, 2009). Miként lehet az ilyen extrém rövid felületi impulzusokat helyesen karakterizálni? Kevés optikai ciklusú hullámcsomagok segítségével lehetséges-e plazmonos alagútemissziót indukálni fémfelületekről, valamint ultrarövid plazmonhullámcsomagokkal hatékonyan lehet-e a fotoelektronokat keV-os energiáig gyorsítani a fémfelület nanométeres környezetében? Ezen kérdések megválaszolásához a 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, Taflöv és Hagness, 2005). A kísérletek mellett ezért részfeladatnak tűztem ki egy egyszerű modell felállítását, amely a (haladóhullám) plazmontér fenomenologikus leírásán alapul. Ez a numerikus végeselem illetve véges differencia-módszerek használatát szükségtelenné 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 tárni. Az új modell segítségével pedig célom 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. A kevés ciklusú impulzusok elterjedése után a kétezres években megjelent egy olyan femtoszekundumos lézerfizikai megoldás is, 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. 100-200 kHz-től több MHz-ig terjedő) ismétlési frekvenciával biztosít a közönséges lézeroszcillátorokénál lényegesen nagyobb energiájú (több száz nJ-os) lézerimpulzusokat. Ez az impulzusparaméter-tartomány, azon túl, hogy legalább két nagyságrenddel nagyobb energiát biztosít, mint a hagyományos lézeroszcillátorok, 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. Mintegy 15 éve ismert, hogy a kérdéses impulzusparamétereket speciális, hosszú rezonátoros titán-zafír és itterbium-alapú lézeroszcillátorokkal lehet elérni (Cho et al., 2001; Kowalewicz et al., 2003; Fernandez et al., 2004).

Az impulzusenergia skálázását és a rezonátoron kívüli impulzusösszenyomást az első hosszú rezonátoros lézerekkel még nem valósították meg. Ezért célom volt egy hosszú rezonátoros titán-zafír lézeroszcillátor megépítése és a plazmonikai kísérletek érdekében történő továbbfejlesztése valamint impulzusainak összenyomása újonnan elérhető nemlineáris száloptikai elemekkel (leginkább az ún. nagy módusfelületű fotonikus szálakkal). Ebben a témakörben nem fogom figyelmen kívül hagyni a lézerfizikai kutatásokból adódó, ám az ultragyors plazmonika területén kívül eső alkalmazási lehetőségeket sem.

Célul 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 fotovoltaikában 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. Céлом 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.

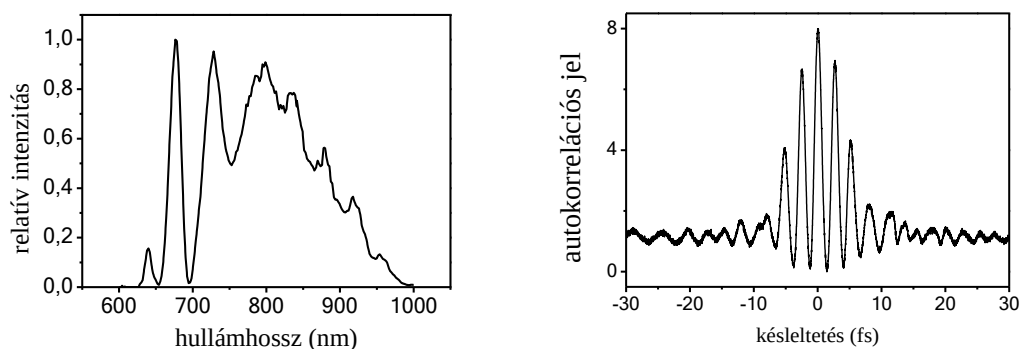
Mivel mind az alagútemisszióba történő átmenet mind az elektronok átlagos oszcillációs energiája kedvezően skálázódik a hullámhossz növelésével (ehhez ld. az (1.1) és (1.2) összefüggéseket), ezért célul tűztem ki a felületi plazmonos fotoemisszió és elektrongyorsítás vizsgálatát a rohamos fejlődésen 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 egyúttal nanoméretű vákuumdiódaaként is szolgál.

3 Kevésciklusú, haladó felületi plazmon hullámcsomagok időbontott vizsgálata

Láttuk, hogy a femtoszekundumos lézertechnológia fejlődése lehetővé tette azt, hogy olyan, extrém rövid lézerimpulzusokat használjunk, ahol a burkoló időtartama (félértékszélessége) összemérhető a vivőhullám periódusidejével. Az ilyen kevésciklusú lézerimpulzusok jelentősége pl. az attoszekundumos tudományban már a kétezres évek elejére nyilvánvalóvá vált (Brabec és Krausz, 1997), hiszen ezek segítségével attoszekundumos egyesimpulzusokat lehet kelteni, szemben a hosszabb lézerimpulzusokkal kelthető attoszekundumos impulzusvonulatokkal (Farkas és Tóth, 1991). Ezért természetesen merül fel a kérdés, hogy a szabad térben terjedő extrém rövid hullámcsomagokhoz hasonlóan, vajon lehetséges-e ilyen rövidségű haladó felületi plazmon-hullámcsomagokat kelteni. Ehhez nyilvánvalóan olyan lézeroszcillátorra van szükség, amely kevésciklusú impulzusokat biztosít. A kérdés megválaszolásához ezért kísérleti berendezést építettem Budapesten, melyet a Max Planck Kvantumoptikai Intézetben használtam fel. Az ott rendelkezésre álló 5 fs-os impulzusokat előállító, egyedülálló titán-zafír oszcillátorral végeztem kísérleteket az alábbiakban bemutatandó módon.

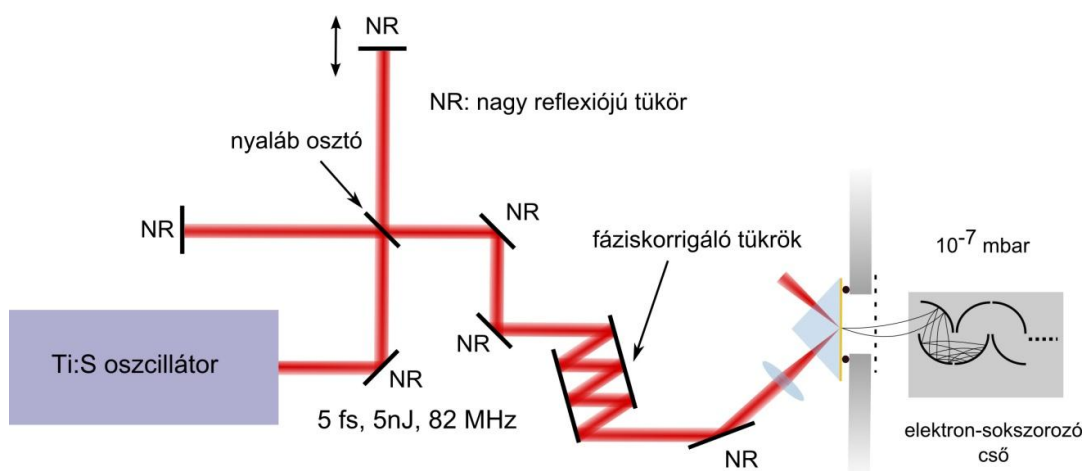
3.1 Kísérleti módszerek

Kísérleteimhez egy 5 fs-os, 5 nJ energiával rendelkező impulzusokat 795 nm-es központi hullámhosszon előállító titán-zafír oszcillátort használtam a Max Planck Kvantumoptikai Intézetben. A valamivel kevesebb, mint két optikai ciklusnak megfelelő impulzushossz extrém széles spektrummal párosul, amit az oszcillátorban használt fáziskorrigáló („csörpölt”) tükrös technológia jelentős fejlődése tett lehetővé. Az oszcillátor spektrumát és az általa biztosított impulzusok interferometrikus autokorrelációs jellemzését a 3.1 ábrán mutatom be. Az ábráról megállapítható, hogy a széles spektrumnak megfelelő transzformációkorlátozott impulzushosszhoz közeli, extrém rövid lézerimpulzusok álltak rendelkezésre.



3.1 ábra Nagy sávzélességű titán-zafír lézeroszcillátor spektruma (bal oldalon) és kibocsátott impulzusok másodrendű interferometrikus autokorrelációja (jobb oldalon).

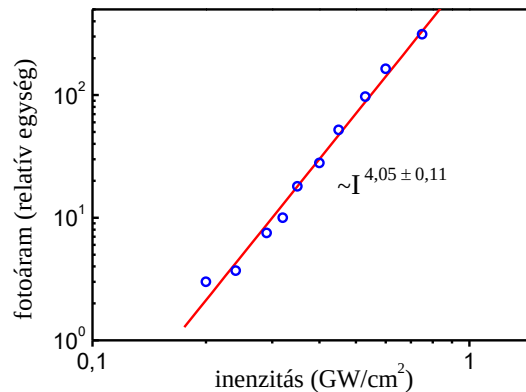
Az impulzusokkal történő haladó felületi plazmonhullámkeltéshez a 3.2 ábrán bemutatott optikai elrendezést és kísérleti berendezést építettem. Ez nagyrészt megegyezik egy olyan másodrendű interferometrikus autokorrelátor felépítésével, amelyet impulzuskaracterizálásra is használnak, a következő alapvető különbségekkel. i) Az interferométer és a nemlineáris detektor között elhelyezett fáziskorrigáló tükrökkel biztosítom a transzformációkorláthoz közeli impulzushosszat a mintán, főleg a prizma anyagi diszperziójának előkompenzálásával. ii) A másodharmonikus kristály mint nemlineáris detektor helyett a plazmonikus fém vékonyrétegről történő nemlineáris fotoemisszió játssza a nemlineáris detektor szerepét.



3.2 ábra Optikai elrendezés és elektrondetektálás kevés optikai ciklusú HFP hullámcsoomagok keltéséhez és karakterizálásához. Az interferométer után a diszperziókompenzálásra szolgáló tükrökön keresztül jut el a fény a Kretschmann-konfigurációban történő plazmonkeltéshez. NR: nagy reflexiójú ezüstitűkrök, Ti:S: titán-zafír.

A prizma egyúttal egy vákuumkamra ablakaként is szolgál, melyben 10^{-7} mbar vákuumot értem el. A kamrában a fémfelületről kilépő fotoelektronokat egy Hamamatsu R595 típusú elektronsokszorozóval detektáltam. A nemlinearitás helyes

meghatározásához az interferométer egyik karjának kitakarásával felvettem az intenzitás-fotoáram karakterisztikát. Ezt kétszer logaritmikus skálán ábrázolva (3.3 ábra) megállapítható, hogy a négyfotonos fotoemisszió tiszta esetével van dolgunk (v.ö. az 1.4 összefüggéssel), vagyis a bemutatott elrendezést negyedrendű autokorrelátorként lehet használni, amennyiben a Michelson-interferométer egyik karjának eltolása függvényében mérjük a fotoáramot.

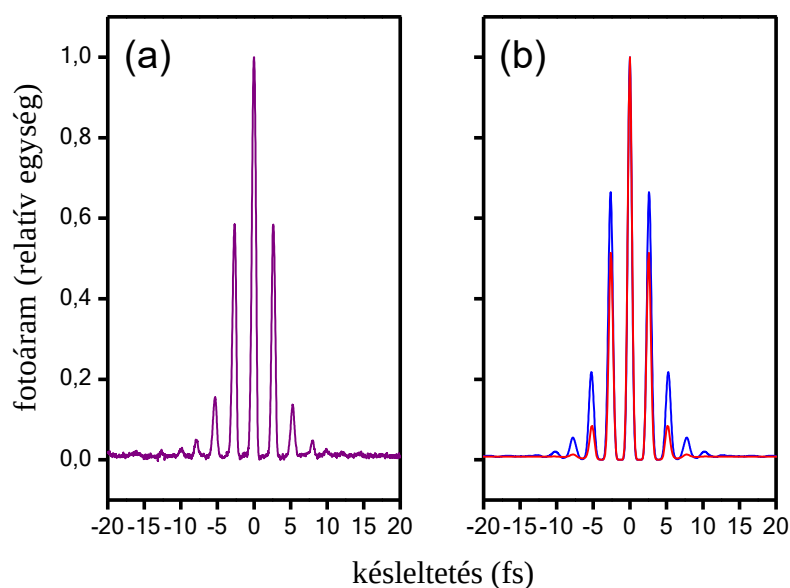


3.3 ábra Intenzitás-fotoáram karakterisztika a HFP által indukált fotoáramra vonatkozóan (mérési pontok). Az illesztés (egyenes) egyértelmű negyedrendű nemlinearitást mutat.

A HFP keltéséhez továbbá erősen fókuszált nyalábot használtam annak érdekében, hogy minél nagyobb optikai sávszélességet sikerüljön plazmonhullámmá konvertálni. A felhasznált nagy numerikus apertúra miatt a fókuszált nyalábbeli k -vektorok széles beesési szögtartományt fednek le, ezzel pedig a plazmonbecsatolás hullámhossz- és szögfüggése csatolódik egymáshoz, nagyobb effektív sávszélességet eredményezve. A nyaláb jellemző foltmérete a fókuszban $\sim 9 \mu\text{m}$ körüli volt.

3.2 Kísérleti eredmények

A fenti feltételekkel elvégeztem az autokorrelációs mérést a 3.2 ábra kapcsán már ismertetett elrendezésben. Az interferométer karjai közti késleltetés függvényében mérhető teljes fotoáram a 3.4(a) ábrán látható.



3.4 ábra (a) Mért interferometrikus autokorrelációs jel, amely lényegében a kevés ciklusú impulzusokkal keltett HFP által erősített fotoemissziós jel a késleltetés függvényében. (b) Egy 5 fs-os lézerimpulzus 3.1-es összefüggés alapján számolt negyedrendű autokorrelációs függvénye (vörös görbe), illetve a mérés rekonstrukciójára megalkotott kiértékelési eljárással számolt autokorreláció (kék görbe). A levonható következtetéseket ld. a szövegben.

Az ábrán egyértelműen egy rövid hullámsomag autokorrelációs függvényére hasonló görbe látható. Mivel a mérés a beeső nyalábbal ellentétes oldalon történik, ahol a fémfelületen plazmonhullám fut végig, ezért a HFP hullámsomag alakja határozza meg a mérhető görbét. A mért görbe jellegében nagyon hasonló, mint az 5,0 fs-os gerjesztő impulzus számolt negyedrendű autokorrelációs függvénye (ld. 3.4(b) ábra), ami arra utal, hogy az így keltett HFP hullámsomag egy ultrarövid, kevés optikai ciklusból álló impulzusként halad a felület mentén. Ez a hullámsomag a terjedés során diszperzív hatások miatt nyilvánvalóan kiszélesedik, ám ez már csak elhanyagolható mértékben járul hozzá a mért autokorrelációs jelhez a $\sim 8,5 \mu\text{m}$ terjedési hosszhoz bekövetkező teljes abszorpció (Kroó et al., 1991) illetve a kiszélesedés miatti csúcsintenzitás-csökkenés miatt. Az egyértelmű indikációk alapján célom volt egy olyan kiértékelési eljárás definiálása, amellyel a hullámsomag időtartamára pontosan következtethetünk. Ehhez a következő megfontolásokat és lépéseket tettem.

Egyrészt a mért jelet adó nemlineáris folyamat válaszidejének természetesen rövidebbnek kell lennie, mint a mérendő impulzushossz. Ez nyilvánvalóan teljesül, hiszen a fotoemissziós folyamat során négy foton együttes kölcsönhatása révén lép ki az elektron, olyan köztes állapotok pedig nincsenek a Fermi-szint és a vákuumszint között, ami az emisszió femtoszekundumos késleltetését okozná. Megjegyzendő, hogy ez a feltétel kiválóan teljesül hagyományos, optikai másodharmonikus-keltésre épülő

autokorrelátorok esetén is, ahol a nemlineáris konverziós folyamat szintén 1 fs alatti válaszidővel bír.

Az előző szakaszban bemutatott mérések alapján (ld. 3.3 ábra) megállapítható, hogy negyedrendű folyamat szolgál a hullámcsoport karakterizálására, ennek megfelelően az interferometrikus (kollineáris) elrendezésből várt negyedrendű autokorrelációs függvény a karok közti késleltetés függvényében az

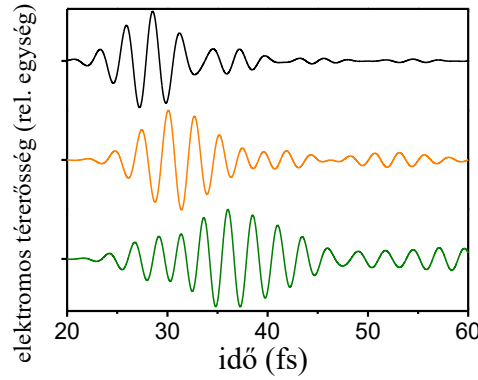
$$I_{ac}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \left| (E(t) + E(t + \tau))^2 \right|^4 dt \quad (3.1)$$

alakot ölti. Ezt a görbét (5,0 fs-os lézerpulzusból kiindulva) a 3.4 ábra (b) paneljén vörös színnel ábrázoltam. Az (a) panelen látható mért görbe ennél nyilvánvalóan szélesebb. Ennek egyik oka, hogy a méréshez felhasznált fémréteg nem tökéletesen (nem atomi szinten) sík, az enyhén érdes felület különböző pontjain keletkezett jeleket pedig integráltan detektáltam. A felület granuláris részein a HFP-k lokalizálódhatnak, az ilyen lokalizált plazmonok gerjesztésének sáv szélessége pedig ismert, hogy kisebb, mint egy 800 nm-en 5 fs-os impulzus spektrális sáv szélessége (Gotschy et al., 1996). További sáv szélességkorlátozó tényezőt jelenthet a HFP-k becsatolása, ezt azonban az erős fókuszálással kiküszöböltem.

3.3 A kísérleti eredmények kiértékelése

A fentiek alapján szükség volt egy olyan kiértékelési eljárás kidolgozására, amely mindezen hatásokat: a felületi plazmon becsatolását, a terjedést és a több térbeli pontból származó emissziót figyelembe véve írja le a mérés során keletkező jelet. Első lépésként kanadai kollégám, Scott Irvine a Maxwell-egyenletek végesdifferenciásmódszerre épülő numerikus megoldásával meghatározta az enyhén érdes felület egyes pontjain kialakuló HFP-lefutást i) a konkrét, mért plazmonbecsatolási geometria, ii) az alagútmikroszkóppal mért felületi érdesség (2,8 nm-es topográfiai szórás), valamint iii) a gerjesztő impulzus alakjának pontos ismerete alapján. Ezzel egy olyan térképet kaptam a felületről, amely a modellezési rács diszkrét pontjaira megmutatta a HFP térerősségének a lefutásait. Három reprezentatív felületi pontra a 3.5 ábrán mutatok be ilyen térerősség-lefutásokat.

A megalkotandó modellhez paraméterként tehát adott volt a felületi plazmon tér időbeli lefutása a felület különböző, i -vel indexelt pontjain: $E_{\text{HFP}}(t, \mathbf{r}_i)$. Itt már látható, hogy a HFP kialakulása során változhat az impulzushossz a plazmon tér már említett, felületi szemcséken történő lokalizációja következtében.



3.5 ábra Az elektromos térerősség numerikusan, a Maxwell-egyenletekből meghatározott időbeli lefutása három reprezentatív felületi pontra enyhén érdes felület esetén a kísérleti paraméterek felhasználásával.

A mért autokorrelációt szimuláló modellt a következő elemekből állítottam össze: i) a késleltetést két, egymástól időben eltolt felületi plazmonimpulzussal modelleztem, melyek elektromos terei lineárisan összegződnek a felület minden egyes pontjában. ii) Az elektromos tér ismeretében minden egyes pontra származtatható az onnan emittált teljes töltés. iii) Ezt a mennyiséget az összes figyelembe vett pontra összegezve (vagyis azokra a pontokra, ahol a plazmontér időbeli lefutása ismert volt) megadható az adott késleltetéshez tartozó teljes plazmonosan emittált töltés. iv) Ezt az eljárást különböző késleltetéseknél megismételve származtattam a mérési görbét modellező függvényt, amely a mérési folyamat összes lényeges sajátosságát figyelembe veszi. Lényeges megemlíteni, hogy ezzel a folyamattal illesztési paraméterek nélkül rekonstruálható a mért autokorrelációs jel.

A modell használatához a következő formális lépéseket kell tenni. A késleltetés függvényében a felület egyes pontjain kapható térerősség az

$$\tilde{E}_{\text{HFP}}(t, \mathbf{r}_i, \tau) = E_{\text{HFP}}(t, \mathbf{r}_i) + E_{\text{HFP}}(t + \tau, \mathbf{r}_i) \quad (3.2)$$

összefüggésből származtatható, ahol τ az interferométer karjai közti késleltetés. Az így kapott hullámforma $\tilde{B}_{\text{HFP}}(t, \mathbf{r}_i, \tau)$ burkolóját a burkoló alatti optikai ciklusok maximális amplitúdójú pozícióiban illesztéssel, illetve ezek között interpolációval lehet származtatni. Ennek a burkolónak a négyzetével arányosnak vettem az idő- és térbeli intenzitásprofilt, amelyet a következőképpen definiáltam:

$$\tilde{I}_{\text{HFP}}(t, \mathbf{r}_i, \tau) \sim \tilde{B}_{\text{HFP}}^2(t, \mathbf{r}_i, \tau) \quad (3.3).$$

Mivel a folyamatot kísérletileg bizonyítottan négyfotonos emisszió jellemezte, ezért ilyenkor a pillanatnyi fotoáram arányosnak vehető az intenzitásburkoló negyedik hatványával: $j(t, \mathbf{r}_i, \tau) \sim \tilde{I}_{\text{HFP}}^4(t, \mathbf{r}_i, \tau)$. A fenti ii) alapján a felület egy adott pontján a folyamat során a teljes fotoemittált töltés ennek az idő szerinti integráljával arányos, vagyis egy konstans szorzótól eltekintve igaz, hogy

$$\tilde{Q}(\mathbf{r}_i, \tau) \sim \int_t \tilde{I}_{\text{HFP}}^4(t, \mathbf{r}_i, \tau) dt \quad (3.4).$$

Végül pedig összegezve a felület különböző pontjaiból származó fotoemittált töltésmennyiségeket megkaphatjuk egy adott τ késleltetéshez tartozó teljes mérhető jelet:

$$j(\tau) = \sum_i \tilde{Q}(\mathbf{r}_i, \tau) \quad (3.5).$$

A 3.2–3.4 lépéseket nagy számú felületi pozícióra programozva (melyet Rácz Péter kollégám végzett el) megkaptuk a 3.4 ábra (b) részén a kék görbét. A vörös görbe, ahogy arról már korábban szó volt, a felületi plazmont keltő 5,0 fs-os lézerimpulzus számított negyedrendű autokorrelációs görbéje. Az így rekonstruált görbe félértékszélessége kb. 15%-kal tér el a 3.4 (a) ábrán látható mértől. Az eltérés lehetséges oka a HFP terének, a felületi profilnak tökéletlen rekonstruálása. Az 5,0 fs-os lézerimpulzus negyedrendű autokorrelációs függvénye (3.4 (b) ábra, vörös görbe) ezzel szemben kb. 12 %-kal rövidebb, mint a mért felületi autokorrelációs görbe.

Mindezek alapján azt lehet megállapítani, hogy a vizsgált felületi plazmon hullámcsomagok mindenképpen kevés optikai ciklusból állnak, és ezt az autokorrelációs mérés és annak rekonstrukciós eljárása nagy biztonsággal igazolja (Dombi et al., 2010).

3.4 Összefoglalás

Kísérleti módszert dolgoztam ki ultrarövid, néhány fs-os felületi plazmon hullámcsomagok időbeli tulajdonságainak vizsgálatára. A kidolgozott kísérleti módszer laboratóriumi megvalósításával és az eredmények rigorózus kiértékelésével elsőként szolgáltatam megalapozott kísérleti bizonyítékot kevés optikai ciklusú HFP hullámcsomagok létére (Dombi et al., 2010). Kimutattam, hogy kevés optikai ciklusú lézerimpulzusok olyan kevés ciklusú plazmon-hullámcsomagokat tudnak keltetni, melyek kezdeti időtartama összemérhető az azokat keltő lézerimpulzusok időtartamával. Ezáltal pedig egy új lehetőséget mutattam meg arra vonatkozóan, hogy miként lehet lézerimpulzusok extrém térbeli és időbeli lokalizációját egyidejűleg megvalósítani. Az eredmények jelentőségét jól mutatja a tézisonthoz kapcsolódó közlemény kiemelkedő, a megjelenés óta folyamatos hivatkozottsága.

Kevés optikai ciklusból álló lézerimpulzusok nagy hatást gyakoroltak az atomi, molekuláris és optikai fizika („AMO fizika”) területének fejlődésére és az attoszekundumos tudományterület kialakulására (Brabec és Krausz, 2000; Ivanov és Krausz, 2009). Ennek megfelelően a kevés optikai ciklusú HFP-k alkalmazása várakozásaim szerint a nanooptika és a kapcsolódó ultragyors felületi fizikai irányt fogja hasonló módon befolyásolni. A bemutatott módszer jól kombinálható felületi plazmon hullámvezetőkbe (Berini, 2009) történő becsatolással, ahol ugyan a terjedés

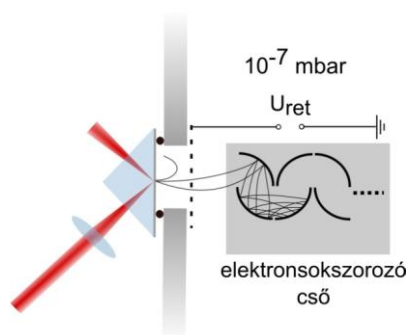
során várható diszperzív hatásokat kompenzálni kell, de az optikai szálakhoz hasonlóan, megfelelő nemlinearitás megvalósításával nem tűnik elképzelhetetlennek a szolitonszerű terjedés.

4 Elektronok gyorsítása haladó felületi plazmonok elektromágneses terében

Kevésciklusú HFP hullámok esetén további fontos kérdésként merül fel, hogy lehetséges-e hatékony elektrongyorsítás ilyen tranziens, erősen lokalizált elektromágneses terekben, hasonlóan a korábban bemutatott elektrongyorsítási alapjelenséghez, melyet az 1.5 fejezetben ismertettem. Azon túlmenően, hogy a felületi plazmonos elektrongyorsítási séma bizonyítottan több keV-os elektronnyalábot szolgáltat, nagy előnye, hogy igen kis térrészben történik a gyorsítási folyamat, és az elérhető kb. 50 MeV/cm-es gyorsítás összemérhető pl. korszerű lézerplazma-alapú részecskegyorsítási elrendezések hasonló paraméterével (Wang et al., 2013; Leemans et al., 2014). Amennyiben a forrást néhány tucat keV-ig lehetséges skálázni, akkor később ultragyors elektrondiffrakciós és elektronmikroszkópiai módszerekhez is alkalmas elektronforrást szolgáltatathat. Ehhez első lépésként a kevésciklusú impulzusokkal keltett HFP-k általi gyorsítást vizsgáltam meg, ami a fém vékonyréteg roncsolási küszöbe szempontjából is sokkal előnyösebb konfigurációnak ígérkezik, mint a sokciklusos gerjesztés. További megválaszolandó kérdés volt, hogy vivőburkoló fázisstabilizált lézerimpulzusok miként befolyásolják az elektrongyorsítási folyamatot.

4.1 Kísérleti módszerek

A HFP-térben történő elektrongyorsításra vonatkozó kísérleteim során az elektronspektroszkópiai méréseket egy egyszerű, saját építésű, ellenteres elektronspektrométerrel végeztem el. Az elrendezést a 4.1 ábra mutatja be.

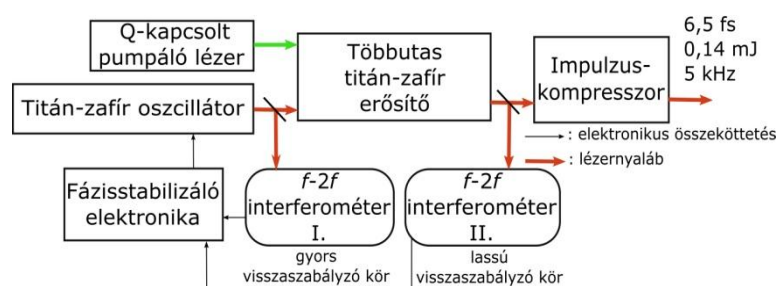


4.1 ábra Ellenteres elektronspektrométer felépítése felületi plazmonos elektrongyorsítás vizsgálatára.

A fókuszált lézernyaláb a Kretschmann-Raether plazmongerjesztési konfigurációban esik be a prizmára, amely egyúttal a vákuumablak szerepét is betölti. Az ablak vákuumoldalán a fémfelületről kilépő elektronok egy, a fémréteg és egy attól kb. 20 mm-re található, kis kitöltési tényezőjű fémháló által meghatározott, közel

homogén elektromos térben mozognak. A hálóra kapcsolt negatív egyenfeszültséget változtatva elérhető, hogy csak a feszültségnek megfelelő kinetikus energiánál nagyobb energiájú elektronok jussanak át a hálón a detektorba. Az elektronok detektálását egy Hamamatsu R595 típusú elektronsokszorozóval oldottam meg, melyet 1-5 kV-os feszültséggel előfeszítve kb. 10^7 - 10^8 sokszorozási tényezőt lehet elérni. Az elektronjelet a hálóra kapcsolt feszültség függvényében mérve, ezt a függvényt a feszültség szerint deriválva adódik az elektronspektrum.

A kísérletek során kevésciklusú felületi plazmonokat egy többutas titán-zafír erősítőrendszerből kicsatolt lézerimpulzusokkal keltettem, melyet a Bécsi Műszaki Egyetem Fotonikai Intézetében bocsátottak rendelkezésemre. A 4.2 ábrán bemutatott lézerrendszer impulzuskompresszió után 6,5 fs-os rövidségű, 2,4 optikai ciklusból álló lézerimpulzusokat állított elő 795 nm-es központi hullámhosszal és 5 kHz-es ismétlési frekvenciával. A kísérletek során alkalmazott maximális impulzusenergia 140 μ J volt. További lehetőségként a lézerrendszer olyan, vivő-burkoló fázisstabilizált impulzusokat is képes volt keltetni, ahol (lézeroszcillátorokkal ellentétben) a vivő-burkoló fázis nem egy meghatározott frekvenciával változik az impulzusvonulatban, hanem az egymást követő impulzusok vivő-burkoló fázisa azonos értéken rögzített (Baltuska et al., 2003). Ezt az üzemmódot 4.2 ábrán is feltüntetett, lassú fázisdriftet visszacsabályzó f - $2f$ interferométerrel lehetett elérni.



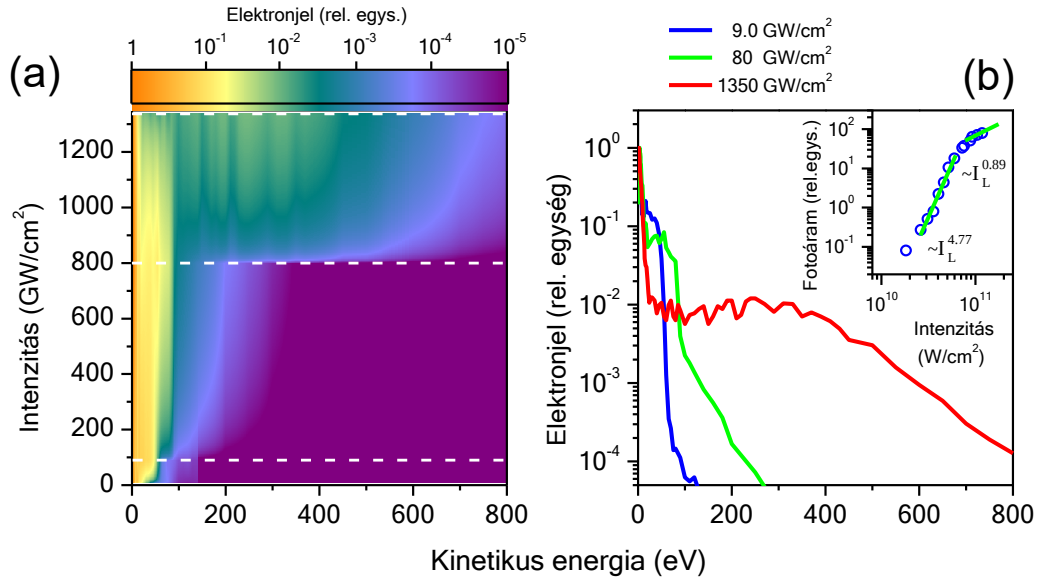
4.2 ábra Az elektronspektroszkópiai mérések során alkalmazott erősített lézerrendszer felépítése a vivő-burkoló fázisstabilizáló szervókörökkel.

A 4.1 ábrán bemutatott elrendezést ezen lézer fényével világítottam ki oly módon, hogy kb. 1 mm-es fókuszfoltot kaptam a prizma felületén. A prizma anyagában bekövetkező diszperzív impulzusnyúlást itt is fáziskorrigáló tükrök beépítésével előkompenzáltam.

4.2 Kísérleti eredmények

Az elektronsokszorozó jelét két méréstípushoz lehet felhasználni. Egyrészt a plazmonrezonancia beállítása és optimalizálása után, különböző fókuszált intenzitások mellett spektrálisan bontott méréseket végeztem ellenteres módszerrel a felületi

plazmonos elektrongyorsítással előállítható nyaláb vizsgálatára. Másrészt pedig a teljes fotoáramot is mértem az intenzitás függvényében a HFP-tér által indukált fotoemisszió mechanizmusának megállapítására. A mérési eredményeket a 4.3 ábra foglalja össze, a kísérletek során a felület roncsolása nélkül maximálisan elérhető fókuszált intenzitás $1,5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ volt.



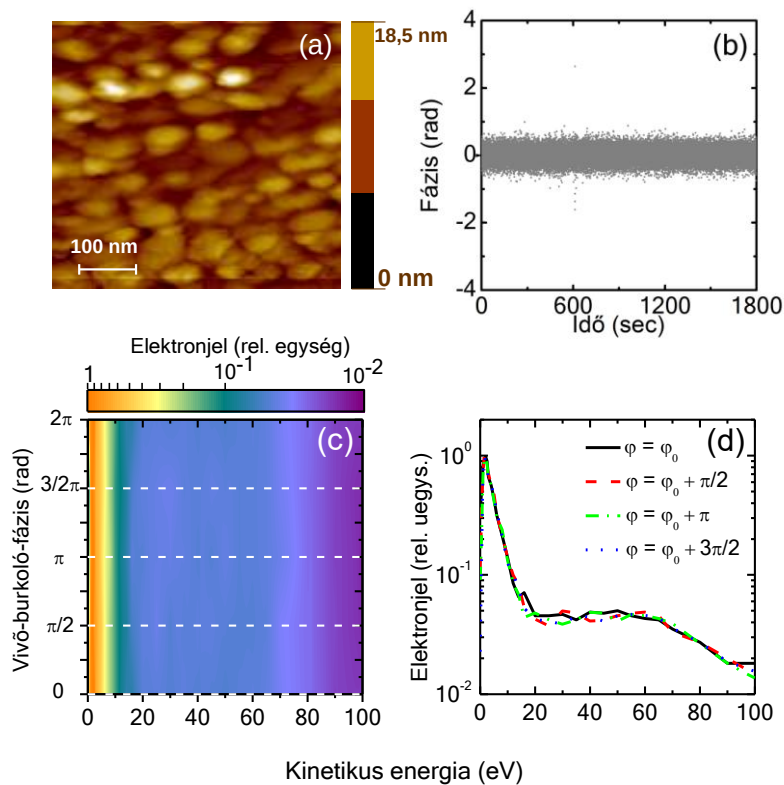
4.3 ábra (a) 45 nm vastag ezüstretegről indukált felületi plazmonos fotoemisszió és elektrongyorsítás spektruma különböző intenzitások mellett, a spektrumokat minden intenzitásértéknél 1-re normálva. (b) Elektronspektrumok néhány kiválasztott intenzitásnál és a betétábrán a teljes fotoáram intenzitásfüggése kétszer logaritmikus skálán ábrázolva.

Mivel az elektromos tér a hullámhossz töredékén belül lecseng az ezüstfelülettől távolodva, és a HFP hullámcsomag időbeli kiterjedése is csak néhány optikai ciklusnak felel meg, az észlelt, közel keV-os gyorsítás is ezen kis tér- és időbeli tartományon belül megy végbe. A legnagyobb kísérleti intenzitás $1,35 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ -es értéke mellett lövésenként kb. 15.000 elektrorra becsülöm a begyűjtött elektronok számát az elektronsokszorozó jelének analízise és gyári sokszorozási görbéi alapján. Ahhoz, hogy ez az elektronszám tértöltési hatásokon keresztül okozhatja-e az elektronnyaláb spektrális kiszélesítését, egy együttműködés keretében modellezték a kezdeti, szűk idő- és térbeli intervallumon elhelyezett elektronsomag terjedését a General Particle Tracer (GPT) programkód segítségével. Ennek eredményeképpen megállapítható volt, hogy az elektronsomag terjedését észrevehetően torzító tértöltési hatások csak kb. 10 millió elektron egy impulzuson belüli kiváltása esetén jelennek meg, vagyis csak kb. három nagyságrenddel nagyobb elektronszám mellett, mint amit a kísérleteimben tapasztaltam (Dombi et al., 2010).

Az eredmények további elemzése azt is megmutatta, hogy néhányszor 10^{11} W/cm^2 -es intenzitás fölött az elektronok már nem a sokfotonos mechanizmussal, hanem ún. erős-tér fotoemisszióval lépnek ki. Ez különösen a 4.3(b) ábra betétábráján látszik jól. Kis intenzitások mellett a teljes fotoáram lézerintenzitás szerinti skálázása a négyfotonos fotoemisszió alapján várt $j \sim I_L^{4,3 \pm 0,4}$ -es összefüggést követi, ahol I_L a lézernyaláb csúcsintenzitása. Ez nagyobb intenzitások felé fokozatosan átmegy a $j \sim I_L^{0,89 \pm 0,03}$ összefüggésbe. A Keldis-paraméterre vonatkozó (1.2) egyenlet megfelelő nyalábpármeterek melletti kiértékelése alapján azt várnánk, hogy a Keldis-paraméter 1-es értékét csak $3,6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ -es lézerintenzitásnál érnénk el, ahol a sokfotonos-alagút átmenet bekövetkezik. Itt azonban az átmenet majdnem két nagyságrenddel kisebb intenzitásnál, kb. $8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ -es értéknél észlelhető. A két érték összehasonlítása alapján, figyelembe véve, hogy az intenzitás a térerősség négyzetével arányos, a HFP-térnövekményt is meg lehet határozni, mely $21,4 \pm 2,3$ -nak adódik. Megjegyzendő, hogy mivel nem atomi szinten sík felülettel dolgoztam, ezért ez a módszer egyfajta átlagos térnövekményre enged következtetni a kivilágított felületen, melyet a továbbiakban *átlagos effektív térnövekménynek* nevezek. Megjegyzendő az is, hogy egy tökéletesen sík plazmonikus ezüstfelület térnövekménye 14,6 lenne, és az észlelt különbséget a 2,8 nm rms-nek mért felületi érdesség kielégítően megmagyarázza (Raether, 1988). Az ezt alátámasztó alagútmikroszkópos képet a 4.4(a) ábrán mutatom be.

Egy további kísérletben arra kerestük a választ, hogy a nanométeres térrészben végmenő gyorsítási folyamatot befolyásolja-e a vivő-burkoló fázis. Korábbi kísérleti és elméleti eredményeim alapján (Apolonski et al., 2004; Dombi és Rácz, 2008) erre jó esély kínálkozott, a kísérleti megvalósításhoz pedig az együttműködő csoportnál minden eszköz rendelkezésre állt. Ezért a 4.2 ábrán bemutatott lézerrendszert fázisstabilizált üzemmódba kapcsoltam. A tapasztalat szerint megfelelő beállításoknál a fázisstabilizáló szervókör legkevesebb fél órán át biztosította fázisugrás nélkül a stabilizált működést. Ezt mutatja be a 4.4(b) ábra, melyről az is leolvasható, hogy az rms fáziszaj értéke 0,17 rad volt.

A megfelelő beállítások után $3,5 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ fókuszált lézerintenzitás mellett a fázisfüggés mérésének eredményét a 4.4(c) és (d) ábrákon mutatom be. A választott intenzitásérték elégséges ahhoz, hogy az elektronok tiszta alagutázással lépjenek ki a 4.3(b) ábra alapján. Mivel ebben az esetben várható, hogy a dinamikát közvetlenül az elektromos térerősség lefutása határozza meg, ezért a folyamat fázisérzékenységének kimutatására itt jó esély kínálkozik, szemben az alacsonyabb intenzitásokon bekövetkező tisztán perturbatív, sokfotonos folyamattal, melyet a lézerimpulzus burkolója határoz meg és melyről ismert, hogy igen csekély fáziskontrasztot tud csak biztosítani (Apolonski et al., 2004).



4.4 ábra (a) A kísérletekhez használt tipikus ezüstfelület alagútmikroszkópos képe 2,8 nm rms felületi érdességgel. (b) A 4.2 ábrán bemutatott, erősített, fázisstabilizált lézerrendszer fél órán át mért fáziszaja egy, a szervókörön kívüli f -2*f*-interferométerrel mérve, 0,17 rad rms fáziszajértékkel. (c) Felületi plazmonos elektrongyorsítás spektruma $3,5 \times 10^{11}$ W/cm² fókuszált lézerintenzitás mellett mérve a vivő-burkoló fázis függvényében valamint (d) ennek az ábrának a metszetei négy különböző vivő-burkoló fázisértéknél összehasonlítva.

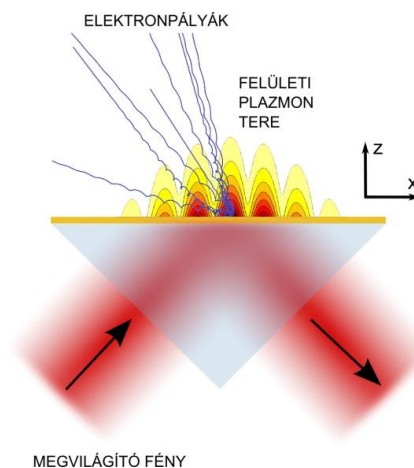
A kísérleti eredmények azonban semmilyen észrevehető fázisfüggést nem mutatnak, a 4.4(d) ábra görbéi közti eltérések nem nagyobbak, mint az egyes ellentérfeszültségeknél felvett elektronáram-értékek zaja.

A fizikai intuíció alapján várt fázisfüggés hiányára több lehetőség adódik. A 6,5 fs-os impulzushossznál az intenzitás-félértékszélességen belül 2,4 optikai ciklus van jelen, ez pedig a nemlineáris kölcsönhatásokra vonatkozó általános tapasztalat szerint (Dombi et al., 2006) éppen a határán van a fázisfüggés kimutathatóságának. Negatívan befolyásolja az észlelhetőséget a viszonylag nagy, 0,17 rad-os fáziszaj is, amely ugyan megfelel a fázisstabilizálási technológia jelenlegi szintjének, a viszonylag hosszú impulzussal együtt azonban az esetlegesen jelenlévő fázishatásokat könnyen elmoshatja. A fázisfüggés hiányának okaként leginkább azonban a 4.4(a) ábrán bemutatott tipikus felületi érdességet azonosítottam. Várható ugyanis, hogy a felület mentén terjedő HFP hullám a felületi érdesség miatt irreguláris térerősség-eloszlással

rendelkezik, és ez az ebben terjedő elektronok trajektóirában olyan mértékű zavart okoz, amely elmossa a jelentősebb fázishatásokat (Rácz et al., 2011).

4.3 Modell evaneszcens elektromágneses térbeli elektrongyorsításra

A felületi plazmonos elektrongyorsítás alapjelenségeinek egyszerű megértéséhez fontos tehát egy olyan alapmodell, amely viszonylag gyorsan ad választ a folyamattal kapcsolatos fundamentális kérdésekre. Ezért kidolgoztam a sík felület mentén terjedő HFP terének analitikus leírását, és ennek segítségével a fotoemisszió és elektrongyorsítás alapjelenségeinek hatékonyan vizsgálatát. A modell analóg a magasrendű felharmonikusok félklasszikus, háromlépéses modelljével (Kulander et al., 1993; Corkum, 1993), mely szeparáltan kezeli és írja le a lézerindukált atomi ionizációt, a szabad elektron lézertérbeli gyorsítását és ezen elektronnak az ionnal történő rekombinációját, mely végül a felharmonikus sugárzást eredményezi. Ezzel sikeresen magyarázható a magasrendű felharmonikusok számos alaptulajdonsága, az extrém ultraibolya spektrum alakja, a spektrális levágás intenzitás- és vivő-burkoló fázisfüggése, a páratlan rendű felharmonikusok megjelenése stb. Mindezek alapján a felületi plazmonos fotoemisszió és elektrongyorsítás leírására egy hasonló modellt fejlesztettem, mely egyrészt a plazmonter analitikus leírásával, a kibocsátott elektronokra vonatkozóan pedig a megfelelő numerikus módszerek alkalmazásával a folyamatról helyes információt szolgáltat.



4.5 ábra Felületi plazmonos fotoemisszióra és elektrongyorsításra alkalmazott modell sémája a felületi plazmonkeltési, a fotoemissziós és az elektrongyorsítási lépéseket illusztrálva. (Az ábrát Rácz Péter bocsátotta rendelkezésre).

Felületi plazmonos elektrongyorsítás modelljét is három meghatározó részre lehet bontani az ismert alapjelenségekből kiindulva, mint ahogyan azt a 4.5 ábrán is illusztráltam. Az első lépés a HFP hullám becsatolása, a felületközeli plazmonter

kialakulása, a plazmonhullámcsomag terjedése. Ezt követi a fotoelektronok megjelenése a kontinuumban, a fotoemisszió, melyet a HFP erősített elektromos tere vált ki. A fotoemisszió mechanizmusát, idő- és térbeli eloszlását a HFP térerőssége határozza meg. Harmadik lépésként ezek az elektronok a lecsengő tér gradiensének irányába gyorsulnak, részben a ponderomotoros gyorsítási folyamatnak megfelelően. A végső, a kísérletekben is mérhető elektronspektrumot nagy számú, különböző pontokon és időpillanatokban keletkezett elektrontrajektória kiértékelésével, a vonatkozó energiahisztogram előállításával lehet modellezni.

A modell elemeinek bemutatását a plazmontér analitikus leírásával kezdem. Az egyszerűség kedvéért a 4.5 ábra tengelyjelöléseit használva egy kétdimenziós modellre szorítkozom. A haladó felületi plazmonhullám leírásakor feltehető, hogy a plazmontér amplitúdója követi a lézertérét, vagyis

$$E_{\text{HFP}}(x, z, t) = \eta E_0(x, z, t) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{-\alpha z}, \quad (4.1)$$

ahol η a térnövekmény értéke, α a plazmontér lecsengési tényezője, $E_0(x, z, t)$ a beeső lézerimpulzus amplitúdóeloszlása (ld. pl. (1.8) egyenlet), a koordináták pedig a 4.5 ábra szerint adóttak. A HFP-k terét tehát első közelítésben a gerjesztő lézerimpulzus tere határozza meg. Ebből kiindulva a fém-vákuum határfelület vákuumoldalán írjuk fel két dimenzióban analitikus alakban a téramplitúdót. Feltételezhető, hogy a plazmont keltő lézerimpulzus burkolója átöröklődik a felületi plazmonokra. Ezért a lézerimpulzusban a terjedés irányára merőleges gaussi profilt véve alapul, a becsatolásnál alkalmazott 45°-os beesési szögnél a Gauss-eloszlás felületre vett vetületével írható fel a térbeli amplitúdóeloszlás, valamint a HFP-k időalakját is gaussinak vehetjük. Így az a térbeli és időbeli eloszlás, amit a határfelület mentén kapunk egy konstans szorzótól eltekintve a következők szerint alakul:

$$E_B(x, t) = \exp \left[\frac{-2 \ln(2) \left(x \cdot \cos\left(\frac{\pi}{4}\right) - \frac{c}{n_{\text{cs}}} t \right)^2}{\left(\frac{c}{n_{\text{cs}}} \tau \right)^2} \right] \cdot \exp \left[\frac{-4 \ln(2) \left(-x \cdot \sin\left(\frac{\pi}{4}\right) \right)^2}{w_0^2} \right], \quad (4.2)$$

ahol x a felülettel párhuzamos térbeli koordináta a 4.5 ábra szerint. w_0 a térbeli nyalábprofil szélességét meghatározó nyalábparaméter (vagyis a nyalábnyak prizmafelületen vett mérete), n_{cs} a prizma anyagának csoporttörésmutatója, τ ezúttal a gaussi impulzushossz, és c a vákuumbeli fénysebesség.

A HFP-ok elektromos tere továbbá egy normális ($E_{\text{HFP},z}$) és egy határfelülettel párhuzamos ($E_{\text{HFP},x}$) komponensből áll. Ezek a felületre merőleges irány mentén lecsengenek. Figyelembe kell vennünk még a hullámszámok plazmonbecsatoláshoz szükséges illesztését is, ezért a felületre merőleges térkomponens a következő alakban írható fel (Dombi és Rácz, 2008):

$$E_{\text{HFP},z}(x, z, t) = \eta E_{\text{max}} E_B(x, t) \cos \left(k_L \cdot n_{\text{cs}} \cdot \sin\left(\frac{\pi}{4}\right) \cdot x - \omega_L t + \varphi_{\text{VB}} \right) \exp(-\alpha z), \quad (4.3)$$

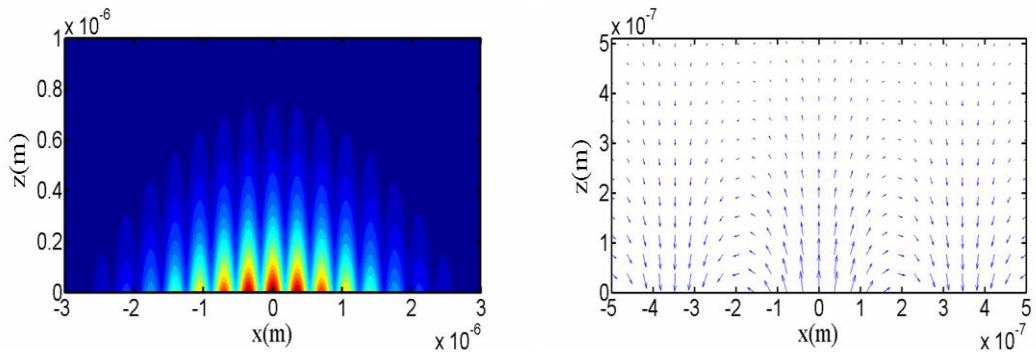
ahol E_{max} a lézerimpulzus térerősségének maximális értéke, η a térnövekmény, $k_x = k_L n_p \sin(\pi/4)$ a HFP hullámszáma, ω_L a plazmont keltő lézer központi

körfrekvenciája, k_L a hullámszáma. α az elektromos tér felületre merőleges lecsengését leíró paraméter és φ_{VB} a vivő-burkoló fázis értéke. Hasonló alakban, de $\pi/2$ fázistolással írható fel a felülettel párhuzamos komponens is, viszont azt figyelembe kell venni, hogy az ehhez a komponenshez tartozó maximális térerősség kisebb, mint a (4.3) egyenletben adott. Ezért ennél a komponensnél egy $a < 1$ szorzófaktor jelenik meg:

$$E_{HFP,x}(x, z, t) = \eta a E_{\max} E_B(x, t) \cos\left(k_L \cdot n_{cs} \cdot \sin\left(\frac{\pi}{4}\right) \cdot x - \omega_L t + \varphi_{VB} - \frac{\pi}{2}\right) \exp(-\alpha z). \quad (4.4)$$

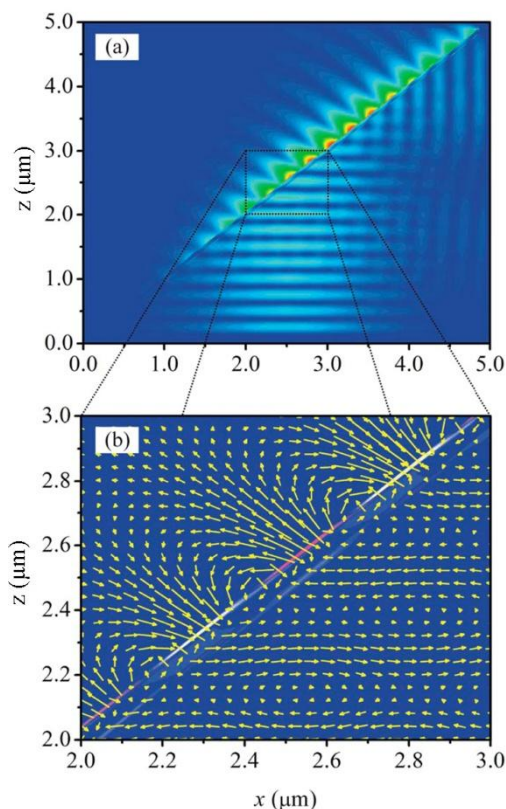
A Maxwell-egyenletek mások által elvégzett numerikus megoldásával való összevetéssel (Irvine és Elezzabi, 2006) a értékére 0,3-0,4 közötti eredmény adódik (Dombi és Rácz, 2008).

A fenti megfontolásokból adódó heurisztikus térleírás a HFP-k keltésének minden lényeges elemét pontosan visszaadja, a térbeli és időbeli burkolóktól kezdve a plazmonter evanescens jellegű lecsengéséig. Ennek belátásához tekintsünk az így kapott eloszlásra egy példát, amely $\tau = 30$ fs-os gerjesztő lézerimpulzus esetén mutatja a plazmonteret a 4.6 ábrán.



4.6 ábra HFP elektromos térerőssége abszolútértékének eloszlása az analitikus felírás alapján 30 fs-os keltőimpulzus esetén (bal oldali panel). A jobb oldalon ugyanezen ábra egy szeletén (ld. a tengelyeken) a tér vektoriális eloszlását mutatom be (Dombi et al., 2009a). A színskála azonos az 1.4 ábráéval.

Az így megadott elektromos tér nagyon jó közelítéssel reprodukálja a Maxwell-egyenletek numerikus megoldásával származtatható teret, ahogyan azt a 4.6-os ábra 4.7-essel történő összevetése bizonyítja.



4.7 ábra (a) A Maxwell-egyenletek numerikus megoldásával előállított elektromos tér abszolútértékének eloszlása és (b) a vektoriális eloszlás Scott Irvine számításai alapján, 45° -kal elforgatott koordinátarendszerben. Forrás: Scott Irvine, lásd pl. (Irvine és Elezzabi, 2006). A színskála azonos az 1.4 ábráéval.

A fotoemisszió folyamatának leírására az 1.2 fejezetben foglaltakat használtam fel. Amikor a Keldis-paraméter értéke $\gamma \gg 1$, vagyis kisebb az intenzitás, akkor többfotonos emisszióval lépnek ki az elektronok. Például 5 eV körüli kilépési munkájú fémfelületről történő fotoemisszió és 800 nm körüli hullámhossz (vagyis 1,5 eV körüli fotonenergia) esetén tipikusan 3- vagy 4-fotonos emisszió megy végbe. Ilyenkor az (1.4) összefüggés alapján az emisszió nemadiabatikus, a fotoáram időbeli lefutása közelítőleg az impulzus burkolójának harmadik vagy negyedik hatványával arányosnak vehető (ld. 1.2 ábra). Ez a megállapítás különben szigorú kvantummechanikai módszerekkel is bizonyítást nyert, hiszen a fotoemissziós folyamat sűrűségfüggvény-elméleten alapuló modellezéséből származó eredménye nagyon hasonló az egyszerű (1.4) egyenlet által adotthoz (Lemell et al., 2003). Alagút-emisszió ($\gamma \ll 1$) esetén pedig az ezt leíró egyik lehetséges, zárt kifejezés, a Fowler-Nordheim-formula használható, ld. az (1.5) összefüggést. Ebben az esetben az emisszió adiabatikusan követi az elektromos teret. A tiszta alagutazás és a tiszta többfotonos eset közti $\gamma \approx 1$ értéknél bekövetkező emisszióra is ismert zárt alakú kifejezés, ezt a tartományt nemadiabatikus alagutazásnak nevezi az ezzel foglalkozó közlemény (Yudin és Ivanov, 2001).

Mindezek birtokában az (1.4) vagy (1.5) egyenletekbe behelyettesíthető a HFP (4.3) és (4.4) egyenletek által adott térerősségeloszlása. Mivel kísérletileg is bizonyított tény, hogy fotoemissziót elsősorban a HFP terének felületen vett értéke határozza meg (lásd pl. (Dombi et al., 2010)), ezért ezzel az eljárással megadható a fotoáram idő- és térbeli eloszlása a teljes plazmonbecsatolási folyamat alatt. A modellhez tehát az így adott lézerintenzitásfüggő fotoáramprofilt használtam fel.

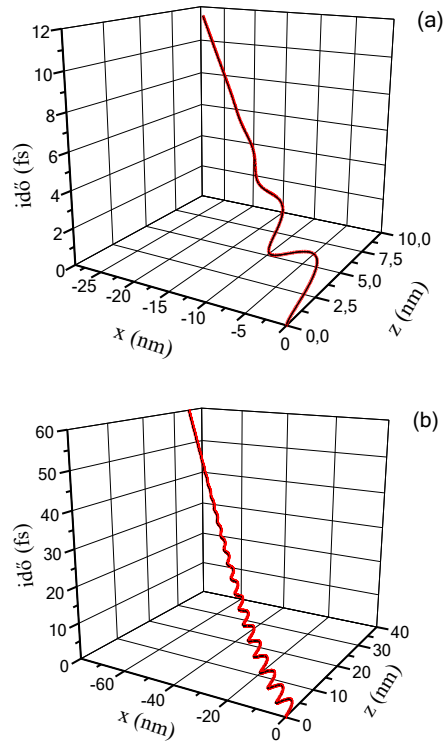
A modell harmadik lépéseként a fent leírt eloszlással fotoemittált, szabaddá vált elektronok klasszikus mozgásegyenletét kell megoldani nagy számú tesztelektronra, amely a Lorentz-erő alapján a következő szokott alakban írható fel:

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = -e \mathbf{E}_{HFP} + e \mathbf{v} \times \mathbf{B}_{HFP} \approx -e \mathbf{E}_{HFP} \quad , \quad (4.5)$$

ahol az eddig szokott jelölések mellett $\mathbf{r}$ az elektron helyvektora, $\mathbf{B}_{HFP}$ a mágneses indukció a HFP-térben, $\mathbf{v}$ pedig az elektron sebessége. Abban a nyilvánvalóan teljesülő esetben, ha az elektronok sebessége a fénysebességnek csak töredéke, vagyis nem relativisztikusan mozognak, akkor a mozgásegyenletben csak az elektromos térerősséggel kapcsolatos tag számottevő. Elegendő ideig „követve” az elektront a mozgásegyenlet numerikus megoldásával, megkaphatjuk az adott tesztelektron végső kinetikus energiáját. Az eljárást kellő számú elektronra megismételve és a végeredményekből hisztogramot készítve pedig kinetikus energiaspektrumok származtathatók, amelyek megfeleltethetők a kísérletek során mért elektronspektrumoknak.

A mozgásegyenlet megfelelő és kellően gyors módszerrel történő numerikus megoldását, valamint az ismertetett modell numerikus megvalósítását Rácz Péter kollégám végezte el, így ehelyütt csak a fő megállapításokat mutatom be a megvalósítás technikai részleteivel kapcsolatban. Az elektron mozgásegyenletének megoldására az Euler-eljárás bizonyult hatékonynak 20-50 as közötti időbeli lépésközzel. A legtöbb vizsgált impulzusparaméter esetén megfelelő felbontású elektronspektrumokat 1-3 millió tesztelektron vizsgálatával kapunk, melyek a felület különböző helyeiről különböző időpillanatokban lépnek ki.

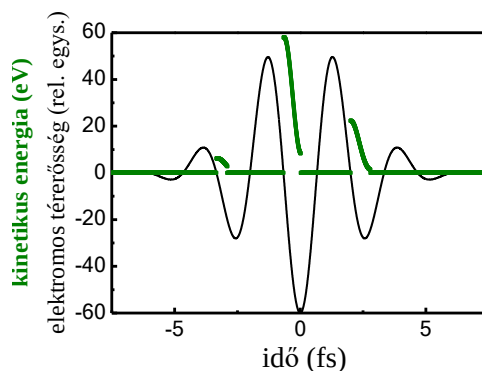
Már egyes elektronok trajektóriáinak vizsgálata esetén is látszik egy nagyon fontos következtetés, melynek általánosítását a következő fejezetben mutatom be. A mozgásegyenlet megoldása során kapott trajektóriák két szakaszra bonthatók fel, amint azt a 4.8 ábra is illusztrálja. A HFP időbeli lecsengéséig az elektronok a tér időbeli változásának megfelelő oszcilláló, majd a lecsengés után egyenes vonalú mozgást végeznek. A második szakaszban az elektronok kinetikus energiája már nem változik. Az oszcilláló és az egyenes vonalú szakaszok közti határ helyzete viszont nagymértékben függ attól, hogy ún. többciklusú vagy kevés optikai ciklusú lézerimpulzus kelt HFP-t, amint azt a 4.8 ábrán is bemutatom.



4.8 ábra A mozgásegyenlet numerikus megoldásával nyert elektrontrajektória egy-egy példaelektronra (a) 5 fs-os és (b) 30 fs-os időtartamú lézerimpulzus által keltett HFP esetén. Az elektron a HFP tér maximális térerősségénél emittálódik, mely ez esetben $5,8 \times 10^{10}$ V/m (forrás: Rácz Péter).

Két tipikus trajektóriát mutatok be a 4.8 ábrán $\lambda_L = 800$ nm-es központi hullámhossznál, 5 fs-os és 30 fs-os impulzushossznál. A maximális HFP térerősség mindkét esetben $E_{\max, \text{HFP}} = 5,8 \times 10^{10}$ V/m volt, és a vivő-burkoló fázis $\varphi_{\text{VB}} = \pi$.

A trajektóriákhoz tartozó elektronenergiákat jól szemlélteti továbbá a következő ábrázolásmód: a felületi plazmonter normális komponensének időbeli lefutását a keletkezési idő függvényében ábrázolt végső elektronenergiákkal egy grafikonra helyezve látható, hogy mely időpillanatban emittált elektronok tudják véglegesen elhagyni a felületet (Dombi et al., 2009a). Ezt a 4.9-es ábra mutatja be, ahol egy $\tau = 5$ fs-os felületi plazmon hullámcsomagot modelleztünk, szintén $E_{\max, \text{HFP}} = 5,8 \times 10^{10}$ V/m maximális térerősséggel, és $\varphi_{\text{VB}} = \pi$ vivő-burkoló fázissal.



4.9 ábra: A lézerimpulzus és a felületi plazmon mormális térkomponensének időbeli lefutása (fekete görbe) és az elektronok végleges kinetikus energiái az elektronkilépési időpillanat függvényében (zöld görbe) $\tau = 5$ fs-os impulzus esetén ($E_{\text{max,HFP}} = 5,8 \times 10^{10}$ V/m, $\varphi_{\text{VB}} = \pi$). (Dombi et al., 2009a).

A 4.9 ábrán bemutatott eredmények esetén nem tételeztem fel fotoemissziót az adott időpillanatban a felület irányába mutató erő esetén, és a fotoemittált, ám a későbbiekben a felületbe visszatérő elektronokhoz is nulla kinetikus energiát rendeltem (vagyis nincs felületi visszaszórás). Az ábrán látható, hogy lokális energiamaximumok azoknál a fotoemissziós időpillanatoknál találhatók, ahol az elektromos térerősség éppen nulla értéket vesz fel. Ennek oka az, hogy az ilyenkor kilépett elektronokra hat a legkisebb, őket a felülettől távolító erő, így ezek az elektronok töltenek a legtöbb időt a felülettől kifelé mutató térben. A következő fejezetben a HFP terének analitikus megadásából származtatható elektronspektrumokat vetem össze a Maxwell-egyenletek egzakt numerikus megoldásából származtatható spektrumokkal, ezzel is alátámasztva a plazmontér (4.3) és (4.4) egyenletekkel történő leírásának hatékonyságát.

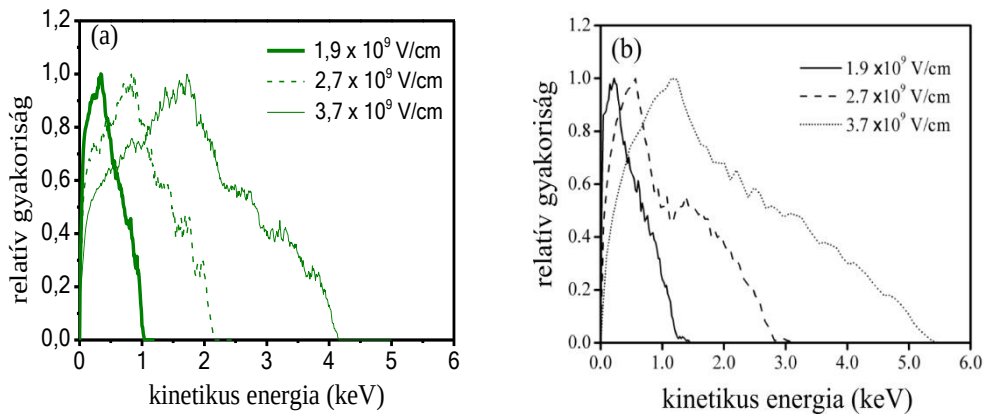
4.4 Összevetés a Maxwell-egyenletek megoldására épülő modellel

Az előző fejezetben ismertetett modell alkalmazhatóságára példaként bemutatom azt, hogy az abból származtatható elektronspektrumok miként viszonyulnak a Maxwell-egyenletek egzakt megoldásából adódó spektrumokkal. Ehhez jó minőségű, jól dokumentált referenciaadatok álltak rendelkezésemre Scott Irvine-től (Irvine és Elezzabi, 2006). A modellezési eljárás lényege, az eltérés az általam kidolgozottól lényegében a HFP elektromágneses terének meghatározásában rejlik. Az összevetés alapját képező módszerben először numerikusan megoldják a Maxwell-egyenleteket a Kretschmann-Raether HFP-becsatolási elrendezésben. A megoldást két dimenzióban, időbeli véges differenciák módszerével („finite-difference time-domain method,” FDTD) végzik. Ennek során a számításokat egy olyan térbeli, egymáshoz képest kissé eltolt rácspáron végzik, amelynek eredményeként az elektromos és a mágneses tereket a rácscok pontjaiban meg lehet határozni. Hasonló elvet alkalmaznak a térkomponensek

időbeli meghatározásánál is. A módszer jelentős hátránya, hogy nagyon nagy térbeli és időbeli felbontással kell számolni a kielégítő eredményhez, különösen akkor, ha ugyanazon a rácson az elektronok mozgását is követni szeretnénk. A HFP-hullám elektromos terének így kapható amplitúdóeloszlását a 4.7 ábrán már bemutattam.

A HFP-hullám elektromágneses terének meghatározása után a fentiekhez hasonló módon tesztelektronokat helyeztek a térbe, majd nagy számú elektron mozgásának követésével adódtak az elektronspektrumok. A HFP-hullámot keltő lézerimpulzust szintén gaussi burkolójúnak és $\lambda_L = 800$ nm-es központi hullámhosszal rendelkezőnek feltételezték. A fotoemisszió mechanizmusára vonatkozóan többfotonos folyamatot tettek fel, vagyis az emisszió nem követi a tér gyors oszcillációit, csak a lassabban változó burkolót.

A 4.10(b) ábrán a Maxwell-egyenletek numerikus megoldásán alapuló számolás eredménye látható, 30 fs-os lézerimpulzussal, különböző maximális térerősségek mellett (Irvine és Elezzabi, 2006). A fotoemissziós folyamat háromfotonos. A 4.10-es ábra (a) részén pedig az ezzel megegyező paraméterekkel a saját modellből nyert eredmények láthatók (Dombi et al., 2009a). A spektrumok jellege, a megfelelő struktúrák meredeksége nagyon hasonló a két esetben, és a globális maximumhoz tartozó csúcs is jól illeszkedik.

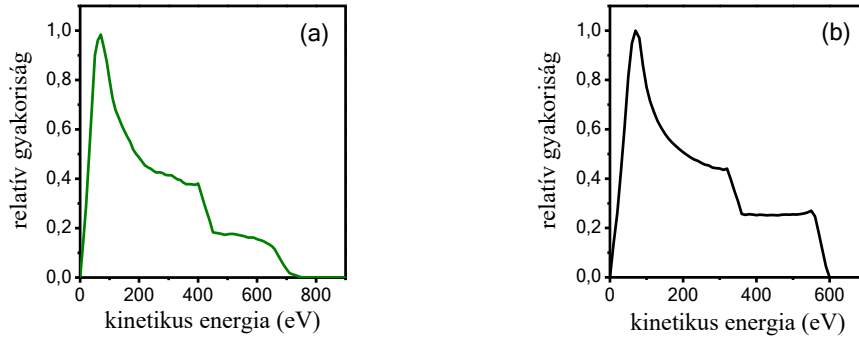


4.10 ábra (a) Három különböző maximális HFP-térerősségre számolt elektronspektrum az analitikusan felírt HFP-tér alkalmazásával. (b) Ugyanezen térerősségekre a Maxwell-egyenletek numerikus megoldásával kapható elektronspektrumok (Irvine és Elezzabi, 2006) alapján.

Az egyetlen jelentősebb eltérés 4.10(a) és (b) ábrák között a maximális elektronenergiákban mutatkozik meg. Ennek egyik oka lehet, hogy a Maxwell-egyenletek megoldásán alapuló modellben a teret nem minden pontban számítják ki, ezért az elektron mozgásegyenletének megoldásánál valószínűleg interpolációt kell alkalmazni. Így a mozgásegyenlet numerikus megoldásánál alkalmazott lépésköz akár jelentősen is eltérhet attól, amit a saját módszer esetén alkalmaztunk. Így ez a végleges elektronenergiákat is módosíthatja, és emiatt az általam javasolt modell pontosabbnak is tekinthető. Továbbá a mozgásegyenletet megoldó numerikus eljárásban is lehetnek

eltérések, de ezek pontos részleteiről sajnos nem áll további információ rendelkezésre. Egy további lehetséges ok lehet a spektrum számolása során alkalmazott integrálási, illetve átlagolási eljárás.

Tegyük egy további összehasonlítást más paraméterekkel számolt spektrumokra is! A 4.11-es ábra (a) részén egy, a plazmontér numerikus származtatásán alapuló, míg (b) részén az általam kidolgozott modellel számolt eredmény látható 5 fs-os lézerimpulzus esetén $E_{\text{HFP,max}} = 1,9 \times 10^{11}$ V/m-es maximális térerősségnél, és a vivő-burkoló fázis nulla értékénél (Dombi et al., 2009a).



4.11 ábra Azonos paraméterek mellett számolt elektronspektrumok (a) az egyszerűsített, analitikusan felírt térrel számolva, és (b) a numerikusan adott térre a Maxwell-egyenletek megoldása alapján (ábra Scott Irvine-től). A HFP-keltéshez használt impulzushossz mindkét esetben 5 fs, illetve $E_{\text{HFP,max}} = 1,9 \times 10^{11}$ V/m.

Mindkét spektrumban egy kisenergiás csúcs és két letörés, illetve plató található, melyek a kevésciklusú impulzus optikai ciklusainak feleltethetők meg. Habár a letörések helyei és a maximális elektronenergiák között kisebb eltérés figyelhető meg, azonban a kisenergiás csúcsok pozíciói jól megegyeznek, és a spektrumok lefutása is nagyon hasonló. Az egyszerűsített modell tehát jól reprodukálja a Maxwell-egyenletek egzakt, numerikus megoldásán alapuló eredményeket.

4.5 Nemponderomotoros hatások

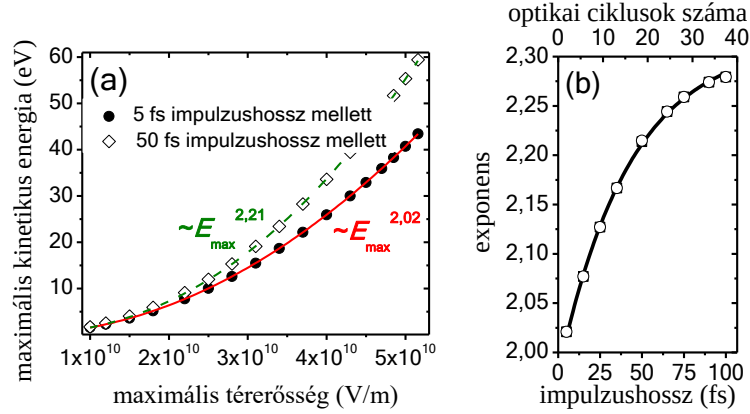
Elektronok lézertér általi gyorsítása esetén ismert az a tény, hogy az észlelt maximális elektronenergiák a ponderomotoros potenciál szerint lineárisan skálázódnak a maximális intenzitással és a lézertérrel kölcsönható szabad elektronok a tér amplitúdógradiensének az irányába távolodnak a kezdőpozíciójuktól. A jelenség szemléletes oka az, hogy az elektron lézertérbeli oszcilláló mozgása olyan (térbeli) amplitúdójú is lehet, melynek során a bejárt pálya szélein a térerősségmaximumok akár jelentősen el is térhetnek. Erre egyszerű példa egy olyan, egy lézernyaláb fókuszában mozgó elektron, melynek a rezgési amplitúdója összemérhető a nyalábnyak méretével. Ilyen esetekben az elektron végeredményben az oszcillációs

ciklusok egymásutánja során a nagy térerősség-amplitúdójú helyektől a kisebbek irányába mozog.

A ponderomotoros elektrongyorsítás alapjelensége jól ismert és számos alkalmazás épül rá, például lézerplazmákban mozgó elektronok esetén ez a jelenség fontos szerepet játszik a kialakuló, akár GeV-os energiákat elérő elektronnyalábok létrejöttében (Malka és Miquel, 1996). Gyorsan lecsengő felületi plazmonterek és kevés optikai ciklusból álló lézerimpulzusok esetén felmerül azonban az az alapvető, és eddig nem vizsgált kérdés, hogy a ponderomotoros skálázási törvények, pl. (1.1) alapján az elektronenergiák lézerintenzitással történő lineáris és a hullámhosszal történő négyzetes skálázása érvényesek maradnak-e? Sejtésem szerint az a tény, hogy a rövid lézerimpulzus térbeli amplitúdógradiense a hullámhosszal összemérhető, megszünteti ezeket az alapvető összefüggéseket. Az alábbiakban ezt bizonyítom be, másképpen fogalmazva azt, hogy ha az elektronnal kölcsönható impulzus burkolója „gyorsan” változik a térben (vagyis a hullámhosszal összemérhető skálán), akkor nemponderomotoros skálatörvényeket kapunk. Ebben az előző fejezetekben bemutatott numerikus modell lesz segítségemre.

Tekintsünk tehát a 4.4 fejezetben bemutatott módszerekkel származtatott, felületi plazmonterben előálló elektronspektrumokat, melyekből néhány tipikus példát a 4.10 és 4.11 ábrákon mutattam be (Rácz és Dombi, 2011). Ezen spektrumok nagyenergiás vége a 4.9 ábrán is megfigyelhető, maximálisan elérhető kinetikus energiáknál élesen levág. Tekintsünk továbbá olyan elektronspektrumokat, melyek egyrészt kevés optikai ciklusból álló lézerimpulzusok által keltett HFP-térben állnak elő, a gaussi gerjesztő lézerimpulzus 5 fs-os intenzitás-félértékszélessége mellett, illetve tekintsünk olyanokat is, ahol az impulzushossz 50 fs. A plazmonteret keltő lézerimpulzus központi hullámhossza 800 nm, a HFP-tér felületre merőleges lecsengési hossza pedig 660 nm, a (4.1) egyenlet szerinti α tipikus értéke alapján. A maximális kinetikus energiákat a HFP-tér maximális térerősségének függvényében a 4.12 ábrán mutatom be.

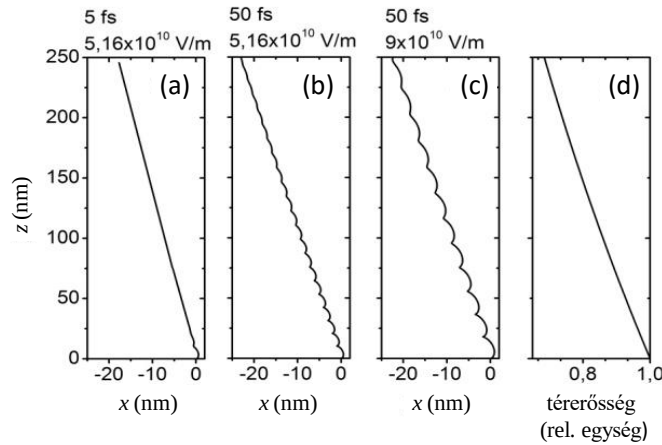
Feltűnő, hogy 50 fs-os, „hosszú” lézerimpulzus esetén a térerősség szerinti ponderomotoros skálázástól (2-es exponens) jelentős eltérés mutatkozik, hiszen az illesztéshez tartozó kitevő $2,214 \pm 0,005$ -nek adódik. A különbséget, a nemponderomotoros skálázást nyilvánvalóan a plazmonter hullámhosszal összemérhető lecsengése okozza.



4.12 ábra (a) HFP-indukált elektrongyorsítás során elért maximális kinetikus energiák térerősség szerinti skálázása különböző lézerimpulzushosszak mellett, 800 nm-es központi hullámhossznál és (b) a skálakitevő impulzushossztól való függése.

Érdekes további megfigyelés viszont, hogy 5 fs-os impulzushossznál jó közelítéssel visszkapjuk az (1.1) egyenlet szerinti függést, hiszen az exponens értéke: $2,023 \pm 0,005$ -re csökken. Hosszabb, 100 fs-os lézerimpulzusok felé pedig a skálakitevő értéke akár 2,3 közelébe is kerülhet, a 4.12(b) ábrán bemutatottak szerint.

A fenti jelenségek megértéséhez tekintsük mintaelektronok trajektóriáit a plazmontérben különböző térerősségek és impulzushosszak mellett. Ehhez az időben és térben maximális térerősségű pontban fotoemittált elektront választottam. A trajektóriák és a plazmontér lecsengése a 4.13 ábrán figyelhetők meg, ahol x a plazmon terjedési irányának megfelelő koordináta, z pedig a felületre merőleges.

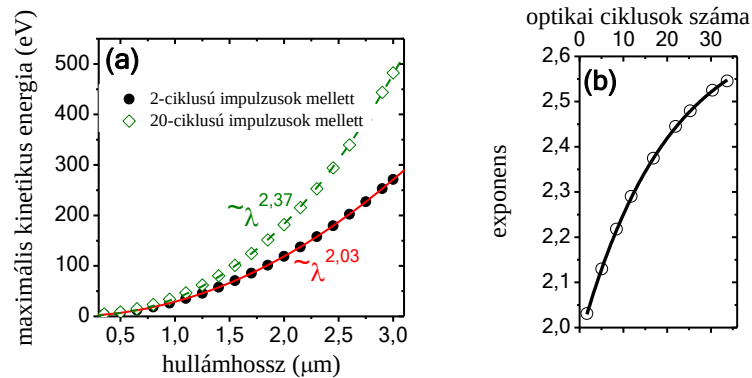


4.13 ábra (a-c) Mintaelektronok trajektóriái felületi plazmonok terében 5 és 50 fs-os impulzusok esetén és különböző térerősségeknél, illetve (d) a tér lecsengése a felülettől távolodva 800 nm-es hullámhossz és 660 nm-es plazmontér-lecsengési hossz mellett.

Megfigyelhetjük, hogy míg 5 fs-os impulzushossz esetén az elektron oszcilláló mozgása a felület közvetlen környezetére korlátozódik, addig 50 fs-os impulzusoknál a

teljes inhomogén térrészt kihasználva történik ez a mozgás a vizsgált maximális térerősségtételek esetén. Másképpen fogalmazva, az 5 fs-os impulzus által keltett elektron a felület közelében lévő, közel homogén teret „látja” csak, míg 50 fs esetén a teljes inhomogén térrészt, ami miatt rendre ponderomotoros, illetve szuperponderomotoros skálázást lehet észlelni a 4.12 ábrán bemutatottak szerint.

Nagyon hasonló jelenségek tapasztalhatók, ha nem a térerősség szerinti, hanem a hullámhossz szerinti skálázást tekintjük. Ebben az esetben az összehasonlíthatóság érdekében az impulzus optikai ciklusokban mért hosszát tartottam állandó értéken. Ez esetben a ponderomotoros skálatörvény szerint a maximális kinetikus energiák négyzetes skálázását várnánk a hullámhosszal. A 4.14 ábra szerint egy átlagos, 20 optikai ciklusból álló lézerimpulzus esetén (800 nm-en ez kb. 50 fs-os impulzushossznak felel meg) a kitevő azonban 2,37-re növekszik, a ponderomotoros skálázást pedig csak kétciklusú (800 nm-en kb. 5 fs-os) impulzusokra kapjuk vissza 2,03-as kitevővel. A jelenség a térerősség szerinti skálázással teljesen analóg módon értelmezhető.



4.14 ábra (a) HFP-indukált elektrongyorsítás során elért maximális kinetikus energiák hullámhossz szerinti skálázása különböző számú optikai ciklusból álló lézerimpulzushok mellett $3,4 \times 10^{10}$ V/m maximális térerősségnél és (b) a skálakitevő az optikai ciklusokban mért impulzushossztól való függése.

A fentiekben tehát megfogalmaztam a nemponderomotoros elektrongyorsítás kritériumát, nevezetesen azt, hogy ha az elektronnal kölcsönható lézerimpulzus amplitúdója „gyorsan” változik a térben (vagyis a hullámhosszal összemérhető skálán), akkor nemponderomotoros skálatörvényeket kapunk. Ezt a hatást enyhítheti viszont az, ha az elektront kevés optikai ciklusú plazmontér gyorsítja, ebben az esetben ugyanis az oszcilláló mozgás a felületközeli, homogénnek tekinthető térrészre korlátozódik. Annak megállapításához tehát, hogy egy adott elektron nanostrukturált környezetben ponderomotoros vagy nemponderomotoros törvények alapján mozog, ismernünk kell a mozgást meghatározó teljes paraméterhalmazt, mely a maximális térerősséget, a hullámhosszat, az impulzushosszat és a plazmontér lecsengési paraméterét foglalja magában.

4.6 Összefoglalás, következtetések

A 3. és 4. fejezetekben bemutatott három tézispontot összefoglalva megállapítható, hogy a felületi plazmontérbe kibocsátott fotoelektronok vizsgálata sok alapvető felfedezéshez vezetett. Ezek közül a legfontosabb a kevés optikai ciklusból álló HFP-hullámcsomagok létének bizonyítása, melyet a (plazmontérbeli) többfotonos fotoemisszió nemlinearitásának kihasználásával végeztem el (Dombi et al., 2010). Szintén figyelemre méltó az az általam először észlelt és publikált tény, hogy kevés ciklusú HFP-hullámok terébe injektált fotoelektronok nanométeres térrészben keV-os energiára tehetnek szert. Ez a gyorsítási folyamatra vonatkoztatva 3 GeV/m-es elektrongyorsításnak felel meg, ami a ponderomotoros típusú kölcsönhatás hatékonyságát mutatja ebben a speciális esetben is (Dombi et al., 2010). További kísérletekkel kimutattuk azt is, hogy a folyamat vivő-burkoló fázisérzékenységet a kiterjedt elektronforrás és a felület érdessége elmossa (Rácz et al., 2011).

Felismertem, hogy a haladó felületi plazmonhullám terében lejátszódó elektrongyorsítási folyamat jól vizsgálható egy egyszerűsített félklasszikus modellel. Ez alapján egy egyszerű, háromlépéses modellt állítottam fel, amely i) a haladó felületi plazmonhullám terének egyszerű, 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 (Dombi és Rácz, 2008; Dombi et al., 2009a). A modellre épülő numerikus szimulációk a jelentősen számításigényesebb modellekkel közel azonos eredményeket adtak (Dombi et al., 2009a). Felismertem, hogy erősen lokalizált elektromágneses térben az elektronok gyorsítása nem a megszokott skálatörvényeket követi (Rácz és Dombi, 2011). Ezt a háromlépéses modell széles paramétertartományra történő alkalmazásával megerősítettük. A modell segítségével megjósolt nemponderomotoros jelenségek kísérleti vizsgálata pedig a közeljövőben is érdekes felfedezéseket ígér. Mindezek hatását és aktualitását jól mutatja az ezekre a munkákra az elmúlt 5-6 évben érkezett 120-nál több hivatkozás is.

5 Hosszú rezonátoros oszcillátorok fejlesztése és az ehhez kapcsolódó ultragyors optikai kutatások

Az előző fejezetben bemutatott, különböző együttműködések során külföldi laboratóriumokban végzett kísérletek alapján jól látszott, hogy ultragyors plazmonikai kutatások speciális femtoszekundumos lézerforrásokat igényelnek. Sajnos sem az elterjedt, rövid impulzusú titán-zafír oszcillátorok (alacsony impulzusenergiájuk miatt), sem az ugyanerre az aktív közegre épülő, szokásos regeneratív vagy többutas lézerezősítők (kHz körüli, alacsony ismétlési frekvenciájuk miatt) nem optimálisak ultragyors plazmonikai alkalmazásokhoz. Ezért már a plazmonos kutatásaim kezdetén, azokkal párhuzamosan olyan fejlesztéseket indítottam el Budapesten, melyek ún. hosszú rezonátoros titán-zafír lézerek építésére és impulzusparamétereik optimalizálására irányultak. Amint azt a következőkben részletesen be is mutatom, a hosszú rezonátoros lézertípus ideális paraméterkombinációt biztosít ahhoz, hogy viszonylag nagyenergiájú (több száz nJ-os) lézerimpulzusok nagy ismétlési frekvenciával ($\sim$ MHz) haladó vagy lokalizált felületi plazmonokat keltsenek. Ezek kölcsönhatásai során jó jel/zaj viszonytal, rövid idő alatt többlövéses kölcsönhatási kísérleteket lehet végezni.

Az 1.6 fejezetben bemutatottak alapján egy hosszú rezonátoros titán-zafír oszcillátor stabil módusszinkronizált működéséhez a következő lézertechnológiai kihívásokkal kell szembenéznünk, melyek hagyományos oszcillátoroknál nem lépnek fel nagy súllyal:

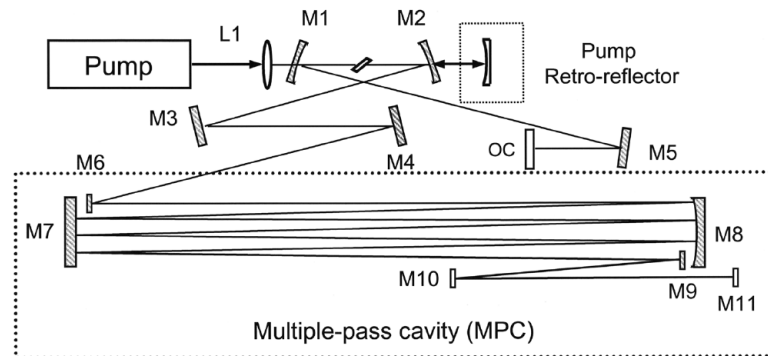
- i) a rezonátorstabilitás feltételét a hosszú rezonátor esetén is biztosítani kell annak érdekében, hogy lézerműködés kialakulhasson. Ez praktikusán csak olyan optikai elrendezés hozzáadását engedi csak meg a hagyományos titán-zafír lézerezonátorhoz, melynek ABCD-mátrixa egységmátrix.
- ii) fenn kell tartanunk a módusszinkronizáció zajból történő felépülésének feltételét, vagyis a kellően nagy önamplitúdómodulációs tényezőt. A tapasztalat szerint ez a rezonátor hosszának növelésével egyre nehezebbé válik.
- iii) a kialakuló nagy impulzusenergiák pedig nem okozhatnak olyan káros nemlineáris hatásokat, melyek az impulzusok felbomlásához vezetnek.

Nem egyszerű olyan lézerezonátort tervezni, amely i)-iii) feltételeknek egyidejűleg eleget tesz, a következőkben ezért bemutatom az ehhez vezető lépéseket.

5.1 Előzmények

A következőkben áttekintem a nagyenergiás lézerimpulzusokat stabilan szolgáltató titán-zafír oszcillátorok fejlesztéséhez vezető út főbb állomásait. Olyan hosszú rezonátoros titán-zafír lézert, melynek rezonátorhossza lényegesen (legalább egy nagyságrenddel) meghaladja a hagyományos oszcillátorokét először Cho és

munkatársai hoztak létre 2001-ben az 5.1 ábrán bemutatottnak megfelelő felépítésben (Cho et al., 2001).



5.1 ábra (forrás: Cho et al., 2001) Hosszú rezonátoros titán-zafír lézeroszillátor felépítése. M1-M9: fáziskorrigáló („csörpölt”) tükrök. M10, M11: nagyreflexiójú dielektrikumtükrök. L1: lencse a pumpáló nyaláb fókuszálására. OC: nyitótükör 800 nm-es lézerfény kicsatolására. Pontozott vonal jelöli a többutas üreget, másnéven Herriott-cellát, mely szintén a lézerrezonátor részét képezi (részleteket ld. a szövegben).

A lézer a következőképpen épül fel: az i) pontban említett rezonátor-instabilitás kiküszöbölésére a körjárási hossz csak olyan optikai elrendezéssel növelhető meg, melynek ABCD-mátrixa egységmátrix. Szerencsére ehhez ismert egy régi spektroszkópiai megoldás, az ún. többutas üreg vagy Herriott-cella (Herriott et al., 1964). Az 5.1 ábrán M6 és M10 tükrök közti terjedés ABCD-mátrixa ugyanis M7 és M8 tükrök megfelelő távolságával és görbületi sugarával egységmátrixszá tehető az átmenetek számának egy adott értéke mellett, mely akár 10-12 is lehet, amennyiben a tükrök átmérője 50-75 mm-es. Ekkor a tükrökön az egyes reflexiók egy kör kerületén rendeződnek el, ellentétben az 5.1 ábra egyszerűsítő ábrázolásmódjával. Ezt később az 5.3 ábrán mutatom be. A rezonátorstabilitás tehát a karhossz jelentős növelése mellett megtartható, az ismétlési frekvencia így akár néhány MHz-re csökkenthető.

A tapasztalat szerint a karhossz növelésével azonban egyre nehezebbé válik a Kerr-lencsés módusszinkronizáció beindítása az önamplitúdomodulációs tényező leromlása miatt. Erre megoldásként kínálkozik egy telítődő abszorber félvezetőtükrök („semiconductor saturable absorber mirror,” SESAM, más néven „saturable Bragg reflector,” SBR, ld. Okhotnikov et al., 2004) beépítése M11 végtükröként. Ezzel a ii) problémát is ki lehet küszöbölni.

A iii) pont jelenti azonban a legnagyobb kihívást. Amennyiben a nettó rezonátordiszperziót (CsKD-t) a titán-zafír lézereknél megszokott kis negatív értéken tartjuk, akkor a változatlan átlagteljesítmény és jelentősen lecsökkenő ismétlési frekvencia mellett megnövekvő impulzusenergia káros nemlineáris hatásokat okoz, könnyen kettősimpulzus vagy folytonos lézerhátter jelenik meg. Cho és munkatársai két megoldást mutattak ennek kiküszöbölésére. A rezonátordiszperziót egyrészt jelentősen tovább lehet csökkenteni a negatív értékek irányába, ekkor a spektrum keskenyebbé válik és a szolitonszerű impulzusformálás hosszabb impulzusokat

eredményez, kisebb csúcsintenzitással (Cho et al., 2001). Másrészt a nettó rezonátordiszperziót pozitív értékre is állíthatjuk, ekkor a szállézerek működéséhez hasonló parabolikus impulzusformálás alakul ki, a lézer kimenetén pedig transzformációkorlátozott impulzusok helyett erősen fázismodulált („csörpölt”) impulzusok jeletkeznek, viszonylag széles spektrummal. Ezek az impulzusok a rezonátor kimenetén egyszerű lineáris kompresszorral a transzformációkorlát közelébe nyomhatók össze. Mivel ilyenkor a rezonátorban is erősen fázismodulált impulzusok keringenek, ezzel a megoldással az impulzusenergia akár több száz nJ-ra növelhető.

A fejlesztések kezdetén ezen megoldások különböző kombinálásával a következő lézerkimeneteket érték el. Cho és munkatársai 2001-ben -340 fs² nettó negatív rezonátordiszperzió és 4 MHz ismétlési frekvencia mellett 55 fs-os 48 nJ-os impulzusokat. Ugyanők +390 fs² nettó pozitív rezonátordiszperzió, 4 MHz ismétlési frekvencia mellett 80 fs-os, 90 nJ-os impulzusokat kaptak (Cho et al., 2001). Kowalevicz és munkatársai -1350 fs² nettó negatív rezonátordiszperzió és 5,85 MHz ismétlési frekvencia mellett 43 fs-os, 150 nJ-os impulzusokat állítottak elő 2003-ban (Kowalevicz et al., 2003). Fernandez és munkatársai pedig 2004-ben +500 fs² körüli pozitív rezonátordiszperzió, 11 MHz ismétlési frekvencia mellett 30 fs-os, 220 nJ-os impulzusokat értek el (Fernandez et al., 2004).

Az ezekben a munkákban alkalmazott megoldások áttekintése után a következő célokat tűztem ki: a rezonátor szisztematikus megtervezése mellett építsünk olyan, μ J-os impulzusenergia-szintet megközelítő lézert, mely 50 fs-os impulzushossz alatti specifikációval rendelkezik, diszperziókompenzálása egyszerű tükrökkel megoldható és impulzusait pl. egy rezonátoron kívüli elrendezéssel jelentősen rövidebbre össze lehet nyomni.

5.2 Hosszú rezonátoros oszcillátorok impulzusenergiájának 0,5 μ J-ra növelése

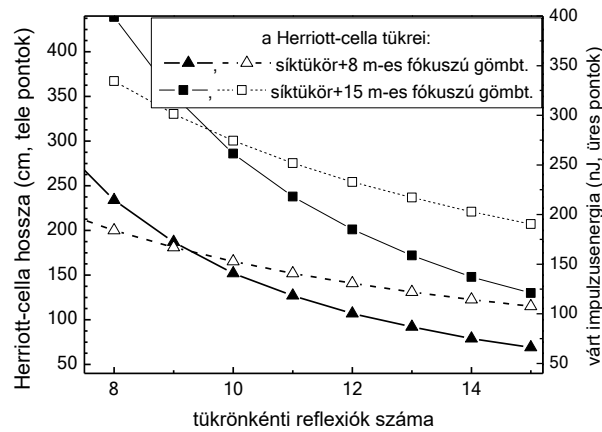
Hosszú rezonátoros lézerekben az impulzusenergiát (változtatlan pumpálóteljesítmény mellett) első közelítésben a rezonátorhossz határozza meg. Ezért a megfelelő lézer megtervezéséhez megvizsgáltam a Herriott-cellák alapvető tulajdonságait, vagyis hogy a bemutatott nagy apertúrájú tükrök adott görbületi sugarai mellett miként változik az elérhető úthossz a reflexiók számának változtatásával. Ehhez tekintsük a Herriott-cellán belüli terjedés egy egységét (egy körüljárást), az 5.1 ábra jelöléseivel az M7→M8→M7 utat. A nyaláb ekkor a következő ABCD-mátrixszal transzformálódik:

$$\begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -1/f & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1-d/f & 2d-d^2/f \\ -1/f & -d/f+1 \end{pmatrix}, \quad (5.1)$$

ahol d a Herriott-cella tükreinek távolsága és f a gömbtükör (M8) fókusz távolsága. (M7 síktükör.) Ahhoz, hogy a nyaláb a cellából kilépéskor változatlan maradjon, az (5.1)-beli mátrixszorzást elvégezve a következő feltételnek kell teljesülnie:

$$\begin{pmatrix} 1 - d/f & 2d - d^2/f \\ -1/f & -d/f + 1 \end{pmatrix}^N = \begin{pmatrix} \pm 1 & 0 \\ 0 & \pm 1 \end{pmatrix}, \quad (5.2)$$

vagyis egységmátrixot vagy annak ellentettjét kell kapnunk, ahol N a Herriott-cellán történő átmenetek száma. Ezt a feltételt a példaként vizsgált 16 m-es, illetve 30 m-es görbületi sugarú tükrökre kiértékelve az 5.2 ábrán bemutatott összefüggést kapjuk (Dombi és Antal, 2007).

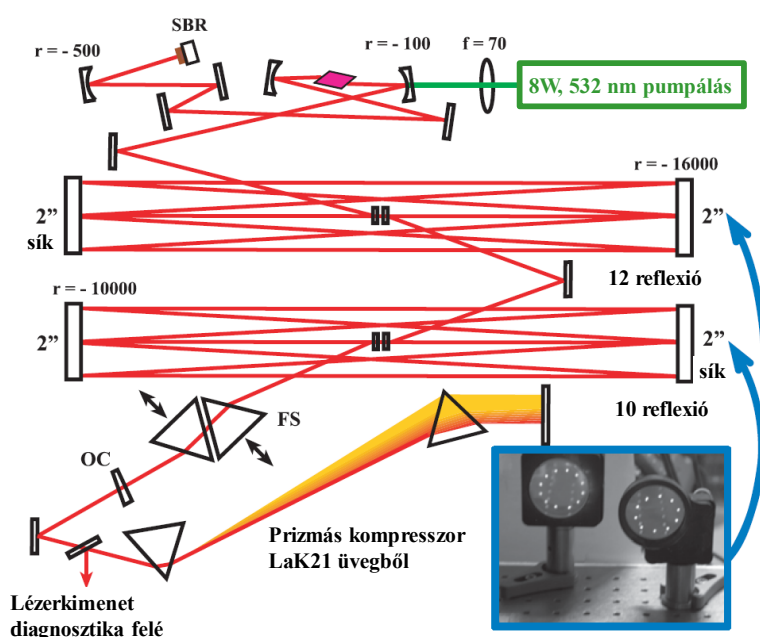


5.2 ábra A Herriott-cella hosszának (tele pontok és folytonos vonal) és az oszcillátor várt impulzusenergiájának (üres pontok és szaggatott vonal) függése a tükrönkénti reflexiók számától két különböző optikai elrendezésre: síktükör/8 m-es fókuszú gömbtükörre illetve síktükör/15 m-es fókuszú gömbtükörre (5.1 ábrán M7 és M8 tükrök). A megadott paraméterkombinációknál a rezonátor ezen szakaszának ABCD-mátrixa egységmátrix. A várt impulzusenergia becsléséhez változatlan, 760 mW-os kicsatolt átlagteljesítményt feltételeztem, innen nyertem a várt impulzusenergiát az átskálázott rezonátorhosszakra (Dombi és Antal, 2007).

Az ábrán az az érdekes és nem kimondottan előnyös összefüggés figyelhető meg, hogy a reflexiók számának növelésével a Herriott-cella hosszát csökkenteni kell (Dombi és Antal, 2007). Felmerül a kérdés, hogy ez milyen hatással van a rezonátor hosszára (vagyis az ismétlési frekvenciára) és az ezzel (változatlan átlagteljesítmény mellett) közel egyenesen arányos várt impulzusenergiára. Ezt az összefüggést is az 5.2 ábrán mutattam be, és az eredmény szintén nem kimondottan jó hírrel szolgál a hosszú rezonátoros lézerek fejlesztői számára. A növekvő számú tükröreflexió és a (csökkenő) szükséges tükrőtávolság szorzatából adódó teljes úthossz ugyanis kontrap intuitív módon szintén csökken a reflexiók számának növelésekor. Így az impulzusenergia növeléséhez vezető út a tükrönkénti reflexiók számának minimalizálása és extrém nagy, 5 m-t is meghaladó tükrőtávolság beállítása lenne. Ez a lézer építések nyilván nem praktikus megoldás, hiszen a tükrök távolságát ésszerű határon belül kell tartani azért, hogy a lézer optikai asztalon elfoglalt „lábnyoma” minél kompaktabb legyen és

hogy környezeti vibrációs hatások, légáramlás stb. minél kevésbé befolyásolják a lézerműködést.

Így a 0,5 μJ körüli impulzusenergia eléréséhez a következő kompromisszumos megoldás született: a garchingi Max Planck Kvantumoptikai Intézet laboratóriumában rendelkezésre álló, 50 mm-es apertúrájú, 16 m-es és 10 m-es görbületi sugarú gömb-, illetve síktükrökkel építsünk lézert két Herriott-cella egymás után helyezésével. A 16 m-es gömbtükrökből és síktükrökből álló cellánál 12 tükrönkénti reflexió és 107 cm tükrőtávolság mellett adódik a stabil, egységmátrixot adó megoldás, míg az azt követő, 10 m-es gömbtükrökből és síktükrökből álló cella 10 tükrönkénti reflexiónál és 90 cm-es tükrőtávolságnál stabil. Így a rendszer jól illeszkedik egy kompakt, 120 cm $\times$ 60 cm-es optikai asztallapra. A Herriott-cellákat egymás után helyezve az 5.3 ábrán bemutatott lézert építettük meg (Naumov et al., 2005).



5.3 ábra 3 MHz-es ismétlési frekvenciájú, 360 nJ-os impulzusokat adó hosszú rezonátoros lézerrendszer felépítése két egymást követő Herriott-cella felhasználásával. A megadott görbületi sugarak és fókusz távolságok mm-ben értendők. SBR: telítődő Bragg-reflektor, FS: ömlesztett kvarcprizmák folytonos diszperzióhangolásra, OC: 30 %-os nyitótükör (Naumov et al., 2005).

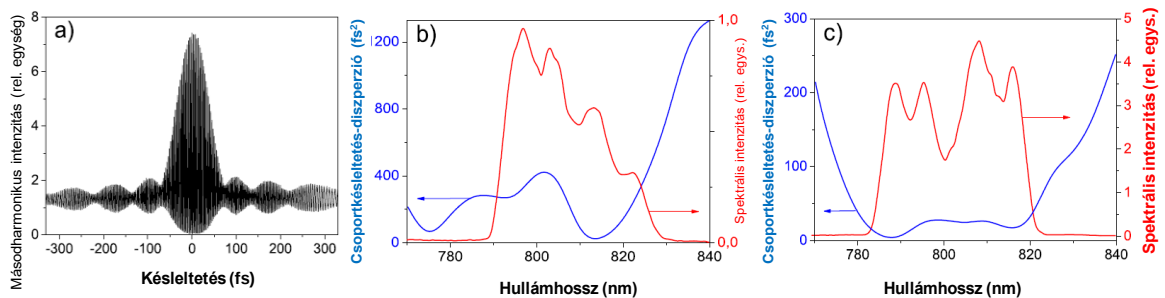
A lézer építésekor jónéhány további, a titán-zafir lézereknél szokatlan megoldást kellett alkalmaznunk. A jó (nagy teljesítménnyel, termikus lencsehatás nélküli) pumpálhatóság érdekében az oszcillátorfejet (a kristályt és a mellette lévő tükröket) a szokásos 5-7 cm-esről 10 cm-esre nyújtottuk az 5.3 ábrán bemutatott optikai elemekkel, valamint a pumpálónyaláb fókuszálólencsáját 7 cm-es fókuszúra cseréltük. Ekkor megnő mind a lézermódus mind a pumpálónyaláb módusátmérője a kristályban, ami enyhíti a termikus lencsehatásokat. Ezzel a megoldással a pumpálást stabilan maximum 8 W-os teljesítményig lehet növelni a lézerkimenet minőségének

észrevehető romlása nélkül. A teljes rezonátorhossz a fent bemutatott megoldásokkal kb. 50 m-nek adódik, ami 3 MHz-es ismétlési frekvenciának felel meg.

A rezonátor diszperzióját a pozitív nettó CsKD-tartományban tartottuk azáltal, hogy a különböző anyagi diszperziós járulékokat fáziskorrigáló tükrökkel kompenzáltuk. A legjelentősebb anyagi diszperziót a következő elemek jelentik: a titán-zafír lézerkristály, a levegő (N. B. 50 m-es terjedésnél már -900 fs^2 csoportkésleltetés-diszperzió!) és a diszperzióhangoló prizmák (5.3 ábrán FS) anyaga. Mindezek kiegyenlítéséhez a rezonátor gyakorlatilag összes tükrének diszperziót kellett kompenzálni, beleértve a Herriott-cellák 50 mm-es átmérőjű tükréit is!

Ezekkel a megoldásokkal a bemutatott lézer stabilan 360 nJ-os impulzusokat szolgáltatott 3 MHz-es ismétlési frekvenciával. $0,5 \mu\text{J}$ -os impulzusok eléréséhez tehát ezt a rezonátort át kell építeni még hosszabbá, kb. 75 m-essé. Erre a következő megoldás adódik az 5.2 ábrán bemutatott tapasztalatok felhasználásával. Helyezzünk két azonos, 16 m-es görbületi sugarú gömbtükörből és síktükörből álló Herriott-cellát egymás után, tükrönként 9-9 reflexióval. Ekkor a tükrök távolságának 187 cm-nek kell lenni, így elérhető a 2 MHz-es ismétlési frekvencia. A lézer átépítése után valóban közel változatlan átlagteljesítmény mellett 505 nJ-os impulzusokat kaptunk, két nagyságrenddel nagyobb, mint a legjobb standard titán-zafír oszcillátorok esetén.

A nettó pozitív rezonátordiszperziónak megfelelően a kicsatolt impulzusok erősen fázismoduláltak, kb. 1,5 ps-os hosszal. Ennek ellenére a spektrum viszonylag széles, így szükségessé vált az 5.3 ábrán bemutatott, rezonátoron kívüli, LaK21 üvegből készült prizmás impulzuskompresszor felépítése a transzformációkorlátozott impulzushossz eléréséhez. Ennek megfelelő beállítása után interferometrikus autokorrelátorral elvégeztem a kicsatolt impulzusok diagnosztikáját, melyet az 5.4 ábra mutat be.



5.4 ábra (a) A 3 ill. a 2 MHz-es ismétlési frekvenciájú, 360 nJ-os ill 505 nJ-os impulzusokat adó extrém hosszú rezonátoros lézerrendszerek által biztosított impulzusok autokorrelációja a LaK21-es anyagú prizmákból álló kompresszorral történő összenyomás után. Az autokorreláció gyakorlatilag azonos volt a 3 MHz-es és a 2 MHz-es esetekben. (b) A 3 MHz-es, 360 nJ-os impulzusokat adó lézer rezonátorának spektruma (vörös vonal), illetve spektrális csoportkésleltetés-diszperziója (kék vonal). (c) Ugyanezek az adatok a 2 MHz-es, 505 nJ-os impulzusokat adó lézer rezonátorára.

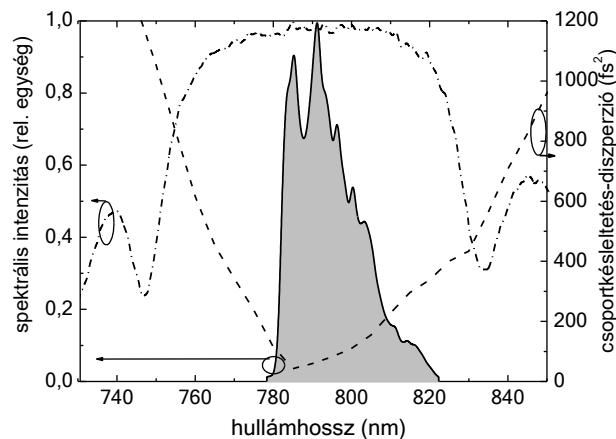
Az autokorrelációs görbe alapján (amely nem különbözött számottevően a 2 MHz-es és a 3 MHz-es oszcillátor esetére) megállapíthatjuk, hogy a komprimált

impulzusok mindkét esetben 40 fs körüli rövidségűek, ami a 2 MHz-es lézer esetére rekordnagyságú 12,5 MW-os, közvetlen egy lézeroszcillátorból elérhető impulzuscsúcsteljesítményt ad.

5.3 Diszperziókompenzálás erősen diszperzív tükrökkel

Az eddigiekben nem ejtettem sok szót a rezonátoron belüli diszperziókompenzálásról. A jó minőségű, nagy apertúrájú fáziskorrigáló tükröket adottnak tételeztem fel, holott hosszú rezonátoros lézerek építésének ez az egyik legkritikusabb pontja.

Az ezzel kapcsolatos fejlesztéseim bemutatásához példaként egy másik pozitív diszperziós, hosszú rezonátoros titán-zafir lézerrendszert ismertetek, melyet Budapesten, az akkori Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézetben építettem fel (Dombi és Antal, 2007) az alábbi főbb paraméterekkel. A lézer egy Herriott-cellát tartalmazott egy 16 m-es görbületi sugarú (fáziskorrigáló) gömbtükörrel és egy szintén fáziskorrigáló síktükörrel. A tükrök távolsága 234 cm, tükrönként 8 reflexióval. Így 3,6 MHz ismétlési frekvencia és 200 nJ impulzusenergia adódott amennyiben a lézert egy Ar-ionlézer összes vonalán pumpáltam 9 W teljesítménnyel (Dombi és Antal, 2007). Később, egy 7 W-os frekvenciakétszerezett Nd:YVO₄-lézerrel pumpálva 190 nJ impulzusenergia adódott (Kroó et al., 2008). Az impulzusok 55-68 fs közötti intenzitás-félértékszélességre nyomhatók össze az alkalmazott impulzuskompressziós módszertől függően. A lézer spektrumának kialakulását az 5.5 ábra mutatja be.

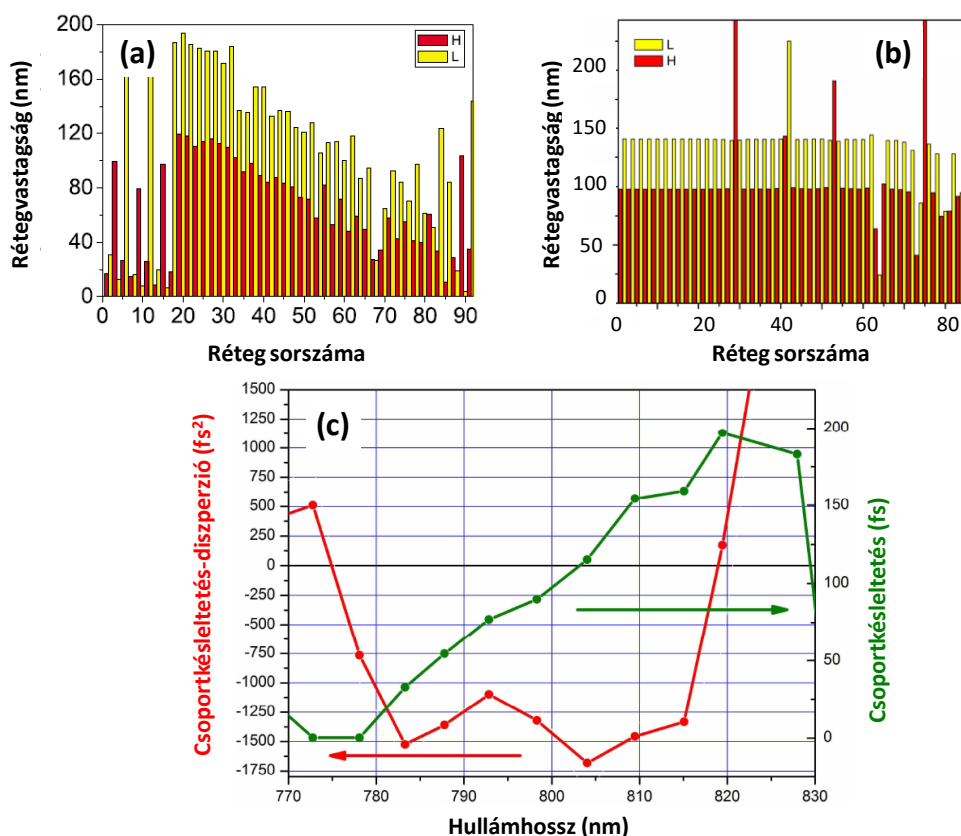


5.5 ábra A Budapesten megépített 3,6 MHz-es, 200 nJ-os lézeroszcillátor spektruma (folytonos vonal), a rezonátor spektrális csoportkésettetés-diszperziója (szaggatott vonal) és a telítődő Bragg-reflektor reflexiója (szaggatott-pontozott vonal).

A spektrum aszimmetriáján kívül (melyet kompenzálatlan harmadrendű diszperzió okoz, ld. Kalashnikov et al., 2005) jól megfigyelhető, hogy az infravörös végén a kiterjedése a telítődő Bragg-reflektor reflexiója által korlátozott. A spektrum

kék felőli oldaláról ez nem mondható el, viszont ha a csoportkésleltetés-diszperziós görbét nézzük, akkor érthetővé válik a levágás. A kék oldali határ ugyanis éppen ott van, ahol a csoportkésleltetés-diszperziós görbe meredeksége előjelet vált és a diszperzió meredeken emelkedni kezd. Ez a jelenség főleg a Herriott-cella nagy apertúrájú, fáziskorrigáló tükreinek diszperziós görbéiből adódik, hiszen az azokon megvalósított 8+8 reflexió bármilyen tükordiszperziós modulációt nagymértékben felerősít.

Felmerül tehát a kérdés, hogy kiválthatjuk-e ezeket a költséges tükröket egyszerű nagyreflexiójú dielektrumtükrökkel és áthelyezhetjük-e a diszperziókompenzáció nagy részét az oszcillátor egy másik pontjára. A válasz igenlő, ugyanis a multirétegtechnológia fejlődésének köszönhetően megjelentek olyan, erősen diszperzív tükrök, melyeknél a reflexiónként megvalósítható csoportkésleltetés-diszperzió akár -1000 fs^2 is lehet (Pervak et al., 2008) szemben a szokásos fáziskorrigáló tükrök tipikus $-50 \dots -100 \text{ fs}^2$ -es értékével (Szipőcs et al., 1994). Az ilyen, erősen diszperzív tükrök működési elvét mutatja be az 5.6 ábra.

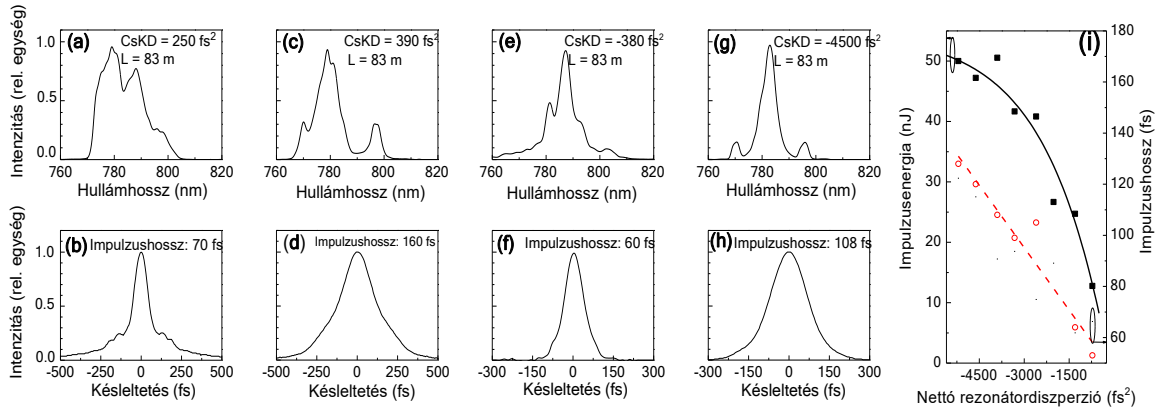


5.6 ábra (a) Tipikus optimalizált fáziskorrigáló („csörpölt”) és (b) erősen diszperzív tükrök rétegszerkezete, ahol „H” és „L” jelöli rendre a nagy illetve kis törésmutatójú rétegeket. (c) Erősen diszperzív tükrök csoportkésleltetés-diszperziója, mely a 783-815 nm-es tartományban átlagosan -1400 fs^2 értéket vesz fel. (Forrás: Pervak et al., 2008.)

Szemben a fáziskorrigáló tükrök csoportkésleltetésével, mely a különböző spektrális komponensekre megvalósuló különböző behatolási mélységekből fakad, az erősen diszperzív tükrök esetén egy alapvetően $\lambda/4$ -es rétegrendben elhelyezett Gires-Tournois-típusú üregek adják a diszperzív hatásokat (Gires és Tournois, 1964). A két legfontosabb különbség, hogy utóbbi esetben lényegesen nagyobb diszperziót lehet elérni, viszont a diszperziós sáv szélesség még több különböző üreg elhelyezése esetén is erősen korlátozott (30-40 nm, ld. 5.6(c) ábra). Viszont mivel ez a spektrális sáv nem keskenyebb, mint hosszú rezonátoros lézerek tipikus spektrális szélessége, ezért jól adódik, hogy rezonátoron belüli diszperziókompenzálásra lehet használni az erősen diszperzív tükröket.

Ilyen tükrök titán-zafir rezonátoron belüli alkalmazását demonstráltam elsőként. A fejezet elején bemutatott oszcillátorban a Herriott-cella nagy átmérőjű fáziskorrigáló tükröit egyszerű nagyreflexiójú dielektrikumtükrökre cseréltem, és az egyik rezonátortükrök helyére egy -1300 fs^2 -es csoportkésleltetés-diszperziót adó, erősen diszperzív tükröt építettem be (Dombi et al., 2009b). Ezután a rezonátordiszperziót (CsKD-t) széles tartományban egy kvarcüveg-prizmapárral állítottam be, mellyel mind nettó pozitív mind negatív értékeket meg tudtam valósítani. Pozitív értékek esetén az

impulzusokat a rezonátoron kívül egy 1200 vonal/mm-es transzmissziós rácspárból álló kompresszorral nyomtam össze, negatív értékeknél erre nem volt szükség, hiszen a szolitonszerű impulzusformálás miatt közel transzformációkorlátozott impulzusok lépnek ki a lézerből. Az impulzusokat egy kereskedelmi intenzitás-autokorrelátorral diagnosztizáltam (APE GmbH). Különböző, reprezentatív rezonátordiszperziós értékek mellett kapott spektrumokat és intenzitás-autokorrelációs függvényeket az 5.7 ábrán mutatok be.



5.7 ábra Mért oszcillátorspektrumok (felső sor) és intenzitás-autokorrelációs függvények hosszú rezonátoros titán-zafír lézerre (teljes körüljárási hossz $L = 83$ m), melyet erősen diszperzív tükörrel diszperziókompenzáltam. A beállított nettó rezonátordiszperzió (csoportkésleltetés-diszperzió, CsKD) értékei: (a),(b) esetében 250 fs², (c),(d) esetében 390 fs², (e),(f) esetében -380 fs² és (g),(h) esetében -4500 fs². (i) A negatív diszperziós tartományban bemutatom az impulzushossz (vörös) és a stabilan elérhető maximális impulzusenergia (fekete) értékét a nettó rezonátordiszperzió függvényében.

Megfigyelhető, hogy a spektrum jelentős változása ellenére mind a negatív mind a pozitív diszperziós tartományban rugalmasan működtethető a lézer, jól használható 60-160 fs közötti rövidségű impulzusokkal a kimeneten. Az impulzusenergia a pozitív diszperziós tartományban 190 nJ körül állandósul, a negatív diszperziósban pedig erősen függ a nettó rezonátordiszperziótól, ahogy az a szolitonszerű impulzusformálástól várható (ld. 5.7(i) ábra). A nulla rezonátordiszperzióhoz a negatív tartományból közeledve a pumpálóteljesítményt egészen 3,4 W-ig kellett csökkenteni a stabil lézerműködés érdekében.

Az erősen diszperzív tükörrel felépített lézerral tehát rugalmasan változtatható mind az oszcillátor üzemmódja mind az architektúra, hiszen a kritikus diszperziókompenzációs lépés a rezonátor egy pontján történik. A 6. fejezetben bemutatandó ultragyors plazmonikai kísérletekhez használt lézer felépítése is már ezt az újfajta, flexibilis architektúrát követi.

5.4 Nagyenergiájú oszcillátorimpulzusok kompressziója

A fentiekben láttuk, hogy a diszperzív tükrök és a telítődő Bragg-reflektor sávszélességének korlátozott volta miatt a hosszú rezonátoros titán-zafír oszcillátorokból közvetlenül nyerhető impulzusok hossza a 30...80 fs-os tartományra korlátozódik. Ezért kifejlesztettem olyan, nemlineáris spektrális kiszélesítésen alapuló posztkompressziós elrendezést is, melyekben legalább 3...4-szeres impulzusösszenyomást lehetett elérni. Ezeknek a kísérleteknek egy további érdekes hozadéka volt a csörpkonverzió jelenségének felfedezése.

5.4.1 Az impulzusok spektrális kiszélesítése

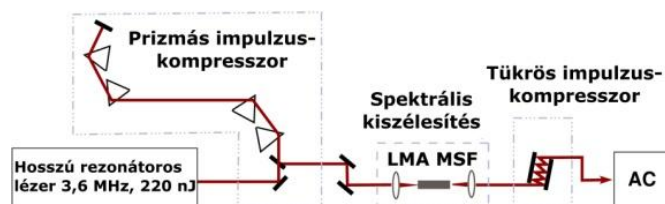
Különböző lézeroszcillátorok és -erősítők sávszélességének korlátozott volta miatt femtoszekundumos impulzusoknak a lézeren kívüli időbeli összenyomására számos impulzuskompressziós séma terjedt el. Ezek mindegyike az impulzusok valamilyen nemlineáris kölcsönhatásán alapul különböző dielektrikumközegekkel, melynek eredményeként az impulzus spektruma kiszélesedik. Az ebben szerepet játszó folyamatok legtöbbször az önfázismoduláció, különböző Raman-folyamatok és egyéb nemlineáris optikai jelenségek („self-steepening” stb.). A szélesebb spektrummal ugyan legtöbbször egy fázismodulált, nem transzformációkorlátozott impulzus jár együtt, ám egy további, megfelelő lineáris eszközzel: prizmás, rácsos vagy tükrös kompresszorral az eredetnél lényegesen rövidebb lézerimpulzusok érhetők el.

Ennek az alapkoncepciónak egyik első demonstrációja volt ns-os impulzusok összenyomása egymódusú szálakban (Lin és Stolen, 1976), ezt az elvet aztán a femtoszekundumos tartományban is megvalósítottuk (Yakovlev et al., 2003). Nagyobb csúcsteljesítmények esetén az impulzusok tömbi dielektrikumba történő fókuszálása is alkalmas spektrális kiszélesítésre (Mével et al., 2003), azonban a korlátozott kölcsönhatási hossz (gyakorlatilag a fókuszált nyaláb Rayleigh-hossza) és a spektrálisan inhomogén módus lerontja ezeknek a sémáknak a használhatóságát. A legsikeresebb módszer femtoszekundumos erősítők impulzusainak összenyomására a nemesgázzal töltött kapillárisokba történő fókuszálás, ami a szub-mJ-tól a néhány mJ-ig terjedő impulzusok spektrális kiszélesítésének elterjedt módszerévé vált (Nisoli et al., 1996). Ezt azonban lehetetlen lenne átskálázni a hosszú rezonátoros oszcillátorok miatt számunkra érdekes 100 nJ...1 μ J impulzusenergia-tartományra. Az alacsonyabb impulzusenergia miatt kisebb kapillárisátmérőkre lenne szükségünk, azonban a kapillárisban a terjedési veszteség fordítottan arányos a belső átmérő harmadik hatványával, ami tolerálhatatlan veszteséget okoz.

Mindezek miatt két olyan eszköz marad hosszú rezonátoros titán-zafír lézerek impulzusainak spektrális kiszélesítésére, amely minden fontos kritériumnak eleget tesz: egymódusú optikai szálak ill. nagy módusfelületű mikrostrukturált szálak. Mindkét eszközzel sikerült hatékony spektrális kiszélesítést demonstrálnom.

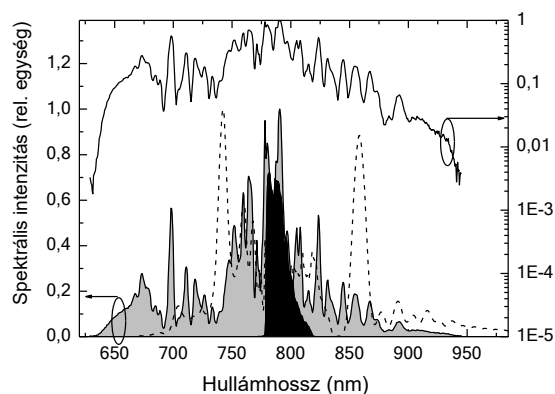
A titán-zafír lézer 800 nm körüli hullámhosszán a legfeljebb 5-6 μm magátmérőjű optikai szálak viselkednek egymódusúként. A tapasztalat szerint azonban, ha ilyen szálakba több száz nJ-os femtoszekundumos impulzusokat fókuszálunk, akkor a belépő felület roncsolódik. Ennek elkerülésére, a fázismodulált impulzuserősítés („chirped pulse amplification”) analógiájára a fázismodulált szuperkontinuumkeltési sémát javasoltam és demonstráltam (Dombi et al., 2007). Amennyiben ugyanis a szálba érkező impulzusok nem transzformációkorlátozottak, akkor van esély arra, hogy roncsolás nélkül több száz nJ-t becsatljunk.

Ennek bemutatására az 5.3 fejezetben ismertetett hosszú rezonátoros titán-zafír oszcillátor 160 nJ-os impulzusait használtam, melyeket az oszcillátor kimenetén elhelyezett négyprizmás impulzuskompresszor elhangolásával 140 fs-ra szélesítettem ki a szálroncsolás elkerülése érdekében (5.8 ábra). Az impulzusokat egy megfelelő akromatikus fókuszálólencsével fókuszáltam egy egymódusú optikai szálba (SM750, Fibercore), melynek 780 nm-en 5,2 μm -es módusátmérője volt és 650 nm-es levágási hullámhosszal rendelkezett.



5.8 ábra Hosszú rezonátoros oszcillátorok impulzusainak spektrális kiszélesítésére és az impulzusok összenyomására szolgáló optikai elrendezés felépítése. LMA MSF: nagy módusfelületű mikrostrukturált optikai szál, más esetekben egymódusú szál. AC: autokorrelátor.

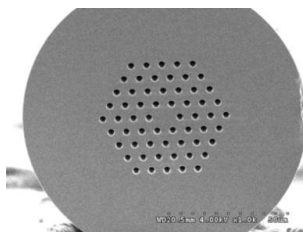
Az egymódusú szálban a fázismodulált impulzus hatékony spektrális kiszélesítését észleltem, melyet az 5.9 ábrán mutatok be. A negatívan fázismodulált impulzus spektruma a többszörösré szélesedik ki, a kiszélesített spektrumból számolt transzformációkorlátozott impulzushossz 7 fs-nak felel meg, vagyis kb. 6-7-szeres kiszélesítést sikerült egy egyszerű eszközzel, az egymódusú szálaknál szokatlanul nagy impulzusenergia mellett elérni. A séma egyetlen hátránya, hogy a teljes átvitel (a szál mögött és előtt mérhető impulzusenergiák hányadosa) 35 % körül mozgott. Ez a veszteség nem magyarázható kizárólag a szokásos szálbecsatolási veszteségekkel, abban nagy szerepet játszik a szálból látható, 15-35 % körülire becsült (a belépési felület irányába történő) visszaszórás, melynek az eredete nem ismert és további, célzott kísérletek szükségesek a mechanizmus tisztázására. Megállapítottam viszont, hogy a visszaszórt fény spektruma már a kiszélesített spektrum, tehát a visszaszórás folyamat csak azután következik be, hogy a spektrum kiszélesítése megtörténik, így a szükséges nemlineáris kölcsönhatásokat sem rontja le ez a fajta veszteség.



5.9 ábra A hosszú rezonátoros lézeroszcillátor spektruma (fekete terület). Az egymódusú szálban, fázismodulált spektrális kiszélesítéssel létrehozott szuperkontinuum (folytonos vonalak, lineáris, illetve logaritmikus skálán), illetve a száloptikai nemlineáris Schrödinger-egyenlet megoldásával számolt spektrum (szaggatott vonal).

Fontos még megemlíteni, hogy az észlelt spektrum jó kvalitatív egyezést mutat a száloptikai nemlineáris Schrödinger-egyenlet megoldásából kapható spektrummal (ld. 5.9 ábra), melyet Várallyay Zoltán oldott meg numerikusan (Dombi et al., 2007). A modellezés során mind a közeg nemlineáris törésmutatóját (és az ebből eredő főleg önfázismodulációs hatásokat), mind Raman-kölcsönhatásokat figyelembe vett.

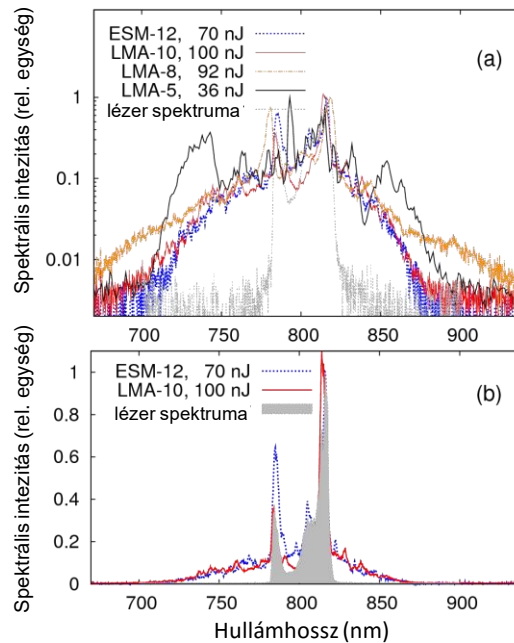
Mivel azonban ez a spektrális kiszélesítési módszer nem ígért számottevő átvitelt, ezért egy alternatív módszert is javasoltam. Ismert, hogy ún. mikrostrukturált optikai szálakkal (5.10 ábra), ahol a köpenyt egy mikrostrukturált, üreges rész veszi körül, nagy, akár $35\ \mu\text{m}$ körüli magátmérő mellett is egymódusú terjedés valósítható meg (Knight et al., 1998). Az ilyen szálakat a szakirodalomban máskor fotonikus kristály szálaknak (PCF) is nevezik. Az egymódusú hullámvezetés ténye különösen hosszú rezonátoros oszcillátorok nagyenergiás impulzusainak összenyomásában használható ki, hiszen a roncsolási problémát anélkül kerüljük meg, hogy lemondanánk a megfelelő kimeneti módusminőségről.



5.10 ábra Nagy módusfelületű mikrostrukturált optikai szál pásztázó elektronmikroszkópos képe. A szál magátmérője kb. $10\ \mu\text{m}$. (Forrás: Wang és Tang, 2012)

Ezért a következő spektrális kiszélesítési sémát javasoltam. Vegyük a hosszú rezonátoros lézerünk transzformációkorlátozott impulzusait a négyprizmás

kompresszor után az 5.8 ábra szerinti elrendezésben. Válasszunk egy olyan nagy módusfelületű mikrostrukturált optikai szálát, amelybe a teljes impulzusenergiát még éppenhogy roncsolás nélkül be tudjuk csatolni, majd illesszük a becsatolóoptikákat a szál módusátmérőjéhez. Ez alapján, a közel 200 nJ-os impulzusokra a 10 μm -es módusátmérőjű szálát állapítottam meg optimális megoldásként (LMA-10, NKT Photonics). A kísérletet az 5.8 ábra szerint felépítve az 5.11 ábrán bemutatott eredményeket kaptuk (Fekete et al., 2013).



5.11 ábra Különböző, nagy módusfelületű, mikrostrukturált optikai szálakban kiszélesített spektrumok valamint a lézeroszcillátor spektruma (a) logaritmikus, illetve (b) a legnagyobb felületű szálak esetén lineáris skálán. Az ábrán jelöltem az adott szál kimenetén elért legnagyobb impulzusenergiát is.

Az összehasonlítás érdekében nem csak a teljes oszcillátorteljesítménnyel használható, hanem annál kisebb módusfelületű 7-9 mm között hosszúságú szálakat is megvizsgáltunk (LMA-8 és LMA-5 rendre 8,5 μm -es illetve 5 μm -es magátmérővel), ezekben az esetekben a becsatolt átlagteljesítményt csökkenteni kellett (Fekete et al., 2013). Megállapítható, hogy mind a négy száznál jelentősen kiszélesedett spektrumot kaptunk 40-60 % közötti átvitelrel. Az impulzusenergia maximálása szempontjából a legjobb eredményt az LMA-10 szál adta 100 nJ kimeneti impulzusenergiával. Érdekes módon a legszélesebb spektrumokat (alacsonyabb elérhető impulzusenergia mellett) az LMA-8 és LMA-5 szálaknál észleltük, ennek az oka a különböző szálak eltérő diszperziós tulajdonságaiban keresendő, mely természetesen a nemlineáris terjedésnek is fontos tényezője.

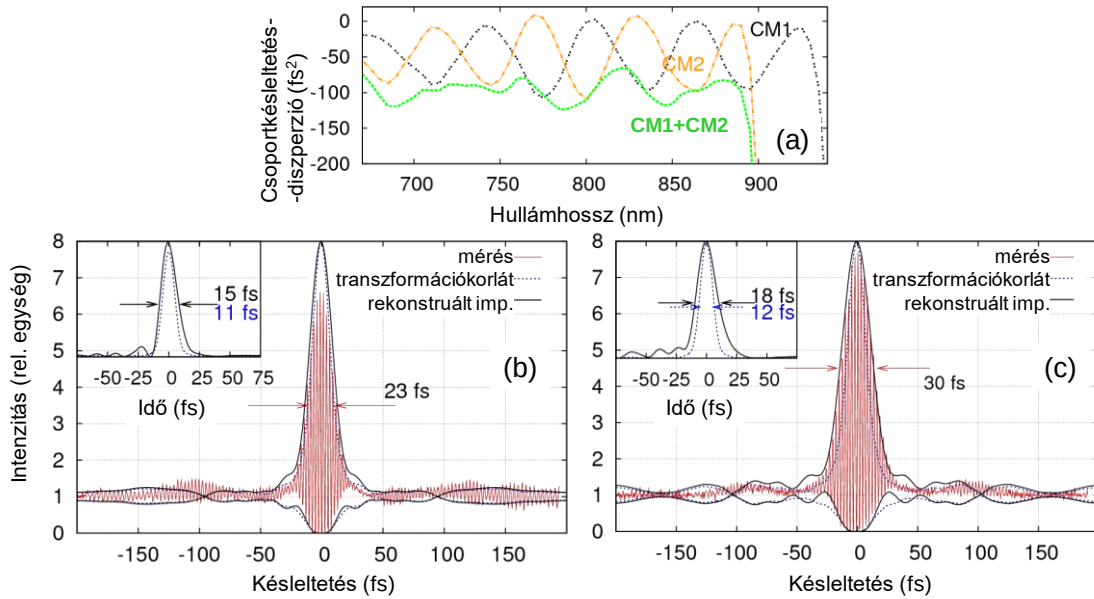
A spektrális kiszélesítési kísérleteket összefoglalva megállapítható, hogy amennyiben egy nagyon széles szuperkontinuumra van szükség legfeljebb 50-60 nJ-os impulzusenergia mellett, akkor az egymódusú szálakban megvalósított fázismodulált szuperkontinuumkeltés módszere ajánlott, amennyiben pedig nagyenergiájú, jól összenyomható impulzusokat szeretnénk, akkor transzformációkorlátozott oszcillátorimpulzusok spektrumát kell nagy módusfelületű mikrostrukturált szálakban kiszélesíteni. Ez utóbbival kapcsolatos eredményeimet a következő fejezetben mutatom be röviden.

5.4.2 Impulzusösszenyomás

Amennyiben optikai szálakban femtoszekundumos lézerimpulzusok által keltett szuperkontinuum-jellegű spektrumokat időben a transzformációkorlát közeli hosszra kívánunk összenyomni, akkor a szálbeli nemlineáris kölcsönhatások által generált komplex spektrális fázisfüggvényt kell megfelelő eszközökkel kompenzálni. A feladatot megnehezíti, hogy mindezt egy extrém széles spektrális tartományban kell megtenni a lehető legrövidebb impulzushossz elérése érdekében. Egymódusú szálak esetén, ahol a szuperkontinuumban jellemzően önfázismodulációs járulékok dominálnak (Dombi et al., 2007), ami közismerten lineáris fázismodulációval jár, ez egyszerűbb feladat. Kis módusfelületű mikrostrukturált szálaknál, ahol a nulldiszperziós hullámhossz 800 nm közelében van, a spektrális kiszélesítés minden másnál nagyobb mértékű lehet, azonban a tapasztalat szerint a spektrális fázis olyan komplex, hogy azt csak aktív eszközökkel lehet kielégítő eredménnyel kompenzálni (Yamane et al., 2003). A kis módusátmérő miatt pedig az impulzusenergia is igen korlátozott, maximálisan jellemzően 1 nJ alatt marad.

Nagy módusfelületű mikrostrukturált szálaknál azt vártam, hogy mivel nulldiszperziós hullámhosszuk 1030 nm és 1200 nm között van, így a keltett spektrumok fázisfüggvénye is könnyebben kompenzálható. Ugyan ezek a szálak keskenyebb spektrumot szolgáltatnak, de még így is várhatjuk hosszú rezonátoros lézerek jellemzően 40-80 fs-os impulzusainak sokszoros összenyomását valamint az impulzusenergia szerinti, legalább 1 μ J-ig történő skálázhatóságot (például nagy, 35 μ m-es magátmérőjű mikrostrukturált szál használatával).

A fentiek demonstrálására az 5.8 ábrán bemutatott elrendezésben végeztük el a kísérletet a legígéretesebb kb. 8 mm hosszú LMA-10-es és ESM-12-es szálakkal (Fekete et al., 2013). A szálkimeneten illesztett fáziskorrigáló tükröppárról 20-22 reflexiót használtunk a széles spektrum időbeli összenyomására (ld. 5.12(a) ábra). Az így bevitt teljes csoportkésleltetés-diszperzió értéke kb. -1000 fs² volt, ezzel kaptuk a transzformációkorláthoz legközelebb álló impulzusokat. A tükrös kompresszor után egy interferometrikus autokorrelátorral karakterizáltuk a kapott impulzusokat, melynek eredményét az 5.12(b) és (c) ábrák mutatják be.



5.12 ábra (a) Az 5.8 ábrán bemutatott fáziskorrigáló tükörpár diszperziója. (b), (c): Az ezek segítségével összenyomott impulzusok mért interferometrikus autokorrelációs függvénye (vörös görbe), a rekonstruált interferometrikus autokorreláció burkolója (fekete görbe) valamint a belső ábrákon a transzformációkorlátozott (kék görbe) és a rekonstruált impulzusok intenzitásának időbeli lefutása, ez utóbbi fekete görbével. A (b) ábra LMA-10-es szára, a (c) ábra ESM-12-es szára vonatkozik.

Az impulzusalak rekonstrukciójára a következő eljárást alkalmaztuk: a mért spektrumhoz hozzávettünk egy olyan spektrális fázisfüggvényt, ami csak a csoportkésleltetés-diszperziós tagot és annak első deriváltját (a harmadrendű diszperziót) tartalmazta. Ezzel a két paraméterrel illesztettük a mért interferometrikus autokorrelációs függvényt, a sikeres illesztés után pedig meghatároztuk az impulzus időalakját a mért spektrum és az illesztett spektrális fázis inverz Fourier-transzformálásával.

A rekonstrukciós folyamatból megállapítható, hogy a kiszélesített spektrumok 11 fs-os és 12 fs-os transzformációkorlátainak 1,4-1,5-szerese a ténylegesen kapott impulzushossz, ami kb. 4,5-szeres kompressziós faktornak felel meg. A szálbeli terjedés során kialakuló fázisfüggvényhez illesztett, egyedileg tervezett fáziskorrigáló tükörrel, amelyek például a harmadrendű diszperzió szempontjából is megfelelőek, az várható, hogy a transzformációkorlát közeli impulzusokat lehet ezzel az elrendezéssel elérni.

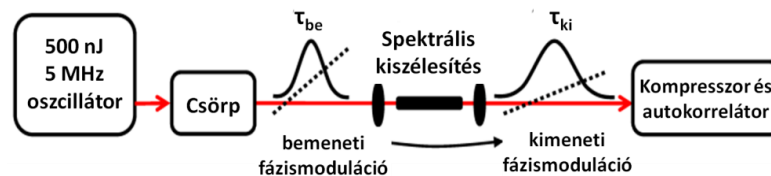
Figyelembe véve a kimeneten mért 100 nJ-os impulzusenergiát, 15 fs-os impulzushosszat és a 3,6 MHz-es ismétlési frekvenciát, az így létrehozott fényforrás olyan egyedi paraméterkombinációval rendelkezik, ami számos ultragyors spektroszkópai, plazmonikai és femtokémiai alkalmazásban szerepet kaphat. A kísérlettel továbbá bebizonyítottam, hogy nagy módusátmérőjű mikrostrukturált szálak (ellentétben a hagyományos mikrostrukturált szálakkal) ultrarövid impulzusok

összenyomásának hatékony eszközei és egyszerű fáziskorrigáló tükrökkel kombinálva sokszoros kompressziós faktorokat lehet a demonstrált elrendezéssel elérni.

5.4.3 A csörpkonverzió jelensége

Az előző fejezetben bemutatott kísérletek során érdekes tapasztalat volt, hogy míg a 8 mm-es száldarab tiszta anyagi diszperziója legalább 300 fs^2 , és a jelentős spektrális kiszélesítés közismerten önfázismodulációval és az abból adódó jelentős diszperzióval jár (Nisoli et al., 1996), az impulzusok optimális összenyomásához mindössze -1000 fs^2 -nyi csoportkésleltetés-diszperzió bevitele elégségesnek bizonyult. Az 5.4.1 fejezetben pedig azt is láttuk, hogy jelentős, több ezer fs^2 -es csoportkésleltetés-diszperzió bevitelével pedig akár egymódusú szálakban is lehet több száz nJ-os lézerimpulzusok spektrumát kiszélesíteni. Általánosan is felmerül tehát a kérdés, hogy erősen fázismodulált impulzusok optikai szálakon történő nemlineáris átvitele (spektrális kiszélesítése) során kezelhető marad-e a kimeneti fázismoduláció mértéke, miként viszonyul az az impulzus bemeneti fázismodulációjához?

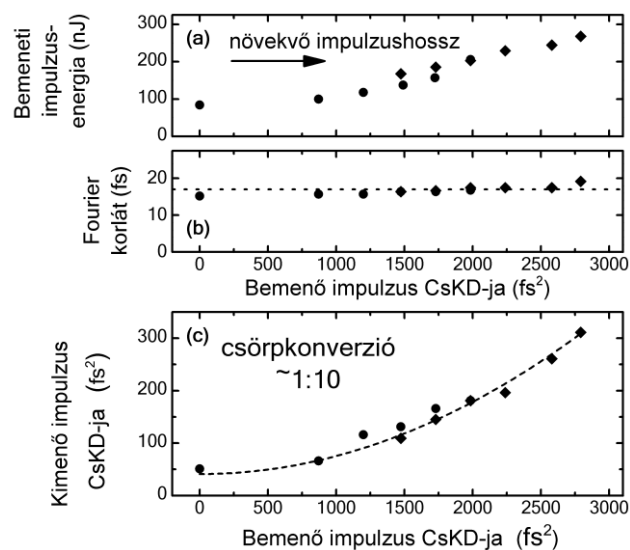
A jelenség okának felderítésére és a kérdés megválaszolására a Max Planck Kvantumoptikai Intézetben tartózkodásom alatt egy külön kísérletet terveztem és építettem fel az ott rendelkezésre álló eszközökkel (Dombi et al., 2014). Ezek legfontosabbika egy kereskedelmi, 500 nJ-os impulzusenergiát 5 MHz ismétlési frekvenciával szolgáltató hosszú rezonátoros titán-zafír lézer (Femtsource XL500, Femtolasers GmbH), melyet részben az 5.2 fejezetben is bemutatott femtoszekundumos technológiai fejlesztések kommercializálásával vittek piacra. A lézer egy négyprizmás kompresszor után 55 fs-os impulzusokat biztosít 795 nm-es központi hullámhossz mellett. A kísérleti elrendezést az 5.13 ábrán mutatom be.



5.13 ábra Kísérleti koncepció a fázismoduláció átvitelének mérésére. A lézer kimenetén kontrollált módon fázismodulációt bevive a nagy módusfelületű mikrostrukturált szálban (LMA-25, NKT Photonics) spektrális kiszélesítés történik. A kimeneten megjelenő fázismoduláció mértéke meghatározható a kimeneti tükrös kompresszor megfelelő beállításával úgy, hogy minimális impulzushosszat érünk el az autokorrelátorral.

A lézer kimenetén kontrollált módon fázismodulációt lehet bevinni a négyprizmás impulzuskompresszor elhangolásával, melynek mértéke pontosan ismert (ld. „csörp” 5.13 ábrán). A nagy módusfelületű mikrostrukturált szálban (LMA-25,

25 μm -es magátmérővel, 15 mm-es hosszal) a pozitívan fázismodulált impulzusokat spektrálisan kiszélesítettem úgy, hogy a bemeneti fázismodulációtól függetlenül azonos maradjon a szálból nyert spektrum Fourier-korlátja (vagyis a spektrális kiszélesítés mértéke). Ennek eléréséhez nagyobb fázismodulációnál nyilvánvalóan az impulzusenergiát kellett növelnem. Ezután a következő módon mértem a kimeneten megjelenő fázismoduláció mértékét. Egy fáziskorrigáló tükrök és vékony üveglemezek különböző kombinációjából álló tükrös impulzuskompresszoron a reflexiók és az üveglemezek számát változtatva autokorrelátorral megkerestem a minimális impulzushosszat. Így a tükrök és az üveg ismert diszperziójából meghatároztam a kimeneti fázismoduláció („csörp”) mértékét a bemeneti fázismoduláció függvényében, a spektrális kiszélesítés állandó értéken tartása mellett. Az eredményt az 5.14 ábrán mutatom be.



5.14 ábra (a) Az LMA-25 szál bemenetén szükséges impulzusenergia a kimeneti spektrum kb. 17 fs-nak megfelelő Fourier-korlátjának eléréséhez a bemenő impulzushoz adott csoportkésleltetés-diszperzió (CsKD) függvényében. (b) Közvetlenül a szálkimeneten mért spektrumokhoz tartozó transzformációkorlátozott impulzushosszak. (c) A kimenő impulzus által hordozott csoportkésleltetés-diszperzió a bemeneti függvényében. A négyzetek és a körök két különböző méréssorozat mérési pontjait jelölik. A szaggatott vonal egy önfázismodulációs terjedési modell eredménye, amely a szálbeli terjedés során konstans impulzushosszat feltételez.

A legérdekesebb kísérleti tény, amelyet észleltem, az ábra (c) részén látszik, mégpedig a „csörpkonverziós faktor” kb. 1:10-es értéke. Vagyis akkor is, amikor pl. 2800 fs^2 csoportkésleltetés-diszperziót „hordozó”, fázismodulált impulzusok érkeznek a szálba, amely szintén pozitív diszperziót ad hozzá az impulzusterjedéshez (mind a lineáris száldiszperzió mind a nemlineáris önfázismoduláció miatt), a kimenő impulzusok általt hordozott másodrendű fázismoduláció („csörp”) mindössze 300 fs^2

lesz. Ez a tény nagymértékben megkönnyíti az ilyen típusú (nemlineáris) impulzuskompresszorok energia szerinti skálázását, hiszen nagyobb energiájú, μJ körüli impulzusoknál a nagyobb szálátmérők választása mellett a bemenő impulzusok fázismodulálásával is lehetőség nyílik a roncsolás elkerülésére és a szálkimenet egyszerű, szélessávú fáziskorrigáló tükrökkel történő összenyomására.

Az észlelt csörpkonverziós jelenség magyarázatához nem volt szükség az 5.4.1 fejezetben már említett numerikus impulzusterjedési modellre. Elég, ha két előfeltevéssel élünk: i) a spektrális kiszélesítést dominánsan az önfázismoduláció okozza, ami az észlelt spektrumok alakjával alátámasztható. ii) A szálbeli terjedés során az impulzushossz közel állandó marad, vagyis a diszperziót elhanyagoljuk. Ez utóbbit a $3,8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ -nek adódó csúcsintenzitásból, 55 fs-os impulzushosszból, a kvarcüveg $2,45 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ nemlineáris törésmutatójából és a száldiszperzió (CsKD) $36 \text{ fs}^2/\text{mm}$ -es értékéből számolható nemlineáris hossz $1,4 \text{ mm}$ -es illetve a diszperzív hossz 85 mm -es értéke támasztja alá. Ez azt jelenti, hogy a spektrális kiszélesítés már a szálbeli terjedés elején megtörténik, még mielőtt az impulzus diszperzív hatások miatt kiszélesedne. Veisz László kollégám levezetése alapján, amelyet itt terjedelmi okokból nem mutatok be, az adódik, hogy

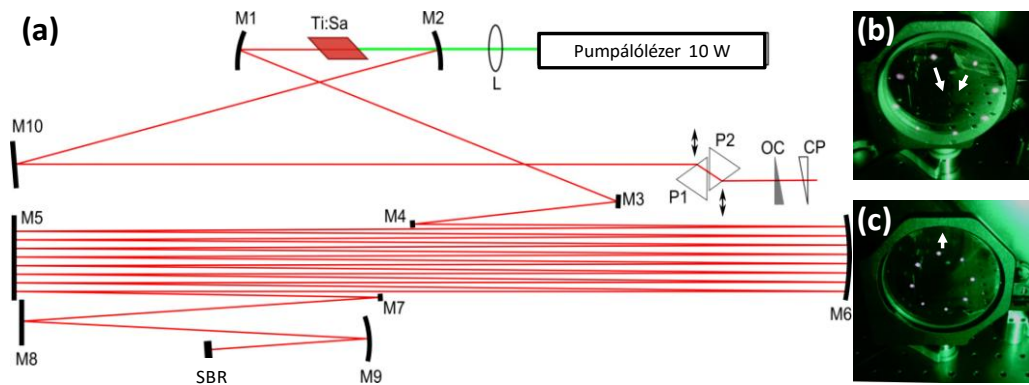
$$CsKD_{ki} = \frac{\lambda_0 \tau (CsKD_{be})^2}{16\pi \ln 2 \cdot n_2 I_0 L}, \quad (5.3)$$

ahol $CsKD$ jelöli az impulzus által hordozott csoportkésleltetés-diszperziót, λ_0 az impulzus központi hullámhosszát, τ az intenzitás-félértékszélességet, n_2 a nemlineáris törésmutatót, I_0 az impulzus csúcsintenzitását és L a szálhosszat (Dombi et al., 2014). Az 5.16(c) ábrán bemutatott illesztéshez mindössze egy illesztési paramétert használtunk, mégpedig a csúcsintenzitás értékét. Az illesztéskor kapott $(4,6 \pm 0,1) \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ -es érték jól megfelel a kísérlet során az impulzusenergiából, impulzushosszból és módusátmérőből kapható $3,8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ -es intenzitásértéknek.

Mindezek alapján kijelenthető, hogy nagy módusfelületű mikrostrukturált szálakat és a bennük hosszú rezonátoros lézerek impulzusaival adódó csekély diszperzív hosszat kihasználva egy olyan, dominánsan önfázismodulációs szálkompressziós tartományt demonstráltam, mely csak igen csekély mértékben fázismodulált („csörpölt”) impulzusokat eredményez a szál kimenetén. Ezt kihasználva a spektrálisan kiszélesített 300 nJ -os impulzusok egyszerű fáziskorrigáló tükrökkel könnyen összenyomhatók, továbbá az elrendezés könnyen több μJ -os impulzusokra továbbskálázható.

5.5 Hosszú rezonátoros oszcillátorok femtoszekundumos optikai elemek tesztelésére

Módusszinkronizált hosszú rezonátoros lézerek egy érdekes, rezonátoron belüli tükrötesztelési módszerre is lehetőséget nyújtanak, amelyre vonatkozó javaslatomat az 5.15 ábrán mutatom be.

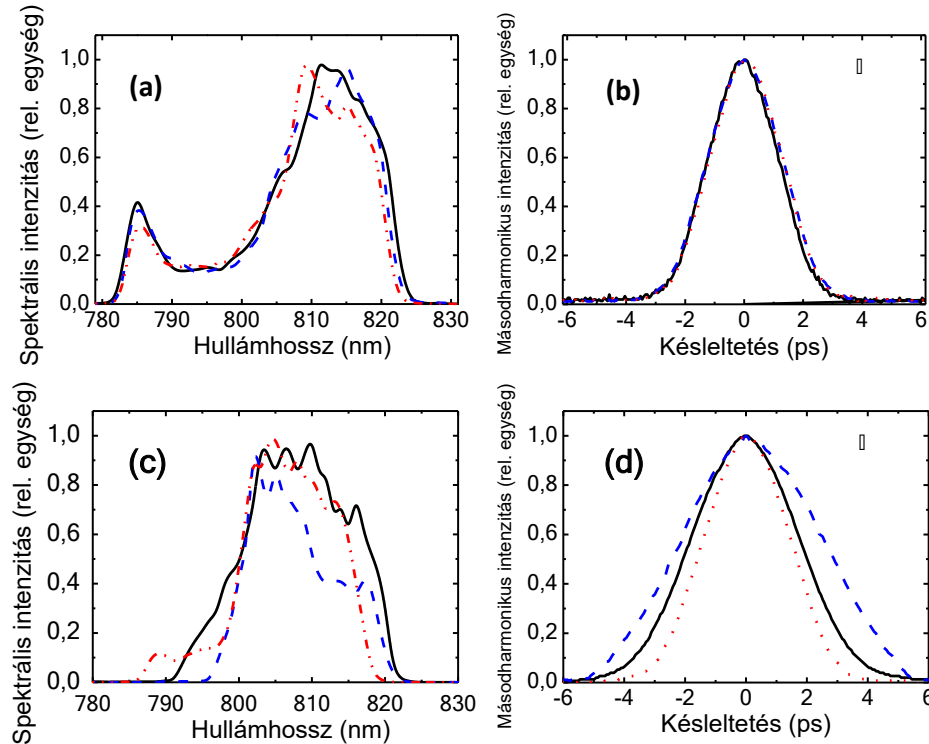


5.15 ábra (a) Hosszú rezonátoros titán-zafir lézer felépítése M1-M9 tükrökkel P1-P2 diszperzióhangoló prizmákkal OC nyitótükörrel, CP kompenzálólemezzel és SBR telítődő Bragg-reflektorral. (b) A nyalábok tipikus elrendeződése M5 és M6, nagy átmérőjű (75-100 mm) tükrökön. (c) A Herriott-cella körének átmérőjét egy adott minimum fölött gyakorlatilag tetszőleges méretűre állíthatjuk M4 tükör döntésével és M5-M6 utánállítással.

Hosszú rezonátoros lézer a fentiekben már bemutatott Herriott-celláján belül (Herriott et al., 1964) ugyanis a beesési szögek megfelelő beállításával (ld. 5.15 ábra M4 tükre) a nagy átmérőjű tükrökön az egymást követő reflexiók által kirajzolt kör átmérője egy bizonyos minimum fölött tetszőlegesen nagy méretűre állítható az oszcillátor bármely más paraméterének befolyásolása nélkül, mindősze az M4-M5-M6 tükrök enyhe döntésével. Ezt szemléltetik 5.15(b) ill. (c) ábrák. Ez azt is jelenti, hogy egy olyan nagy átmérőjű tükrőnél, amely mind a reflektivitás mind a diszperzió szempontjából teljes felületén homogén rétegrendszerrel rendelkezik, a Herriott-cella körének változtatásakor semmilyen hatást nem tapasztalunk a lézerműködésben. Ha ez a feltétel nem teljesül, az várható, hogy vagy a lézerteljesítmény vagy a lézerspektrum vagy a kicsatolt impulzusok torzulást szenvednek. A „Herriott-kör” átmérőjének folytonos változtatásával pedig gyakorlatilag a tükör teljes hasznos felülete érzékenyen letapogatható.

Az elképzelés demonstrálására a Budapesten általam épített, hosszú rezonátoros, erősen diszperzív tükrökkel diszperziókompenzált lézerben végrehajtottuk a következő kísérletet (Rácz et al., 2014). Először M5 és M6 helyére jó minőségű, 76 mm átmérőjű nagy reflexiójú $\lambda/4$ -es tükröket helyeztünk (gyártó: Optilab Kft.) és a Herriott-cella nyalábkörének átmérőjét 39, 48 és 61 mm-esre állítottuk be (ld. 5.15(b) ábra). Ekkor az 5.16(a) ábrán látható spektrumokkal működik a lézer, stabilan 580 és 600 mW közti

teljesítménnyel. A mért spektrumokhoz tartozó transzformációkorlátozott impulzushossz rendre 45, 46 és 48,5 fs, a lézerből kicsatolt, erősen fázismodulált impulzusok hossza (háttérmentes, intenzitás-autokorrelációval mérve) pedig stabilan 2,80 és 2,96 ps között van. (Itt rezonátoron kívüli impulzuskompressziót pl. az 5.8. ábra szerint bemutatott módon nem alkalmaztunk.)



5.16 ábra Hosszú rezonátoros oszcillátorból kicsatolt impulzusok spektruma (a,c) és az azokhoz tartozó háttérmentes intenzitás-autokorreláció (b,d) jó minőségű, 76 mm-es átmérőjű (a,b) és rosszabb, 101,6 mm-es átmérőjű (c,d) tükrök esetén (M5,M6 az 5.15 ábrán). A Herriott-cella nyalábjai által alkotott körök átmérői rendre ~38 mm (vörös pontozott vonalak), ~46 mm (kék szaggatott vonalak) illetve ~64 mm (fekete folytonos vonalak) voltak. A kísérletsorozat a 76 mm-es tükör (a,b) esetén homogén tükröfelületet, a 101,6 mm-es esetén (c,d) pedig jelentős inhomogenitást mutat. A spektrumok és autokorrelációs függvények további adatait a szövegben adom meg.

Ezután egy rosszabb minőségű 101,6 mm átmérőjű tükörrel próbálkoztunk, melyet szintén az Optilab Kft. bocsátott rendelkezésünkre. Az 5.16(c) és (d) ábrák tanúsága szerint ekkor már korántsem áll fenn a spektrum és az autokorreláció változatlansága. A „Herriott-kör” méretének 37, 44 és 67 mm-esre állításakor ugyan stabilan rendre 690, 710 és 690 mW-os oszcillátorteljesítményt kapunk, a spektrum azonban erősen torzul (69, 88 és 66 fs-os transzformációkorlátok, ld. 5.16(c) ábra). Ezzel együtt jár a kicsatolt fázismodulált impulzusok hosszának 2,3 és 3,7 ps között ingadozása (ld. 5.16(d) ábra). A tükör tehát a reflektivitás felületi homogenitásának szempontjából jónak minősíthető, a spektrális torzulás azonban diszperzió-inhomogenitásra enged következtetni. Ezt megerősítette az Optilab Kft. is, hiszen a

nagyméretű, 101,6 mm átmérőjű szubsztrát kihűlése során olyan mechanikai feszültségek keletkezhetnek a frissen előállított rétegekben, amik eredményezhetik a rétegrendszer diszperzív tulajdonságainak megváltozását.

A kísérletekkel tehát egy új, hatékony módszert mutattam be nagy átmérőjű tükrök teljes felületének érzékeny, rezonátoron belüli tesztelésére. A „Herriott-körök” gyakorlatilag tetszőlegesen növelhetők és pl. egy x-y-eltolóval kiegészítve a teljes tükröfelület letapogatható. Ez a módszer nagyméretű lézerrendszerek fejlesztésénél is egy gyakorlati, hatékony megoldást nyújt anélkül hogy teljes, több tíz cm-es átmérőjű hullámfrontokat kellene monitorozni. A vizsgálandó tükrök apertúrájának gyakorlatilag nincs felső határa, hiszen az M4-M6 nyaláb M6 tükrökhöz viszonyított szögének állításával a Herriott-kör tetszőlegesen nagy méretűvé tehető (ld. 5.15(b) ábra).

5.6 Összefoglalás, kitekintés

Az 5. fejezetben nemcsak azt mutattam be, hogy az elmúlt 10 évben végrehajtott fejlesztések során miként sikerült hosszú rezonátoros titán-zafír lézerek impulzusenergiáját 0,5 μJ közeli értékre növelni (Naumov et al., 2006), hanem az ilyen lézerekből kicsatolt impulzusok spektrális és időbeli transzformációját (időbeli összenyomását) is demonstráltam (Dombi et al., 2007; Fekete et al., 2013). Ennek során ún. nagy módusfelületű fotonikus kristály optikai szálakat használtam ki, melyekkel 70 fs-os, nagyenergiás (~200 nJ) oszcillátorimpulzusok egy egyszerű lépésben akár 15 fs-ra nyomhatók össze.

A hosszú rezonátoros lézerekben különösen is kritikus diszperziókompenzációs lépést egyetlen tükrrel oldottam meg (Dombi et al., 2009b), mely egyszerűbb oszcillátorarchitektúrát tett lehetővé, és a lézer stabilabb működését eredményezte. A fényforrás fejlesztése új, nemlineáris száloptikai kísérletek megvalósításához is elvezetett, melyek során a csörpkonverzió jelenségének kimutatásán túl egy új impulzuskompressziós tartományt is találtam (Dombi et al., 2014). Ezek a felfedezések a jövőben az optikai szálak impulzuskompresszorok hatékony teljesítményskálázását és egyszerű impulzusösszenyomást tesznek lehetővé.

Hosszú rezonátoros titán-zafír lézerek így ultragyors plazmonikai, spektroszkópiái, anyagmegmunkálási stb. kísérletek ideális fényforrásaivá váltak, és a Femtolasers GmbH saját termékként is forgalmaz ilyen típusú lézert a bemutatott kutatási eredmények hasznosításaként. 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. Az impulzuskompressziós eredményekhez, az ezen a téren született publikációkhoz kapcsolódva szintén 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.

Hosszú rezonátoros lézerek azonban nem csak korszerű femtoszekundumos fényforrásként hasznosíthatók. Felismertem és bebizonyítottam ugyanis, hogy az ilyen típusú lézeroszcillátorok tetszőlegesen nagyméretű optikai elemek teljes apertúrájának reflexió- és diszeprzióhomogenitásának érzékeny tesztelésére is felhasználhatók (Rác et al., 2014). Ezeknek a munkáknak a jelentőségét a tézispontokhoz felhasznált publikációk teljes hivatkozottságának mutatói is jelzik. A hosszú rezonátoros lézertípus időközben pedig már nemcsak titán-zafír kristállyal valósult meg, hanem alkalmazást talált itterbium-adalékolt ún. lemezlézerekben is („thin disk lasers”, ld. Marchese et al., 2008), melyek a lézertechnológiai és anyagmegmunkálási alkalmazások még szélesebb körét teszik elérhetővé.

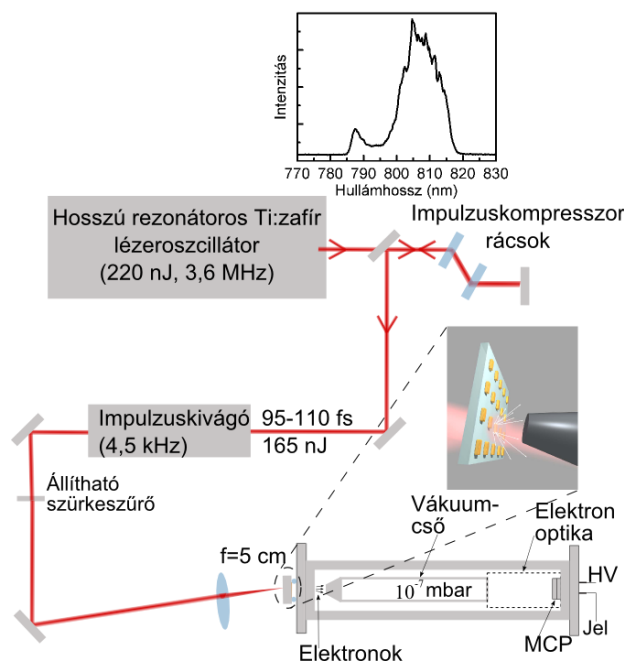
6 Ultragyors fotoemisszió plazmonikus nanorészecskékről

Az előző fejezetben bemutatott, Budapesten megépített hosszú rezonátoros titán-zafir oszcillátor nagy ismétlési frekvenciájának és nagy impulzusenergiájának köszönhetően jól használható plazmonikai alkalmazásokhoz. Ebben a fejezetben egy ilyen alkalmazást mutatok be, ahol fém nanorészecskékről elsőként vizsgáltam az ún. erős-tér fotoemissziót.

Ugyan 10-20 nm-es görbületi sugarú fém nanotűk és intenzív lézerfény kölcsönhatásának vizsgálata számos új felfedezéshez vezetett az elmúlt néhány évben (Bormann et al., 2010; Krüger et al., 2011; Piglosiewicz et al., 2014), plazmonikus nanorészecskék számos előnnyel rendelkeznek a (tipikusan nem-plazmonikus) nanotűkhöz képest. Míg nanotűk közelében a maximális térnövekmény 6-8-szoros, addig plazmonikus nanorészecskéknél akár több százszoros is lehet (Schuller et al., 2010), és a nanorészecskék geometriájával a tér nanoskálán formálható. Ez a kilépő elektronok spektrumának, trajektóriájának kontrollját is lehetővé teszi, amire a következőkben kísérleti példát is bemutatok. Az elvégzett kísérlet ezért egy olyan paradigmaváltást is előkészít, amelynek eredményeként egyszerű, kompakt lézeroszcillátorokkal, nagy ismétlési frekvencia mellett lehet erős-tér-kölcsönhatásokat indukálni a plazmonok inherens térerősítésének (térnövekménynek) optimális kihasználásával.

6.1 Kísérleti módszerek

A nanorészecskékről kiváltott ultragyors fotoemissziós elvégzéséhez, a megfelelő impulzusenergia eléréséhez a már bemutatott hosszú rezonátoros oszcillátort használtam, mely a kísérletek idején közvetlenül 220 nJ-os impulzusokat szolgáltatott 3,6 MHz ismétlési frekvencia mellett. Ebből egy rezonátoron kívüli transzmissziós rácsos impulzuskompresszor után stabilan 165 nJ impulzusenergia maradt 95-110 fs impulzushossz elérésével (ld. 6.1 ábra), 805 nm-es központi hullámhosszal. Mivel a használandó repülési idő elektronspektrométerben a 3,6 MHz-es ismétlési frekvencia az egymást követő impulzusokból származó kis- és nagyenergiás elektronok összekeveredését eredményezte volna, ezért egy elektrooptikai impulzuskivágóval 4,5 kHz-re csökkentettem az ismétlési frekvenciát. Ugyan 100 kHz körüli érték már elfogadható lett volna, a rendelkezésre álló eszköz kapcsolási sebessége maximálisan a megvalósított 4,5 kHz-es értéket tette lehetővé. Az impulzusenergiát állítható, vékony (2 mm-es) szűrkeszűrővel csökkentettem a kívánt értékekre, az impulzusokat pedig egy 5 cm-es fókusztávolságú akromáttal fókuszáltam a nanostrukturált mintára.



6.1 ábra Kísérleti elrendezés nanorészecskékről erős-tér fotoemisszió indukálására. ~100 fs-os lineárisan polarizált lézerimpulzusok világítják meg a mintát. A fotoemittált elektronokat egy repülési-idő-spektrométer méri. A felső panel a femtoszekundumos impulzus spektrumát mutatja 785 nm és 820 nm közötti spektrális komponensekkel. MCP: mikrocsonkás lemez, HV: nagyfeszültség.

A kísérleti koncepció központi eleme felületi plazmonikus nanostruktúrák kontrollált előállítása. Ehhez a Grazi Egyetem Fizikai Intézetében elektronnyaláb-litográfiás módszerrel kvarcüveg-lemezre plazmonikus nanorészecskék sorozatát írtam, melyeknek a távolsága elegendően nagy volt ahhoz, hogy a lézerfényvel keltett plazmonoszillációk közvetlenül elektromágnesesen ne csatolódjanak. A nanorészecske-mezők egyenként 0,01 mm²-es felületet foglaltak el, mely kb. 80.000 nanorészecskét tartalmazott. Így a viszonylag alacsony ismétlési frekvencia miatti alacsony jelszintet jelentősen meg lehetett növelni nagy számú nanorészecske kivilágításával. A nanorészecskék nem közvetlenül a kvarcüvegen, hanem az arra rétegzett indium-ón-oxid filmen helyezkednek el, így a fotoemissziós folyamat sem eredményez sztatikus feltöltődést.

A 6.1 ábrán bemutatottnak megfelelően a mintát tartalmazó üveglemezt egy repülési-idő-spektrométer vákuumablakaként helyeztem el úgy, hogy a nanostrukturált felület a vákuumoldalon található lefelé, a levegőoldal felől pedig a lézernyalábot fókuszáltam a mintára. Így közvetlenül meg tudtam határozni az intenzív lézerfény hatására kilépő elektronok spektrumát. A repülési-idő-spektrométer (Kaesdorf GmbH) 45 cm hosszúságú repülési csővel rendelkezik és a lézerintenzitástól függően 8.000 és 250.000 közti számú elektron regisztrálásával vettem fel egy-egy spektrumot. A spektrométer hossz tengelye a minta felületére merőleges, viszont a lézernyaláb kb.

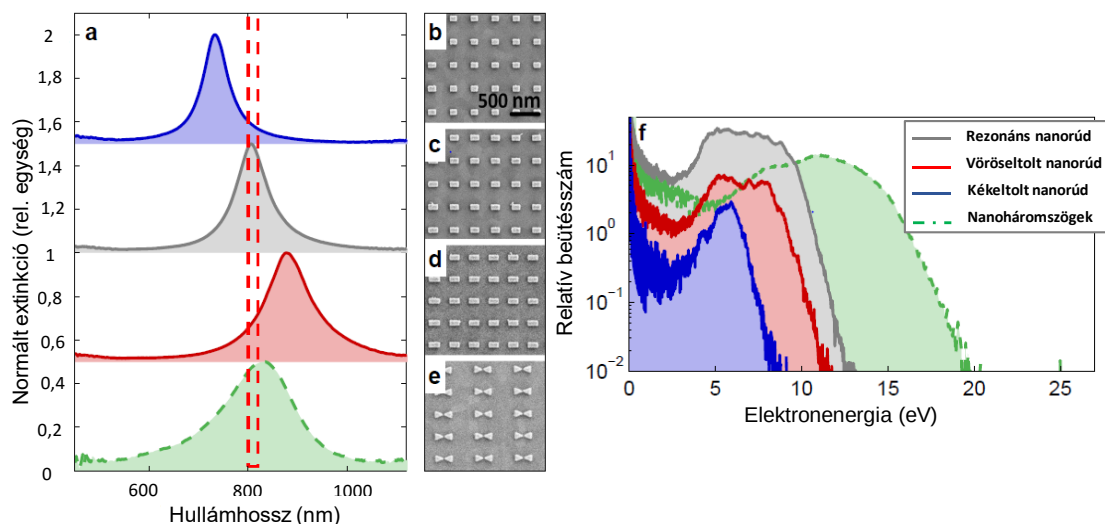
10°-os beesési szöggel esik a mintára azért, hogy ne világítsam ki közvetlenül a spektrométer mikrocsatornás lemez típusú detektorát (6.1 ábra).

Ugyan a begyűjtési hatásfokot nem ismertem pontosan, a kapott jelből származó nagyságrendi becslés alapján lövésenként és nanorészecskénként kb. egy elektron kibocsátását értem el.

6.2 Kísérleti eredmények

Annak bemutatásához, hogy a fotoemissziót a nanolokalizált plazmonter és nem a lézertér okozza, négy különböző típusú nanorészecskét készítettem el, ezek a 6.2 ábrán láthatók. Egyrészt a lézer 805 nm-es hullámhosszán plazmonrezonanciával rendelkező $152 \times 87 \times 40 \text{ nm}^3$ -es, téglatest alakú nanorudakat, valamint ehhez képest kék- illetve vöröseltolt plazmonrezonanciával rendelkező, rendre 732 és 877 nm-en rezonáns nanorudakat $120 \times 87 \times 40 \text{ nm}^3$ és $183 \times 87 \times 40 \text{ nm}^3$ méretben. Készítettem továbbá csatolt nanoháromszögeket is, melyek 40 nm vastagok, 90 nm szélesek és (együttesen) 260 nm hosszúak voltak 20 nm-es réssel a két háromszög között. Ez utóbbi nanorészecskék szintén 820 nm körüli rezonanciával rendelkeztek.

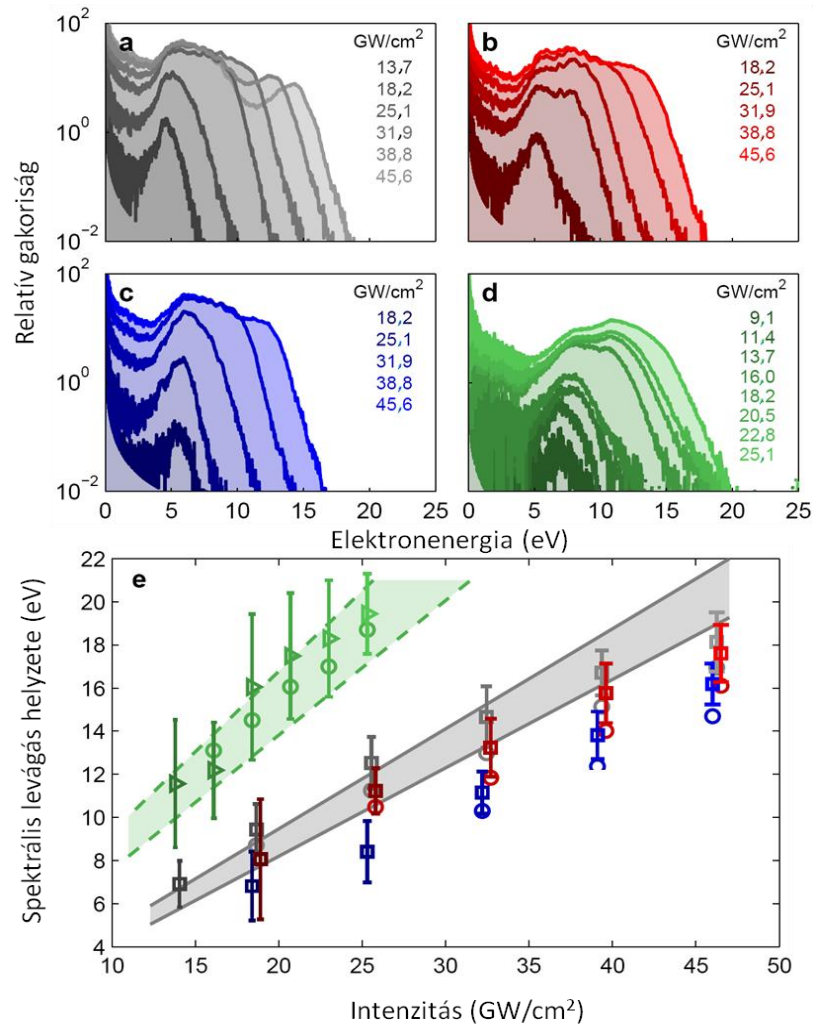
A 6.2 ábrán bemutatom a nanorészecskék optikai rezonanciaspektrumait is, melyeket egy mikroszkóp okulárján elhelyezett spektrométerrel mértem, a minta fehérfényű átvilágításával a nanostrukturált $0,01 \text{ mm}^2$ -es területen keresztül. Az így mért extinkciós görbék tartalmazzák a nanorészecskék által elnyelt (és plazmonoszillációt keltő) valamint az általuk szórt fény spektrális komponenseit is, és jól megfigyelhető rajtuk a plazmonrezonancia részecskemérettel történő hangolhatósága (Ziljstra és Orrit, 2011).



6.2 ábra (a) Optikai extinkciós spektrumok különböző típusú nanorészecskékből álló mezőkön mérve, melyek elektronmikroszkópos képe (b)-(e) ábrákon szerepel. (b) és kék görbék: $120 \times 87 \times 40 \text{ nm}^3$ -es, 732 nm-en rezonáns nanorudak, (c) és szürke görbék: $152 \times 87 \times 40 \text{ nm}^3$ -es, 805 nm-en rezonáns nanorudak (d) és vörös görbék: $183 \times 87 \times 40 \text{ nm}^3$ -es, 877 nm-en rezonáns nanorudak, (e) és zöld görbék: $260 \text{ nm} \times 90 \text{ nm} \times 40 \text{ nm}$ -es nanoháromszögpár 820 nm-es plazmonrezonanciával. (f) $25,1 \text{ GW/cm}^2$ -es lézerpulzus-csúcsintenzitás mellett mért plazmonos fotoelektron-spektrumok a különböző nanorészecsketípusokra.

A kísérlet érdemi részét a különböző nanorészecske-mezőkről mérhető elektronspektrumok meghatározása jelentette. A 6.2(f) ábrán ilyen spektrumokat mutatok be rezonáns illetve nemrezonáns nanorudakra valamint rezonáns, csatolt nanoháromszögekre $25,1 \text{ GW/cm}^2$ fókuszált lézerintenzitás mellett. Jól megfigyelhető, hogy az elektronspektrumok jól korrelálnak a plazmonrezonanciával, ami főleg a spektrumok levágásánál szembeötlő. Feltűnő, hogy azonos intenzitás mellett a nanoháromszögekről sokkal magasabb elektronenergiák mérhetők, ami az elektromágneses tér két háromszög közti 15-20 nm-es részbe történő koncentrálódásával magyarázható.

A legfontosabb tanulság tehát a következő: a fókuszált lézerintenzitáshoz tartozó 1,5 meV körüli ponderomotoros potenciál (1.1 egyenlet) és a spektrumok levágásainak 10-20 eV körüli értéke közti majdnem négy nagyságrendi különbség egyértelmű bizonyítéka annak, hogy az elektrongyorsítás nem a fókuszált lézerpulzus, hanem a felületi plazmonok elektromágneses terében megy végbe (pontosabban a kettő eredőjében, amiből az első tag elhanyagolható). Ezt a későbbiekben numerikus modellezési eredményekkel is alátámasztom.



6.3 ábra Kísérleti elektronspektrumok az intenzitás függvényében a 6.2 ábrán bemutatott (a) rezonáns nanorudakra, (b) vöröeltolt nanorudakra, (c) kékeltolt nanorudakra és (d) rezonáns nanoháromszögpárookra. (e) az elektronspektrumok levágási helye (az a pont, ahol a legnagyobb csúcs 3 %-ára csökken a beütésszám) a lézerintenzitás függvényében (a-d) színekkel jelölve (négyzetek és háromszögek). A kör alakú szimbólumok (e)-n a spektrális levágás (Zherebtsov et al., 2011) módszerével történő kiértékelését mutatják. Az egyenesek a 6.4 fejezet szerinti modellezési eredményeket mutatnak be.

Az észlelt elektronspektrumok létrejöttében meghatározó mechanizmusok azonosításához az egyes nanorészecske-mezőkön méréseket végeztem a fókuszált lézerintenzitás változtatásával is. Ennek eredményét mutatja be a 6.3 ábra. Amennyiben a különböző nanorészecskékről mért spektrumok levágási helyeit ábrázoljuk az intenzitás függvényében, a 6.3(e) ábrán látható sorozatokat kapjuk, a mérési pontok jól illeszkednek egy egyenesre, vagyis azt a következtetést vonhatjuk le, hogy a legnagyobb energiájú elektronok keletkezésében ponderomotoros skálatörvények játszanak jelentős szerepet. Ezen észlelés alapján ismét lehetőség van a

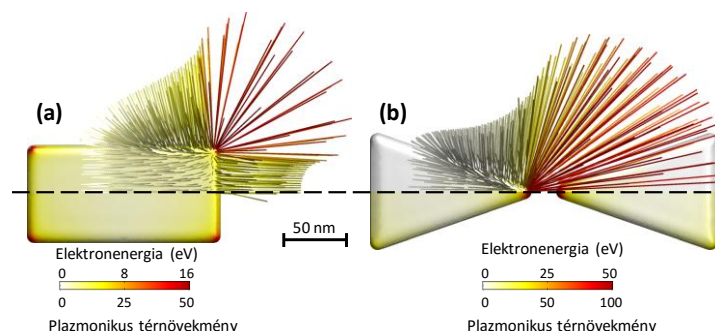
már bemutatott háromlépéses modell adaptálására, ezúttal plazmonikus nanorészecskék esetére.

6.3 Modell plazmonikus nanorészecskékről történő ultragyors fotoemisszióra

A 4.3 fejezetben bemutatott háromlépéses modell az itt bemutatott kísérletekre minimális módosítással alkalmazható. Az egyetlen különbség, hogy a nanorészecskék közelében létrejövő elektromágneses tér háromdimenziós eloszlásának meghatározásához más eljárást kell követnünk, az analitikus megközelítés itt csak bizonyos, szigorú megszorításokkal állja meg a helyét. Ez alapján két lehetőség nyílik. Amennyiben a nanorészecskék jól közelíthetők ellipszoidális alakkal, a nanorészecske körül monokromatikus optikai gerjesztés hatására létrejövő elektromágneses tér analitikus alakban is megadható (Stebbing et al., 2011), amennyiben a descarti helyett ellipszoidális koordináta-rendszerre térünk át. Ezeknek a zárt alakoknak az ismertetésétől jelen esetben eltekintek mivel a komplex, egzotikus koordinátatranszformációk ismertetése túlmutatna a dolgozat céljain. Ellipszoidális nanorészecskék rövid impulzusú gerjesztésre adott válasza diszkrét monokromatikus járulékok megfelelő amplitúdóval és fázissal vett eredőjéből származtatható.

Második lehetőségként adódik tetszőleges alakú nanorészecskék környezetében az elektromágneses tér numerikus meghatározása. Ehhez számos végeselem- vagy időbeli véges differenciákra alapuló módszer áll rendelkezésünkre, melyek felhasználóbarát programcsomagokként is könnyen elérhetők (Comsol, Lumerical stb.). Azonban annak érdekében, hogy a háromlépéses módszer trajektóriaszámolásai is megfelelően integráltan legyen kezelhető a modellezés során, ezért a grazi együttműködő partnereim által kifejlesztett határelem-módszeren alapuló numerikus megoldást választottuk a kísérlet leírására (Hohenester és Trügler, 2012). Miután a módszer segítségével tetszőleges méretű és geometriájú nanorészecskék körüli elektromágneses tér meghatározható, ezért tetszőleges, gyakorlatilag csak a processzoridőn múló finomságú hálón megkapjuk a térerősségértékeket, valamint a várt plazmonrezonanciagörbéket is meg tudjuk határozni.

Ezután a leírt módszer szerint tesztelektronokat helyezünk el a nanorészecske felületén, és kellő számú klasszikus elektrontrajektória meghatározása után megkapjuk az elektronspektrumokat. A teljes modellezési folyamatot a 6.4 ábra szemlélteti, melyen felületi színkóddal a lokális téramplitúdók, ugyancsak színkódolt görbékkel pedig az elektrontrajektóriák láthatók.

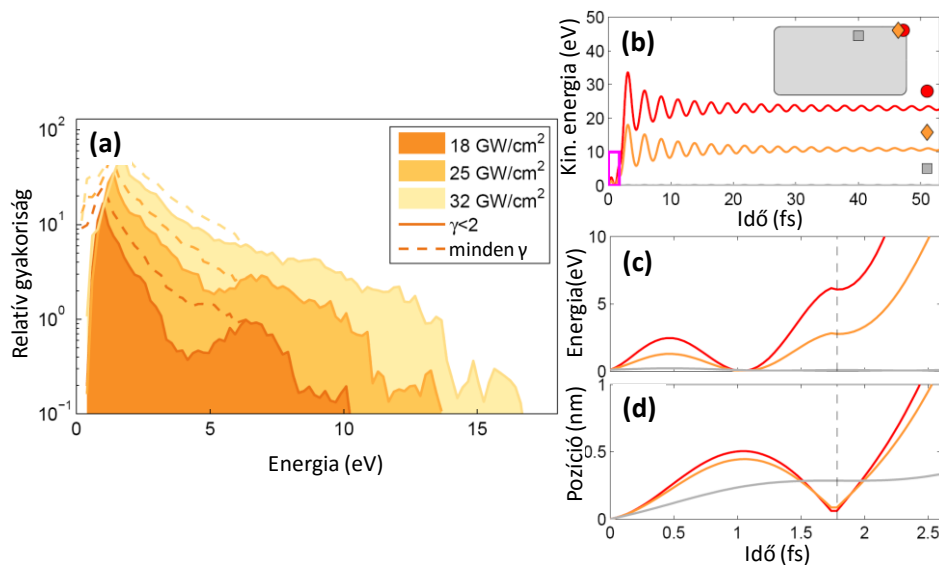


6.4 ábra Térerősség-amplitúdók felületi eloszlása és reprezentatív elektrontrajektóriák 1-1 kvandránson ábrázolva (a) plazmonosan rezonáns nanorúdra és (b) csatolt nanoháromszögekre 20 nm-es közzel. Mind az egyes trajektóriákhoz tartozó elektronenergia, mind a felületi térerősségmaximum színekódolva szerepel az ábrákon.

A geometria meghatározásánál figyelembe vettük azt a fontos tényt is, hogy a litográfias módszer véges felbontása miatt lekerekített élek és sarkok jellemzik az előállított nanorészecskéket. A megfelelő görbületi sugarakat és azok szórását a nanorészecske-mező elektronmikroszkópos képének kiértékelésével határoztam meg.

6.4 Szimulációs eredmények

Az így definiált modellel megkíséreltük reprodukálni a kísérleti eredményeket. Tipikus nanorészecske-formák a litográfias eljárás felbontásának, az élek véges görbületi sugarának figyelembevételével a 6.4 ábrán láthatók. Az ott bemutatott elektrontrajektóriák kiértékelésével kapjuk a 6.5 ábrán látható elektronspektrumokat különböző intenzitásértékekre, ahol a levágási helyek jól megfelelnek a kísérletileg mért értékeknek. A bemutatott eredményekhez plazmonosan rezonáns nanorudakat vettünk alapul. Az is látható, hogy a spektrum alacsonyabb energiás részeit csak akkor tudjuk jól reprodukálni, ha csak azokat az elektronokat vesszük figyelembe, amik a lokális Keldis-paraméter kettőnél 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 (Yudin és Ivanov, 2001) alulbecsüli az alagutazási típusú emissziós események számát és fémekre csak korlátozottan használható, ahogyan arra egy közelmúltbeli tanulmányban rá is mutattak (Yalunin et al., 2011). 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 alapján várnánk (Dombi et al., 2010; Bormann et al., 2010). Mivel azonban a többfotonos és alagutazási emissziós jelenségeket egyidejűleg máshogyan nem tudjuk figyelembe venni, ezért meghagytuk ezt a közelítést.



6.5 ábra (a) Modellezett elektronspektrumok plazmonosan rezonáns nanorudakra három különböző intenzitásértékre (szaggatott vonalak). Folytonos vonal jelöli a csak a Keldis-paraméter 2-nél alacsonyabb értékeinél (nagy térerősségeknél) kilépő elektronok figyelembevételével nyerhető spektrumokat. (b) Elektrontrajektóriák a nanorészecske különböző helyeiről kilépő, újraütköző elektronokra. A keret jelöli a kinagyított tartományt. (c), (d) Ugyanezen elektronok kinetikus energiája és felülettől vett távolsága időben a 0-2,5 fs-os tartományra kinagyítva.

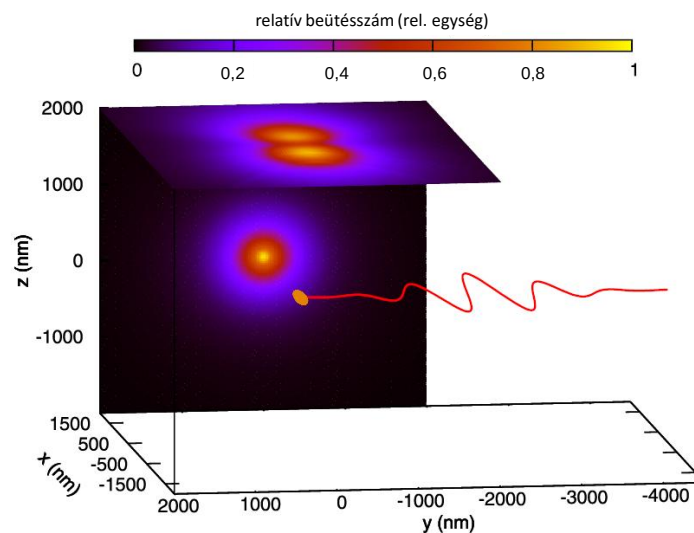
További fontos megállapítás, hogy a legnagyobb energiájú elektronok a felülettel újraütköző elektronok, amint azt a 6.5(c) és (d) ábrák mutatják. Ezenél a megfelelő fázisban emittált elektronoknál a nanolokalizált térben megtett oszcillációs félciklus után előnyös fázisban következik be a felülettel történő újbóli ütközés és bizonyos valószínűséggel létrejövő elasztikus szórás, amely után (amint azt a 6.5(c) és (d) ábrák mutatják) az elektron még nagyobb kinetikus energiára tud szert tenni, mint az ún. „közvetlen elektronok”. Ez a jelenség az atomfizikából már jól ismert analógia alapján várható is, hiszen küszöbfeletti ionizáció esetén szintén az atomon újrászóródó elektronok tudnak a legnagyobb kinetikus energiára szert tenni (Paulus et al., 2003). Ez az észlelés egy további alátámasztását jelenti a bemutatott modell érvényességének.

6.5 Kevés optikai ciklusú impulzusokkal meghajtott plazmonoszccillációk

A kísérletek alapján felmerül egy további kérdés is, nevezetesen, hogy amennyiben nem a bemutatott, viszonylag hosszú lézerimpulzusokkal indukálunk fotoemissziót nanorészecskékről, hanem kevés ciklusú impulzusok állnak rendelkezésre, milyen új jelenségek megjelenését várhatjuk. Lehetséges-e egyáltalán kevés ciklusú plazmonoszccillációk keltése és tudjuk-e irányítani az elektronokat közvetlenül a lézerimpulzus elektromos terével (vagyis a vivő-burkoló fázissal)?

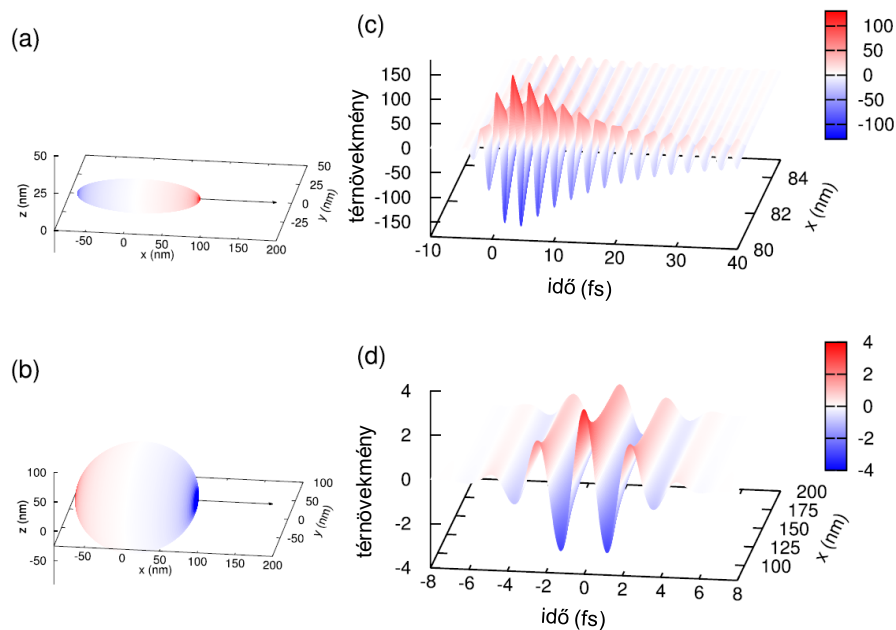
A kérdések megválaszolásához ezért először egy jól kezelhető modellrendszert definiáltam. A numerikus vizsgálatokhoz fényel gerjesztett arany nanoellipszoidok elektromágneses terének analitikus megoldását lehet felhasználni (Stebbing et al., 2011). Ez kombinálható a plazmonos fotoemisszió háromlépéses modelljével a 4.3 fejezetben bemutatottak szerint (Dombi et al., 2009a). Ebben a munkában a szerepem a vizsgálandó kérdések meghatározása, a modellezési módszerek definiálása, és az eredmények értelmezése volt, a nanoellipszoidok körül kialakuló tér analitikus felírását és a numerikus megvalósítást együttműködő kollégáim végezték el (Földi et al., 2015).

A probléma vizsgálatához tekintsük a 6.6 ábrán bemutatott geometriát, ahol egy ellipszoidális nanorészecskére a leghosszabb tengelyével párhuzamosan polarizált, ultrarövid lézerimpulzus esik a legrövidebb tengely irányából, amely lokalizált felületi plazmonoszillációt (LFP) kelt. A féltengelyhosszakat a -val, b -vel és c -vel jelöltem.



6.6 ábra Izolált nanorészecskéről kevés ciklusú lézerimpulzussal kiváltott fotoelektronok. A pirossal jelölt ultrarövid lézerimpulzus a narancssárga nanoellipszoidra esik, ahol plazmonoszillációt kelt. A kilépő fotoelektronok az erősen lokalizált plazmontérben gyorsulnak és az ábrázolt síkok mentén detektálhatók, ahol tipikus eloszlásokat is meg lehet figyelni.

A kölcsönható lézerimpulzus időalakját gaussianak feltételeztük 3,8 fs-os félértékszélességgel és 800 nm-es vivőhullámhosszal. Két különböző nanorészecskét vizsgáltunk, egyrészt $a = 80$ nm, $b = c = 10$ nm féltengelyhosszakkal, mely 800 nm-en plazmonrezonanciával bír, valamint egy nemrezonáns, 80 nm sugarú nanogömböt. A beeső lézerimpulzus választott maximális térerőssége rendre 1 GV/m ill. 10 GV/m volt, figyelembe véve a térnövekmény eltérő értékét a két esetben. Az így keltett, lokalizált plazmonoszillációkat a 6.7 ábra mutatja be.

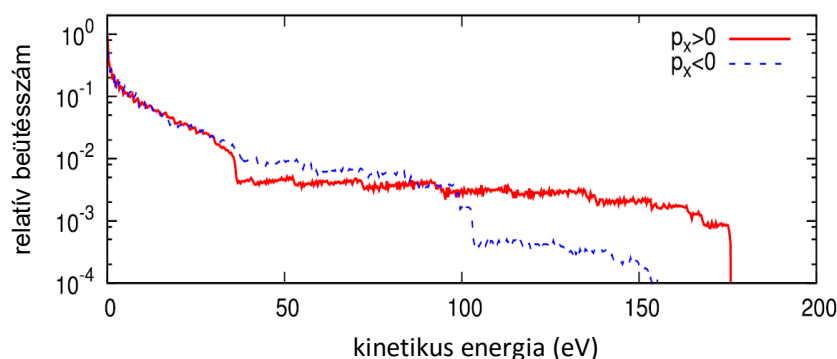


6.7 ábra (a) és (b) Pillanatfelvétel az LFP elektromos térerőssége normális komponensének eloszlásáról két nanorészecske esetén, rendre $a = 80$ nm, $b = c = 10$ nm ill. $a = b = c = 80$ nm féltengelyhosszakkal. (a) esetben a 800 nm-es lézerimpulzus rezonáns, míg (b) esetben nemrezonáns módon kelt lokalizált plazmonoszillációt, ezen túl az eltérő részecskealaknak nincs jelentősége. A fekete nyilak jelölik azt az x irányt, amely mentén a lokális térerősség időbeli lefutását a (c) és (d) ábrák bemutatják. A térnövekmény pillanatnyi értéke a fekete nyíllal jelölt egyenes mentén, a gerjesztő lézerimpulzus térerősségéhez viszonyítva, színekódolva szerepel mind a négy ábrán.

Megfigyelhető, hogy míg a rezonáns esetben időben elnyújtott plazmonoszilláció keletkezik, amely már egyáltalán nem hasonlít a plazmonoszillációt meghajtó impulzus kevés ciklusú természetére, addig nemrezonáns nanorészecske esetén elérhető kevés ciklusú lokalizált plazmonoszilláció akár négyszeres térnövekmény mellett is. A jelenség okaként egyértelműen a lézerimpulzus közel 200 nm széles spektrumának nanorészecske általi szűrése azonosítható, a plazmonrezonancia sáv szélessége ugyanis a lézer spektrumánál lényegesen keskenyebb, pl. a 6.2(a) ábra szerint is csak maximálisan 100 nm-es félértékszélességű. Így a plazmonoszillációba csatlódó spektrális komponensek korlátozottsága miatt rezonáns esetben nem várhatunk rövid plazmon-időalakokat. Nemrezonáns plazmonoszillációknál ez a szűrési effektus sokkal kevésbé jelentkezik, ami az elektromágneses energia egy újfajta, egyidejű tér- és időbeli koncentrációja felé nyitja meg az utat.

Okulva ezekből a tapasztalatokból, következő lépésként egy gömb alakú, nemrezonáns nanorészecskére vizsgáltuk meg a lézerimpulzus vivő-burkoló fázisának hatását a kibocsátott fotelektronokra. A 6.7(c) ábra alapján egyértelmű, hogy rezonáns nanorészecskék esetén nem várhatunk lényeges fázishatást, így ezekhez a

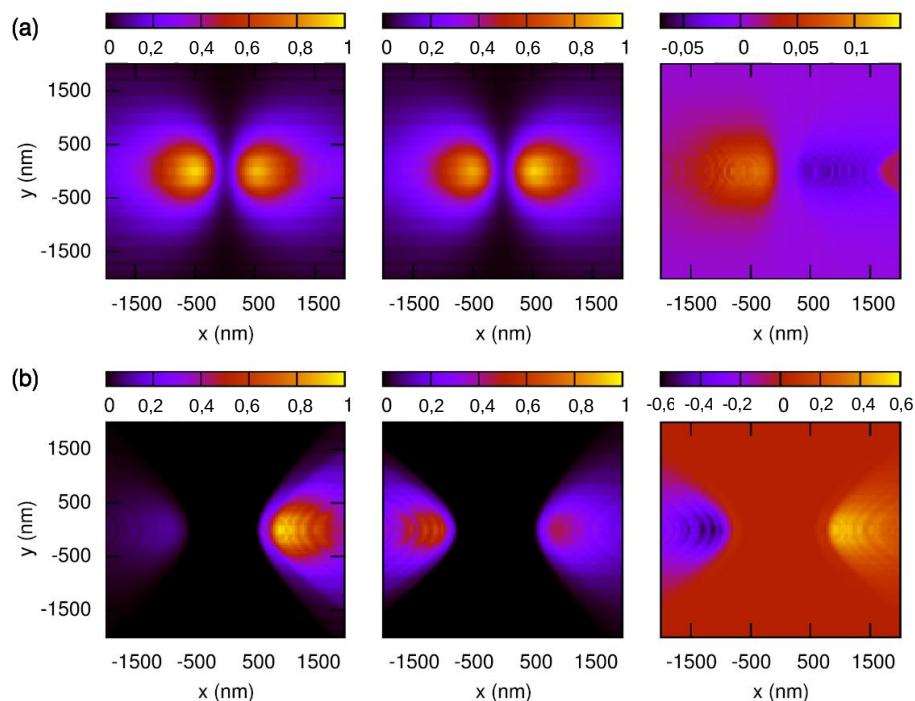
vizsgálatokhoz 80 nm sugarú nemrezonáns arany nanogömböket tekintettünk. Az ezekről az LFP-tér hatására fotoemittált elektronok tulajdonságait a már ismertett nemadiabatikus alagutazási képlettel (Yudin és Ivanov, 2001) határoztuk meg a háromlépéses modell segítségével (Dombi et al., 2009a). A különböző helyeken és időpillanatokban vett fotoemissziós ráta alapján rendeltünk megfelelő súlyokat tesztelektronokhoz, melyeket 20.000 felületi pont vizsgálatával nyertünk, 0,05 fs-os időbeli rácson. A 6.8 ábra két tipikus elektronspektrumot ábrázol 10 GV/m maximális lézerimpulzus-térerősség mellett, koszinuszimpulzusos gerjesztésnél, vagyis amikor a vivő-burkoló fázis értéke stabilan 0.



6.8 ábra 800 nm-es vivőhullámhosszal rendelkező koszinuszimpulzussal gerjesztett plazmonoszillációkból származó fotoelektronok spektruma 10 GV/m maximális lézertérerősség mellett 80 nm-es sugarú (nemrezonáns) nanogömbök esetén. A két görbe az x -irányban vett pozitív (vörös görbe) és negatív (kék görbe) végső impulzusvektor-komponensekkel rendelkező elektronok spektrumát mutatja, vagyis pl. a 6.7 ábrán egy „bal oldali” ill. „jobb oldali” ernyőn detektálhatókét.

Látható, hogy a lézerimpulzus hullámformájának lenyomata a lokalizált plazmonoszillációkon megtöri a jobb-bal szimmetriát, és a legnagyobb energiájú elektronokat preferenciálisan jobbra irányítja (a jobb-bal irányok értelmezéséhez ld. a 6.7 ábrát). Ez a hatás nyilvánvalóan csak akkor lehetséges, ha az elektronok mozgását meghatározó plazmonoszilláció is kevés ciklusú.

További numerikus modellezéssel a kibocsátott elektronok térbeli eloszlását is megvizsgáltuk. A 6.9 ábra az így nyert relatív beütésszámeloszlásokat mutatja egy olyan x - y -síkban elhelyezett fiktív ernyőn, melynek a vizsgált nanorészecskétől vett távolsága z -irányban 2000 nm a 6.6 ábra jelölései szerint. Látható, hogy a felső sorban ábrázolt összes elektronnál is már látszik egy enyhe bal-jobb aszimmetria és különbség a koszinusz- és szinuszipulzusos gerjesztés között, azonban ha a 100 eV feletti kinetikus energiájú elektronokat vizsgáljuk csak, akkor az észlelt különbségek nagyon markánsak válnak.



6.9 ábra Fotoelektronok irányítása kevésciklusú plazmonoszillációkkal. A 80 nm sugarú nemrezonáns arany nanögömbökről 10 GV/m maximális lézertérerősség mellett fotoemittált elektronok beütéseinek eloszlása egy, az x - y -síkban $z_0 = 2000$ nm távolságban elhelyezett ernyőn koszinuszimpulzusos (bal oldali ábrák) és szinuszipulzusos (középső ábrák) gerjesztésre. A jobb oldali ábrák a két gerjesztés közti különbségi térképet mutatják be. (a) Az összes kibocsátott elektronra vonatkozó térképek, (b) csak a nagyenergiás, 100 eV feletti kinetikus energiájú elektronokra vonatkozó térképek.

A jelenség magyarázatát az az ismert tény adja (Dombi et al., 2009a), hogy nagyenergiájú elektronok csak a lézerimpulzus (plazmonoszillációk) bizonyos fázisainál keletkeznek viszonylag szűk időablakokban. Ezért ezeknél az elektronoknál nem mindegy, hogy a fotoemisszió időpillanatában milyen volt éppen a mozgásukat később meghatározó elektromos tér fázisa, ez adja tulajdonképpen a vivő-burkoló fázisfüggést is a nagyenergiás elektronokra. Hosszú, sokciklusú plazmonoszillációknál ez a hatás értelemszerűen elmosódik.

A bemutatott esettanulmánnyal tudomásom szerint elsőként tudtunk rámutatni arra, hogy kevés optikai ciklusú impulzusokat szolgáltatató fényforrásokkal miként lehet kevésciklusú lokalizált plazmonoszillációkat kelteni anélkül, hogy a korlátozott plazmonbecsatolási sávszélesség miatt hosszabb, sokciklusos plazmonoszillációk jönnének létre. Megmutattuk azt is, hogy kevésciklusú plazmonoszillációk által keltett fotoemissziónak az optikai térrel (vivő-burkoló fázissal) történő kontrolljára praktikusán csak olyan lézerimpulzusok segítségével nyílik lehetőség, melyek legfeljebb 1-2 optikai ciklusnak megfelelő félértékszélességűek (Földi et al., 2015).

6.6 Összefoglalás

Az 5. fejezetben bemutatott lézerfejlesztések felhasználásával elsőként mutattam ki kísérletileg a plazmontér által indukált erős-tér fotoemisszió jelenségét fém nanorészecskék esetén (Dombi et al., 2013). 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 (Krausz és Stockman, 2014).

Az erős, nanolokalizált elektromágneses térben hatékony elektrongyorsítást is észleltem, és azt tapasztaltam, hogy a maximális elektronenergia a lokalizált felületi plazmont keltő lézertér intenzitásával lineárisan skálázódik (Dombi et al., 2013). Ezért a korábban már ismertetett modelleket kiterjesztettem 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, a nanorészecskék közvetlen környezetében lejátszódó elektrongyorsítási folyamatok határozzák meg (Dombi et al., 2013). A modell további adaptálásával pedig azt is 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 kontrolljára praktikusán csak egyciklusú lézerimpulzusokkal nyílik lehetőség (Földi et al., 2015).

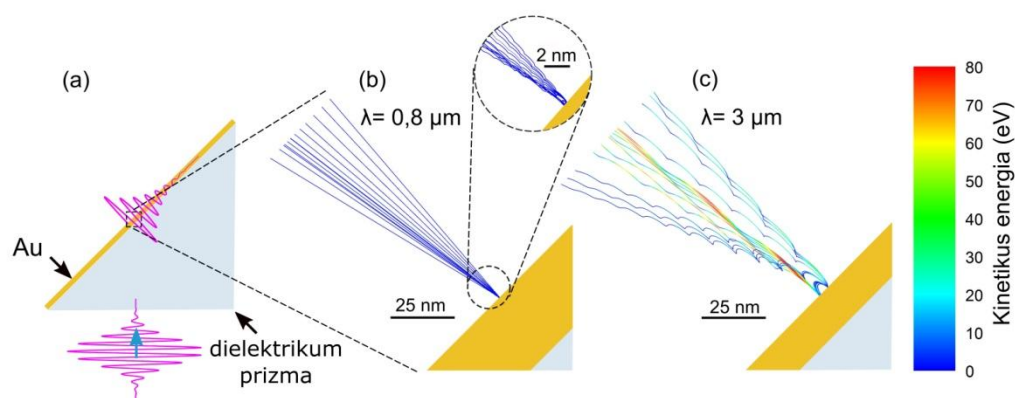
7 Ultragyors plazmonos fotoemisszió a közép-infravörösben

Mind haladó, mind lokalizált felületi plazmonok kapcsán kísérletekkel demonstráltam, hogy a plazmonos térnövekmény kiváló lehetőséget biztosít arra, hogy az ún. erős-tér-jelenségeket viszonylag alacsony fókuszált lézerintenzitás mellett lehessen kiváltani. A tapasztaltak szerint titán-zafír lézerekkel akár $40\text{--}60\text{ GW/cm}^2$ -es fókuszált intenzitás mellett el lehet érni fémfelületi alagutazást, amennyiben a plazmonos térnövekmény értéke a 20-30-as faktort eléri (Dombi et al., 2010). Ennek kapcsán felmerül a kérdés, hogy mi az a legalacsonyabb lézerintenzitás, amely mellett erős-tér jelenségeket és a hozzájuk kapcsolódó elektronkinetikát észlelhetjük.

Több alapvető fizikai jelenség is segít a lézerintenzitás csökkentésében. A Keldis-paraméter fordított arányossága a hullámhosszal az olyan források használata felé mutat, melyeknél a vivőfrekvencia minél kisebb, és akár a THz-es tartományba esik. A lézertechnológia jelen állása viszont azt mutatja, hogy még csak a közép-infravörös tartományban állnak rendelkezésre olyan femtoszekundumos fényforrások, amelyekkel kellően nagy fókuszált intenzitás érhető el. Az ilyen fényforrások fejlesztésében az elmúlt években jelentős előrelépések történtek (ld. Chalus et al., 2010 és hivatkozásai). A közép-infravörös lézerforrások jelenleg megfigyelhető rohamos fejlődése a titán-zafír lézerek kilencvenes évek eleji gyors elterjedéséhez fogható. Másrészt a plazmonos térnövekmény értékének hullámhosszal történő skálázása is előnyös, a közép-infravörösben a titán-zafír lézerekhez képest kb. 50 %-os növekedésre számíthatunk (Raether, 1988).

Ennek megfelelően a kísérleti koncepciót és a közép-infravörös gerjesztés előnyös tulajdonságait a 7.1 ábrán mutatom be, mely egy haladó plazmonhullám elektromágneses terében kialakuló reprezentatív elektrontrajektóriákat ábrázol 800 nm-es és $3\text{ }\mu\text{m}$ -es plazmongerjesztés mellett.

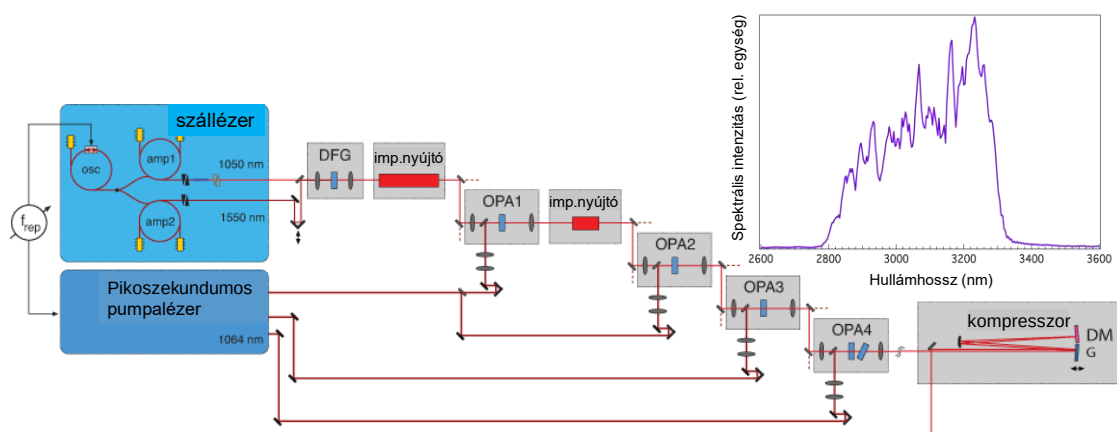
Kitűnik, hogy mind az oszcillációs amplitúdók, mind a kinetikus energiák szempontjából lényegesen kedvezőbb a közép-infravörös megvilágítás, hiszen a különbség nagyobb, mint egy nagyságrendnyi azonos csúcshintenzitás és (optikai ciklusokban mért) impulzushossz mellett. Ezért célul tűztem ki ennek a jelenségnek a kísérleti kimutatását.



7.1 ábra (a) Közép-infravörös megvilágítással elért erős-tér fotoemisszió és elektrongyorsítás koncepciójának bemutatása aranyfelületen kilenccsiklusú lézerimpulzusokkal keltett plazmonok segítségével. (b) 800 nm-es központi hullámhosszal, 4 GW/cm^2 csúcsintenzitással, 24 fs-os impulzushosszal megvilágított felület közelében kialakuló reprezentatív elektrontrajektóriák és (c) ugyanez $3 \mu\text{m}$ -es hullámhosszra, 4 GW/cm^2 csúcsintenzitásra és 90 fs-os impulzushosszra. A plazmonrezonancia eléréséhez szükséges rétegvastagság-különbséget is figyelembe vettem. Jól megfigyelhető a kinetikus energiákban és oszcillációs amplitúdókban a ponderomotoros skálázásnak megfelelően elért nagyságrendi különbség.

7.1 Kísérleti módszerek

A femtoszekundumos működéshez és erősítéshez alkalmas lézerek középinfravörös tartománybeli viszonylagos 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 kis impulzushosszakkal biztosítanak nagy ismétlési frekvenciájú, erősített impulzusokat. A kísérletekhez így egy korszerű, középinfravörös optikai parametrikus erősítőt használtunk a barcelonai Fotonikai Tudományok Intézetében (ICFO), mely $3,1 \mu\text{m}$ -es központi hullámhosszal 90 fs-os (9 optikai ciklusos) impulzusokat szolgáltatott 100 kHz-es ismétlési frekvenciával és $3,8 \mu\text{J}$ -os maximális impulzusenergiával (Chalus et al., 2010). A fázismodulált impulzuserősítés elvét kihasználó parametrikus fényforrás felépítését és spektrumát a 7.2 ábra mutatja be.



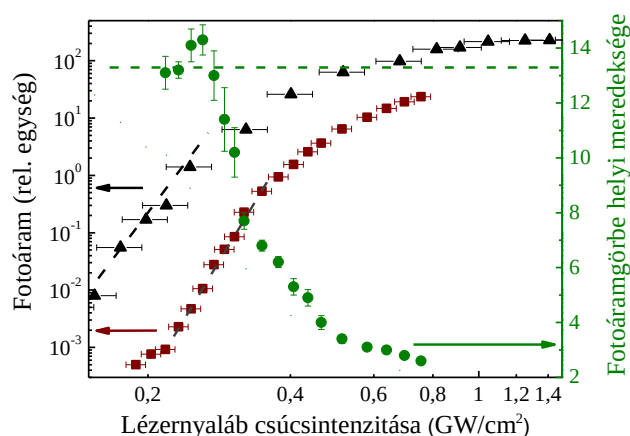
7.2 ábra Parametrikus erősítőrendszer felépítése a barcelonai Fotonikai Tudományok Intézetében (ICFO), mely $3,1\ \mu\text{m}$ -es központi hullámhosszal 90 fs-os (9 optikai ciklusos) impulzusokat szolgáltat 100 kHz-es ismétlési frekvenciával és $3,8\ \mu\text{J}$ -os maximális impulzusenergiával (Chalus et al., 2010).
 osc: szál-lézeroscillátor, amp: szál-lézererősítő, DFG: különbségfrekvenciakeltés, OPA: parametrikus erősítőfokozatok, DM: diszperzív tükör, G: rács. (Ábra forrása: Jens Biegerttől.)

Az impulzusokat a Kretschmann-Raether-becsatolásnak megfelelően egy 15 nm-es aranyréteggel bevont CaF_2 prizma fókuszáltam $870\ \mu\text{m}$ és $1400\ \mu\text{m}$ közti fókuszfoltméretekkel (intenzitás-félértékszélesség). A kísérletek során használt maximális csúcshintenzitás $5\ \text{GW}/\text{cm}^2$ volt, ennél még nem észleltem roncsolási jelenséget tartósabb használat esetén sem. A prizma egyúttal egy vákuumkamra ablakaként is szolgált, az aranyréteg a vákuumoldalon helyezkedett el hasonlóan a 4.1 ábrán bemutatotthoz. A vákuumoldalon egy Budapesten megépített ellenteres elektronspektrométerrel tudtam felvenni spektrumokat. A spektrométer detektoraként egy elektronsokszorozó (Hamamatsu, R595) szolgált. A jel telítésének az elkerüléséről a sokszorozó erősítésének megfelelő beállításával gondoskodtam. Az intenzitást a parametrikus erősítőrendszer utolsó fokozatának pumpálásával tudtam változtatni, ez a barcelonai kollégák mérései szerint nem befolyásolja az impulzusalakot. A plazmonkeltés tényét a beesési szög változtatása mellett a reflektált nyaláb eltűnése mutatta meg.

7.2 Kísérleti eredmények

A teljes plazmonos fotoáram intenzitásfüggését a 7.3 ábra mutatja be két különböző, tipikus mérési sorozatra. Az ábra szerint alacsony intenzitásoknál a fotoáram meredeken emelkedik az intenzitás 13. hatványával, ami a 0,4 eV-os fotonenergia és a polikristályos aranyfelület 5,1 eV-os kilépési munkája alapján várható is. Ez a viselkedés $0,6\ \text{GW}/\text{cm}^2$ fókuszált intenzitás mellett alapvetően megváltozik, a görbe lokális meredeksége letörik. Ez a többfotonos emissziós

tartományból az alagutazási tartományba történő átmenet egyértelmű jele (Dombi et al., 2010; Bormann et al., 2010, Farkas et al., 1993). Itt ez a jelenség minden korábbinál alacsonyabb intenzitás mellett következik be, amely a plazmonos térnövekmény nagy mértékére is utal.

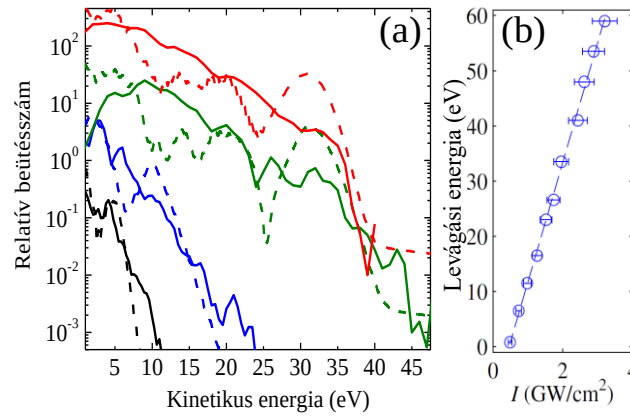


7.3 ábra A teljes fotoáram fókuszált lézerintenzitástól való függése két különböző, reprezentatív esetben. A fekete háromszögek 870 μm -es, a barna négyzetek 1,4 mm-es fókuszfoltméret melletti méréseket ábrázolnak, a láthatóság érdekében egymáshoz képest az y-tengely mentén eltolva. A görbék kezdeti szakaszaira illesztett egyenesek meredekségei rendre $12,3 \pm 1,8$ illetve $13,1 \pm 0,6$. A második görbe lokális meredekségét zölddel tüntettem fel (jobb oldali tengely), melyen a többfotonos és az alagutazás közti átmenet fokozatossága szintén jól látható.

A térnövekmény értékének megállapításához különböző lézerintenzitások mellett teljes elektronspektrumokat is felvettem, és kiértékeltem a levágási pontokat a 7.4(a) ábra szerint. Annak ellenére, hogy ezeknél az intenzitásoknál az elektron ponderomotoros energiája mindössze 1,3 és 3,1 meV között mozog, a spektrumok nagyságrendekkel nagyobb, 47 eV-ig terjedő energiákat mutatnak.

A levágási pozícióra vonatkozóan egy független mérést is elvégeztünk, melynek során az ellenteret addig növeltük, amíg az elektronsokszorozó jele a zajszintet el nem érte. Ennek a mérésnek a 7.4(b) ábrán bemutatott eredményei, a lineáris skálázás megerősítik azt a tényt, hogy a legnagyobb energiájú elektronok a HFP-térben végbemenő, ponderomotoros jellegű gyorsítási folyamatból származnak. Mivel a fotoemissziós és az elektrongyorsítási folyamatok függetlenek egymástól, ezért függetlenül attól, hogy többfotonos emisszióról vagy alagutazásról van szó, a levágási energiák lineáris skálázását kaptuk. Ennek a megközelítésnek a teljes validálását Veisz László kollégám tértöltési szimulációi is megerősítették (ld. Teichmann et al., 2015, „Supplementary material”), melyeket itt terjedelmi okokból nem tudok bemutatni. Mindenesetre azt a tényt független számításokkal igazoltuk, hogy a mért elektronspektrumok tértöltési torzulását csak lövésenként két nagyságrenddel több,

százezer elektron kiváltása esetén várjuk. A kísérletek során a legmagasabb intenzitások mellett is lövésenként mindössze 3000 körüli elektront váltottunk ki.



7.4 ábra (a) Plazmonos fotoemissziós spektrumok 1,4 GW/cm²-es (fekete görbék), 1,7 GW/cm²-es (kék görbék), 2,8 GW/cm²-es (zöld görbék) és 3,5 GW/cm²-es (piros görbék) fókuszált csúcsintenzitás mellett az erős-tér fotoemissziós tartományban. A kiértékelt plazmonos térnövekmény 28 és 34 közötti ezekben az esetekben. Folytonos vonallal jelöltem a mért spektrumokat, a szaggatott vonalak a folyamat teljes kvantummechanikai modelljéből származtatott spektrumok. (b) A plazmontérben gyorsított elektronok spektrális levágása a fókuszált csúcsintenzitás függvényében. Egy adott intenzitásnál addig növeltem az ellenteret, amíg a fotoelektronsokszorozó jele a zajszintig csökkent, amely megegyezik azzal a jellel, amely prizmára eső nyaláb nélkül mérhető. A levágási energia intenzitással történő lineáris skálázása az elektrongyorsítási folyamat ponderomotoros jellegét támasztja alá. Mindegyik mérés során a fókuszfoltméret 870 μ m volt.

A levágási pozíciók mérése a maximális térnövekmény kísérleti meghatározását is lehetővé teszi a következő módon. Ismert, hogy a legnagyobb energiájú elektronok a felületen történő újraszóródás során keletkeznek (Dombi et al., 2013). Amennyiben a mind a fotoemissziós, mind az újraszóródási események az oszcilláló elektromágneses tér legkedvezőbb fázisában valósulnak meg, az elektron által nyert kinetikus energia a ponderomotoros potenciál tízszeresét éri el (Walker et al., 1996). Az elektronspektrumok levágási pontjainak meghatározásából tehát meghatározhatjuk a ponderomotoros potenciált, abból pedig a lokális térerősséget. Ez az analízis a plazmonos térnövekményre vonatkozóan 28 és 37 közti átlagértéket eredményez. Egy tökéletesen sík, 15 nm-es aranyfelület esetén a 3 μ m-es hullámhossz mellett 19-es térnövekményt várnánk (Raether, 1988). Az ennél magasabb mért értéket egyértelműen a minta felületi érdessége okozza.

Az eredmények elméleti alátámasztásához Marcelo Ciappina az erős tér-kölcsönhatás kvantummechanikai analízisét is elvégezte. A felhasznált elméleti modellt korábban sikeresen alkalmazták nanotűkről történő fotoemisszió modellezésére (Ciappina et al., 2012). A módszer az időfüggő Schrödinger-egyenlet

egydimenziós megoldásán alapul, egy aktív elektron részvételével egy megfelelő modellpotenciálban. A fémfelület közelítésére egy keskeny, néhány tízed nm széles potenciálgödröt vett változtatható szélességgel, megfelelő paraméterbeállításokkal. Ezen túlmenően a kilépő elektron tükröltéséből származó potenciátagot is figyelembe vette. Az elektron hullámfüggvényét a Crank-Nicolson módszerrel propagáltatta, majd energiaanalízis-módszerekkel az elektronspektrumokat is meghatározta (Ciappina et al., 2012). Az így kapott modellel próbálta reprodukálni a mért elektronspektrumokat, melynek során az egyetlen illesztési paraméter a térnövekmény értéke volt. A legjobban illeszkedő spektrumokat a 7.4(a) ábrán szaggatott vonallal mutatom be. Az ezekhez tartozó illesztett térnövekmények értéke 60 és 70 között volt, vagyis szisztematikusan magasabb, mint a kísérleti levágási energiákból meghatározott értékek. Az egyezés mégis kielégítőnek mondható figyelembe véve a modell közelítéseit, annak egydimenziós, egyelektronos természetét és azt, hogy a felületi plazmonter amplitúdóeloszlását a kvantummechanikai modellben egyáltalán nem vettük figyelembe.

7.3 Összefoglalás, kitekintés

Az eddigieket összefoglalva kimutattam, hogy nanoplazmonikus térnövekmény és közép-infravörös plazmongerjesztés együttes kihasználásával a fény-anyag-kölcsönhatás erős tér tartományát minden korábbinál alacsonyabb ($<1 \text{ GW/cm}^2$) fényintenzitás mellett lehet elérni. A fókuszált lézernyalábtól várt ponderomotoros energiaértékeket nagyságrendekkel meghaladó elektronenergiát plazmonos elektrongyorsítással értem el, amely a fém vékonyréteg közvetlen, nanométeres környezetében zajlott. Az elektronok kinetikus energiájának hullámhossz szerinti négyzetes skálázását kihasználva, lényegesen nagyobb energiájú elektronokat keltettem így, mint az ultragyors tudományban bevett titán-zafir lézerekkel, hiszen haladó felületi plazmont már 1 GW/cm^2 fókuszált lézerintenzitással keltve akár több tíz eV-os elektronokat is észleltem. A kapott eredményeket a folyamat egy kvantummechanikai modellje is megerősítette (Teichmann et al., 2015; Dombi 2016). A Keldis-paraméter hullámhosszal történő kedvező skálázása pedig további kiaknázandó lehetőséget jelent az erős-tér THz-es tudomány megteremtésének irányába.

Az elektronok kinetikus energiájának hullámhosszal történő további növelésének egyedül az oszcilláló mozgásuk kioltása szabhat határt - ennek a jelenségnek az okait nemrég tárták fel (Herink et al., 2012). Fontos megjegyezni, hogy a kutatások infravörös/THz-es irányba történő további kiterjesztése valószínűleg nem lesz lehetséges nanorészecskéken lokalizált felületi plazmonokkal, csak haladó plazmonhullámokkal. A nemesfémek dielektromos állandójának alacsony negatív értéke az infravörös tartományban nem teszi lehetővé, hogy hullámhossznál kisebb nanostruktúrákon lokalizált felületi plazmonoszcillációt keltsünk (szemben pl. a spektrum látható tartományával), következésképpen a kívánt térnövekményt

optimálisan haladó plazmonhullámmal lehet biztosítani, ez pedig további fontos aktualitást ad a bemutatott kísérleti koncepciónak.

A kísérleteim új kutatási irányt nyitottak az erős-tér kölcsönhatások alacsony lézerintenzitással, egyszerű lézeroszcillátorok segítségével történő indukálásának irányába is. A plazmonos térnövekmény az elektromágneses tér erős lokalizációjával párosítva nanoskálán véghezvitt kísérleteket is lehetővé tesz majd plazmonikus struktúrák közvetlen környezetében. Az ilyen nanoszerkezetek tervezésével, optimalizálásával és megvalósításával számos alkalmazásra nyílik majd lehetőség az extrém ultraibolya sugárzás előállításától a nanostrukturált fotokatódok fejlesztéséig.

8 Nanoméretű vákuumdióda megvalósítása

Láttuk, hogy elektronok ultragyors, az elektronikus eszközöket nagyságrendekkel meghaladó sebességű irányítására ultrarövid lézerimpulzusokat tudunk használni (ld. még (Krausz és Stockman, 2014)-et is). Femtoszekundumos impulzusok által indukált fotoemisszió például femtoszekundumos elektroncsomagokat hoz létre, melyek aztán ultragyors elektrondiffrakciós és elektronmikroszkópiai kísérleteket is lehetővé tettek (Zewail, 2006). Az alkalmazások szempontjából vonzó lehet az ilyen csomagokat elektronikus eszközökben is felhasználni. Ez a megközelítés, vagyis a szabad töltéshordozók felhasználása leginkább az elektroncsöves (vákuumcsöves) berendezéseket idézi vissza. Az elektroncsöves megoldásoknál az elektródák potenciálja biztosítja a vezérlést, és ez a termionikus emisszióval alkalmazott elv a lézerrel kiváltott elektronokra is alkalmazható.

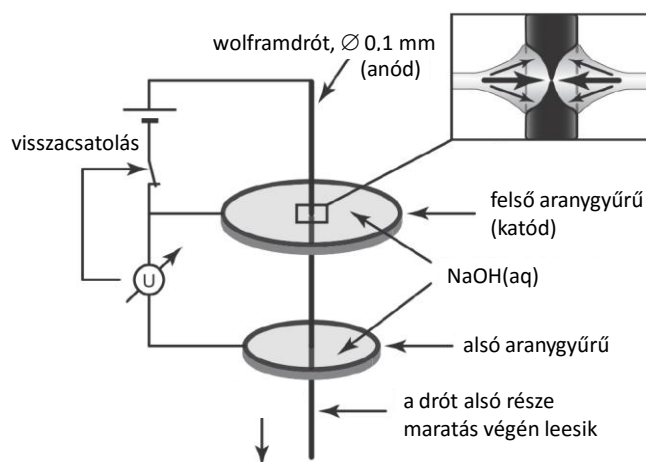
A termikus katód lézeresre cserélése azonban önmagában nem elég ultragyors eszközök megalkotásához. Ennek fő oka, hogy a csöves elektronika makroszkopikus (mm-cm) méretű eszközökre épít, ahol az eszköz sebességét az elektronok elektródák közti úthossza szabja meg. A lézeres fotoemisszió prompt természetét akkor használhatjuk ki, ha az eszköz méretét is drasztikusan csökkentjük. Ennek belátásához elég abba belegondolni, hogy egy 1 eV-os elektron sebessége $0,6 \mu\text{m/ps}$ vákuumban, vagyis az elektródák távolsága a szub-mikrométeres tartományba kell, hogy essen pl. THz-es kapcsolási sebességek eléréséhez.

Ebben a fejezetben egy olyan új, ultragyors elektronikus eszköz felépítését mutatom be, amely ultrarövid lézerimpulzusokkal megvilágított nanotűkből áll. A nanoméretű vákuumcső két, egymáshoz közel helyezett, szembefordított, katódként és anódként funkcionáló nanotűből áll. Az optikai közelterek erősségét a nanotűk görbületi sugarával beállíthatjuk, a térnövekmény ugyanis annál nagyobb, minél kisebb a tű hegyének görbületi sugara (Novotny és Hecht, 2012). A hegyesebb tűből így több elektront lehet kiváltani még akkor is, ha mindkét tű ugyanazon lézerfókuszon belül helyezkedik el. A hegyesebb tű így a katód szerepét, a tompább az elektronokat begyűjtő anód szerepét játssza.

Az erre az elvre építő kísérleti elrendezés felépítését meghatározó részben saját magam valósítottam meg, ennek elemeit mutatom be először. A nanoméretű vákuumdióda elvének demonstrálásához szükség volt szembe fordított nanotűk precíz relatív pozicionálására, amely elengedhetetlen a javasolt eszközt vizsgálatához. Ezért kifejlesztettem egy új túpozicionálási módszert (Higuchi et al., 2015), amelynek segítségével a nanodiódaműködést sikeresen kimutattuk. A nanotűk pozicionálásának ismertetése után ezért röviden a nanoméretű dióda alapvető tulajdonságairól is beszámolok.

8.1 Kísérleti berendezés

A kísérlethez szükséges nanotűket 0,1 mm átmérőjű wolframdrótból állítottam elő. Az előállítás elektrokémiai maratással történt nátrium-hidroxid oldatban a 8.1 ábrán bemutatott elrendezésben (Ibe et al., 1990). A polikristályos W-drótot két párhuzamos fémgyűrű között centráltnan kell befogni. A gyűrűket megfelelő NaOH-oldatba mártva hártya képződik. A felső gyűrű (katód) és a drót (anód) közé 6 V feszültséget kapcsolva a drót felületén vízben oldható wolframoxid képződik, melynek ionjai a drót mentén lefelé mozognak. Ezáltal az oldat felszínén OH^- -ionok vándorolnak az anód felé. A felület alatt azonban a süllyedő wolframoxid-ionok leárnýékolják a drótot és a maratási folyamatot gátolják. Ezáltal a 8.1 ábrán is bemutatott tipikus marási profil keletkezik. Néhány perc elteltével a drót alsó része a gravitáció hatására leszakad. A tű hegyének minél kisebb görbületi sugarához fontos még az anódfeszültség lekapcsolása rögtön, amint az alsó rész leválik. Ezt biztosítja a két gyűrű közti potenciálkülönbség mérése, amellyel a felső gyűrű áramkörét kellően gyorsan meg lehet szakítani.

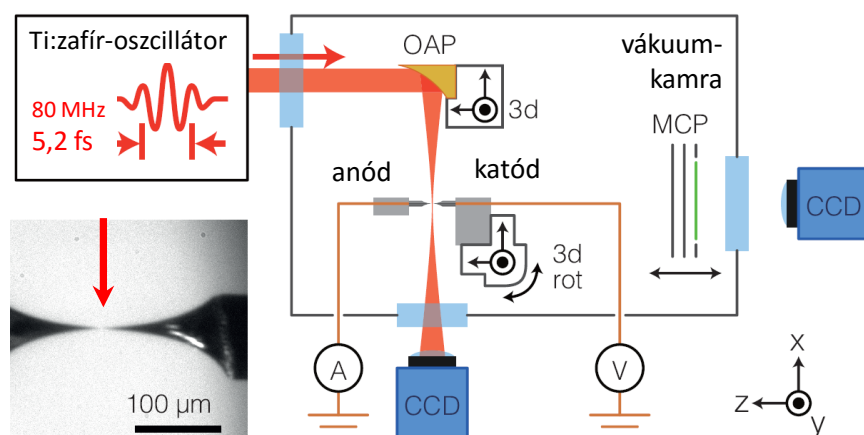


8.1 ábra Kísérleti elrendezés 5-20 nm-es görbületi sugarban végződő, hegyes wolfram nanotűk előállítására elektrokémiai maratással. Az eljárás részleteit ld. a szövegben.

A bemutatott módszerrel a tapasztalat szerint a berendezés megfelelő pozicionálásától függően 5-20 nm közötti görbületi sugarat lehet elérni polikristályos wolframtű csúcsában. Az így előállított nanotűk kúpos szegmensét optikai mikroszkóppal vizsgálva megállapítható, hogy melyeknél esik a kívánt tartományba a görbületi sugar. A tű tényleges hegyességét aztán a kísérletekhez is használt vákuumkamrában térionmikroszkópiai módszerrel ellenőriztem, melyet a vákuumkamra bemutatása során ismertetek.

A kísérleti vákuumkamrát egy meglévő, ultranagy vákuumot biztosító kamra átépítésével tettem alkalmassá a kísérletekre, ennek vázlata a 8.2 ábrán látható. A kamra központi eleme a két, egymással szembe fordított nanotű (anód és katód), melyeket a tengelyükre merőlegesen fókuszált lézerimpulzusokkal lehet kivilágítani. Ezeket 80 MHz ismétlési frekvenciával, 1,9 nJ impulzusenergiával és 5,2 fs

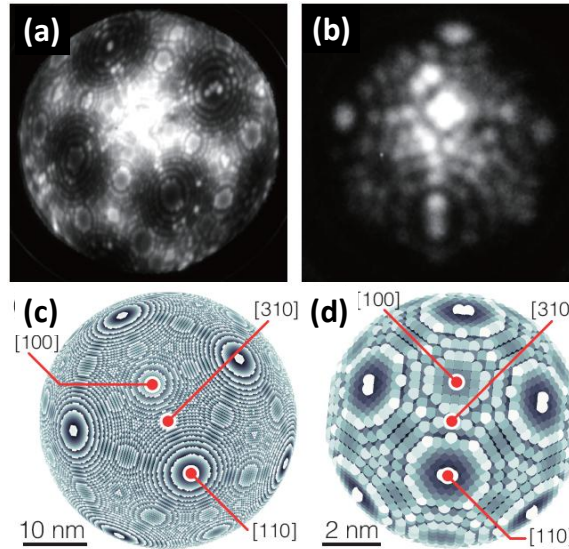
impulzushosszal egy vivő-burkoló fázisstabilizált titán-zafír lézeroscillátor biztosítja (Venteon GmbH).



8.2 ábra A kísérleti elrendezés (vákuumkamra) felépítése. OAP: off-axis parabolatükör, MCP: mikrocatornás lemezdetektor és CCD-kamerák. A fotó a szembefordított nanotűk (anód és katód) optikai mikroszkópos képét valamint a beérkező lézerimpulzus irányát mutatja.

Mind a parabolatükröt, mind az egyik nanotűt 3-dimenziós piezoelektromos pozicionálóra szereltem annak érdekében, hogy a nanotűk relatív és lézerfókuszhoz képesti pozicionálását is meg lehessen valósítani. A lézer fókuszoltjának $1/e^2$ sugara $2,3 \mu\text{m}$, a kísérlethez felhasznált impulzusenergia 250 pJ volt, melyből $5,6 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ -es csúcsintenzitás és $2,1 \text{ V/nm}$ -es maximális térerősség származtatható. Ezt a térerősséget azonban a tűk csúcsán előálló térnövekmény még egy jelentős 4-6-os faktorral megnöveli (Thomas et al., 2013). A kamrában egy turbomolekuláris szivattyú, egy iongetterszivattyú, valamint a kamra több órán keresztül, 105°C -os hőmérsékleten történő kályházásának segítségével 10^{-10} mbar körüli vákuumot tudtam elérni.

A tűk hegyének görbületi sugarát térionmikroszkópai módszerrel mértem (Müller, 1951). Ehhez mindkét tűt egy mikrocatornás lemezdetektor (MCP) felé lehet fordítani, a katód esetén a tű 180° -os forgatásával, az anód esetén a katód kihúzásával. A kamrát $5 \times 10^{-6} \text{ mbar}$ héliummal feltöltve és a türe $6\text{-}7 \text{ kV}$ feszültséget kapcsolva az MCP ernyőn megjelenik a tű csúcsának térionmikroszkópos képe. Az optimális leképezési feszültséget kb. $0,5 \text{ kV}$ -tal meghaladó feszültség alkalmazásával a tűről a wolfratomok kilöködnek, ezzel a tűt kontrolláltan tompábbá is lehet tenni, aminek a későbbiekben még jelentősége lesz. Két tipikus (tompább) anód- és (hegyesebb) katódtű térionmikroszkópos képét a 8.3 ábrán mutatom be.



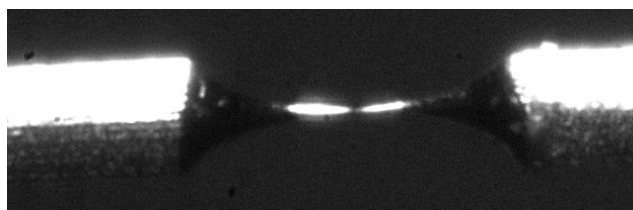
8.3 ábra (a) A tompább, $20,4 \pm 0,8$ nm-es görbületi sugarú nanotű illetve (b) a hegyesebb, $4,4 \pm 0,8$ nm-es görbületi sugarú nanotű térionmikroszkópos képe. A bcc rács gömbmodelljéből származó felületi térképek azonos görbületi sugarakra a (c) és (d) ábrákon láthatók, ahol a világos területek a gömbfelülethez képesti kiemelkedéseket, a sötétek a mélyedéseket jelölik.

A nanotűk in-situ karakterizálásának befejezése után azokat ismét szembe lehet fordítani egymással. A kamrából a He eltávolítása után a rendszer készen áll az érdemi kísérletekhez.

8.2 Nanotűk relatív pozicionálásának megvalósítása

A kísérletek kritikus eleme a nanotűk relatív pozicionálásának megvalósítása, melyre saját módszert fejlesztettem ki. A folyamat első lépéseként az anódtűt és a lézerfókuszhozom fedésbe az anódtű árnyékképének monitorozásával. Ezzel a módszerrel x -, y -, és z -irányokban is precízen lehet a lézerfókuszpozícionálni a 8.2 ábra jelöléseinek megfelelően. A lézernyaláb ezután ideiglenesen kitakarható.

A tűk közti áramot egy, az anódra kötött pikoampermérővel mérem. Ezt követően egy optikai mikroszkóppal figyelem a két nanotűt, mely az egész elrendezést a 8.2 ábra síkjára merőlegesen monitorozza (az ábrán a mikroszkóp nincs jelölve, a 8.2 ábra fotója viszont ezen mikroszkóp képének felvételével készült). A 8.4 ábra szerint a nanotűk így csak az optikai mikroszkóp felbontásának megfelelő precizitással pozicionálhatók, a fotó szerint nem állapítható már meg, hogy a tűk még szeparáltak vagy már érintkeznek-e, a labortapasztalat alapján viszont néhány μm -es tűtávolság így biztonságosan beállítható.

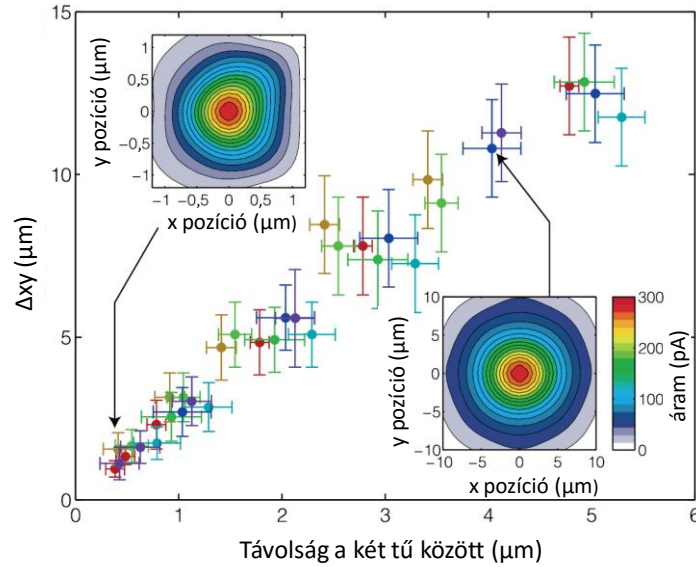


8.4 ábra Nanotűk optikai segédlettel történő közelítése mikroszkópkép alapján. A tűket az így elérhető lehető legkisebb távolságra állítottam, ahol még biztosan nem érintkeznek. A tű készítéséhez felhasznált wolframszál átmérője $100\ \mu\text{m}$.

Az optikai előpozicionálás után beállítom a katódfeszültséget úgy, hogy az anódon mérhető maximális áram kb. $300\ \text{pA}$ legyen, ez kb. $1\ \mu\text{m}$ tűtávolság mellett kb. $-200\ \text{V}$ -os katódfeszültséget jelent. A tapasztalat szerint ezt jelentősen túllépő katódfeszültség a tűk közti átütést eredményez, melynek során a nanotűk hegye megolvad, deformálódik és a tű végeredményben használhatatlanná válik, így ez a lépés különös gondosságot igényel.

A szub-mikronos pozicionálás megvalósításához a következő módszert dolgoztam ki. Adott tűtávolságnál és előfeszítésnél a katódtűt x - y -síkban laterálisan szkenneltem, mérve az áramot. (Az irányokhoz ld. a 8.2 ábrát.) A mért áramot a katódtű x - y -síkbeli pozíciójának függvényében ábrázolva szkennelési térképeket kaptam (8.5 ábra).

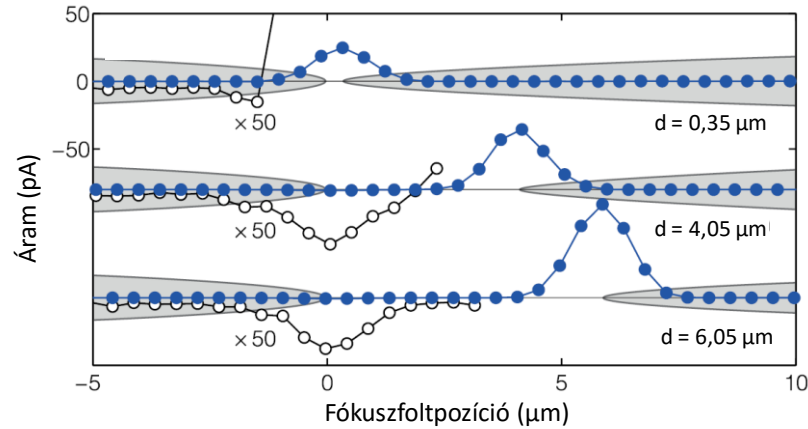
A szkennelési csúcs félértékszélessége nyilvánvalóan annál kisebb, minél közelebb találhatók egymáshoz a tűk. A 8.5 ábrán bemutatott mérések szerint a szkennelési csúcs félértékszélessége lineárisan változik a két tű távolságával, így az a tűk aktuális távolságának mérésére használható. Ezt a tényt numerikus szimulációk is megerősítették, a lineáris függéstől való eltérés csak kb. $30\ \text{nm}$ -nél kisebb tűtávolság esetén várható (Liehl, 2015).



8.5 ábra Nanotűk szub-mikronos közelítése szkenneléses módszerrel. A téremissziós áramtérkép központi csúcsának félértékszélessége (Δxy) két különböző, 0,35 μm -es illetve 4,05 μm -es tűtávolság mellett. A többszöri tűközelítést a különböző színű adatsorok és mérési pontok jelzik.

A bemutatott szkennelési módszer ugyan önmagában nem alkalmas az abszolút tűtávolság meghatározására, azonban egy közelítő előfeltevéssel ez a hátrány is kiküszöbölhető. Abból kiindulva, hogy a tűközelítésnél a tűtávolsággal lineárisan változik a szkennelési csúcs félértékszélessége és hogy az ábra y-tengelye abszolút egységekben adott (a piezoeltoló kalibrációja alapján), az ábra x-tengelye is abszolút egységekben skálázhatóvá válik azzal az előfeltevéssel, hogy a tűtávolsággal nullához tartva a szkennelési félértékszélesség is eltűnik. A fentiek alapján ez az előfeltevés 30 nm-nél nagyobb hibát nem okoz. Az x-tengelyt ezzel a módszerrel kalibrálva megállapítható, hogy a tűket a rendelkezésre álló kamrában (figyelembe véve az elhelyezésre szolgáló épület vibrációs tulajdonságait is) nagy biztonsággal kb. 320 ± 100 nm-es távolsáig lehet közelíteni. Ezt túllépve a mért áram instabillá válik, a tűk távolságában bizonytalanság lép fel, és további közelítéskor a két tű könnyen egymásba csúszik. A tűket tartó elrendezés nagyobb mértékű passzív stabilizálásával, a mechanikai és termikus zajok kiküszöbölésével azonban becslésem szerint 100 nm-es tűközelítés ezzel a módszerrel könnyen megvalósíthatóvá válik.

A közelített tűk karakterizálásának további lépéseként femtoszekundumos lézernyalábot fókuszálva a tűkre, mértük az anód és katód közti áramot. A nanotűk között nincs előfeszítés, a tűk tengelye egybeesik, a lézerfókuszolt sugara 2,3 μm . A közelített tű távolságának változtatásával a fókuszolt pozíciójának függvényében mért áramot mutatom be a 8.6 ábrán.

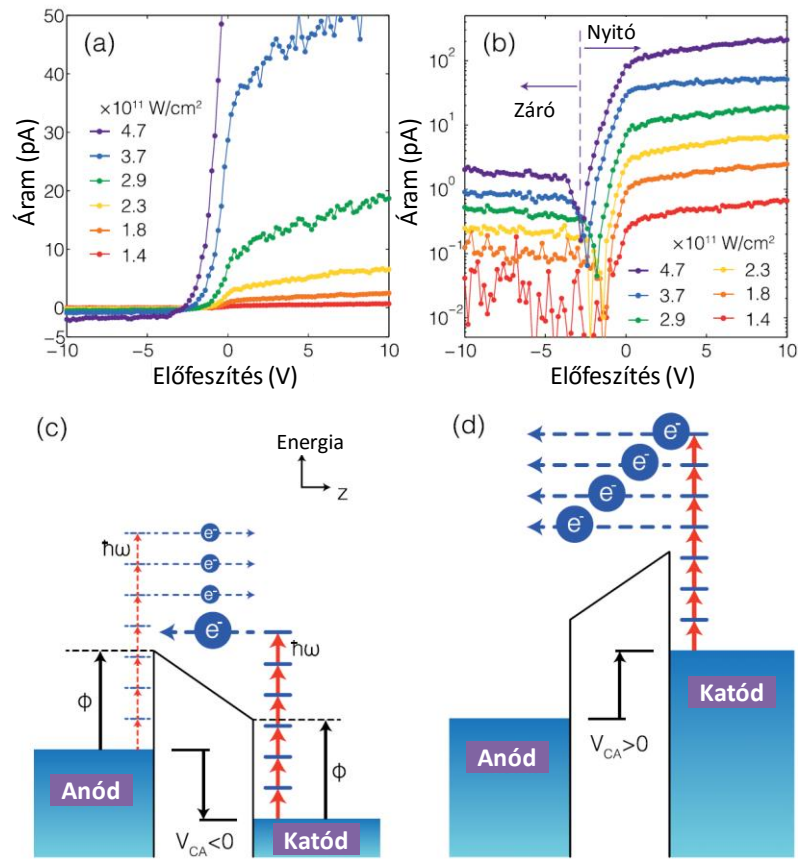


8.6 ábra Lézerindukált áram a két tű között a lézerfókusz pozíciójának függvényében (kék görbe). Ez a görbe három különböző tűtávolságra látható. Az egyes mérések egymáshoz képest eltolva szerepelnek a jobb láthatóság érdekében. Ugyanezen görbék 50-szeres nagyítása (fekete vonallal) az anódközeleli lefutást teszi láthatóvá. Az áram pozitív iránya az elektronok katódtól anód felé történő mozgásaként értendő. Az árnyékképek a tűk elhelyezkedését illusztrálják. A rögzített bal oldali nanotű az anód.

Az ábrán az figyelhető meg, hogy a katódtűről bekövetkező emisszió lényegesen nagyobb az anódtű megvilágításakor keletkezőnél. A wolfram (310) felületéről 4,35 eV a kilépési munka (Kawano, 2008). Mivel a fotonenergia 1,58 eV körül van, ezért a domináns emissziós csatorna 3- és 4-fotonos. A hegyesebb tű nagyobb térnövekménye miatt tehát sokkal nagyobb fotoáram keletkezik annál, amelyet a lineáris esetben várnánk, az észlelt kb. ötvenszeres különbségnek ez a magyarázata. A két tű 320-350 nm-re közelítésekor (ld. 8.6 ábra felső görbéje) a két profil egybeesik. Az várható, hogy egy ilyen tűpár diódaaként viselkedik, hiszen az elektronok főleg a katódból emittálódnak.

8.3 A nanoméretű vákuumdióda működése

A következőkben a teljesség kedvéért a nanotűk relatív pozicionálásának egy első, érdekes gyakorlati alkalmazását is röviden bemutatom, amelyhez a méréseket az általam kidolgozott pozicionálási módszerrel Takuya Higuchi kollégám végezte el (Higuchi et al., 2015). A 8.7 ábra egy lézerrel triggerelt nanotű-dióda karakterisztikáit mutatja a két tű közti előfeszítés (V_{CA}) függvényében. Megfigyelhető az előfeszítéstől való nemlineáris függés valamint az egyértelmű egyenirányító hatás. A nyitóirány telítési árama 210 pA ($4,7 \times 10^{11}$ W/cm² fókuszált, vagyis térnövekmény nélkül számolt lézer-csúcsintenzitás mellett). Mivel a femtoszekundumos oszcillátor ismétlési frekvenciája 80 MHz, ezért ez lézerimpulzusonként átlagosan 16 elektronnak felel meg. A záróirány telítési árama mindössze 2,0 pA, két nagyságrenddel kisebb, mint a fordított irányé.



8.7 ábra Lézerrel meghajtott nanoméretű vákuumdióda működése. (a) Az áram előfeszítéstől való függése lineáris skálán különböző impulzuscsúcsintenzitásoknál. (b) Ugyanez logaritmikus skálán. Itt az áram abszolútértékét láthatjuk. A szaggatott vonal a legnagyobb lézerintenzitás esetén szemlélteti az áram előjelváltásának pozícióját. (c) Az eszköz működésének sémája (c) záróirányú és (d) nyitóirányú áram indukálása esetén.

Az eszköz működését a 8.7(c) és (d) ábrák szemléltetik. Az elektronok többfotonos fotoemisszióval lépnek ki. Záróirányú előfeszítés esetén az elektródák közt mérhető áram lecsökken, mivel csak a potenciálgátnál nagyobb energiájú elektronok érik el az anódot. A mérhető gyenge áram az anód fotoemissziójából származik. Ezzel szemben a nyitóirányú előfeszítés az összes kilépő elektront eljuttatja az anódra.

Záróirány esetén csak a legnagyobb energiájú elektronok érik el az anódot. Ezek azok az elektronok, melyek a legkisebb kezdősebességgel és leghosszabb ideig tartó katód-anód-úttal járulnak hozzá a keltett áramhoz. 350 nm-es lemeztávolságú síkkondenzátort feltételezve, -2 V előfeszítés esetén az ilyen elektronok 800 fs alatt érik el az anódot. Mivel a fotoemissziós folyamat időtartama a lézerimpulzusével összemérhető (~5,2 fs), a teljes jelenség szub-pikoszekundumos időskálán lejátszódik. A nyitóirányban ráadásul az elektronok sebessége a sztatikus térrel növelhető, amit a kezdeti kinetikus energia nem korlátoz.

8.4 Összefoglalás, konklúziók

A fentieket összefoglalva, hatékony laboratóriumi módszert dolgoztam ki egymással szembe fordított nanotűk piezopozicionálókkal történő reprodukálható közelítésére, melynek segítségével megalapoztam egy nanoméretű vákuumdióda-elrendezés demonstrálását (Higuchi et al., 2015). A módszeremmel két nanotű reprodukálható, stabil, hullámhossz alatti közelítése valósítható meg. Ehhez 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 félértékszélessége egyértelmű, lineáris kapcsolatban áll a tűtávolsággal 100 nm alatti távolságokig. Így laterális irányban néhány tíz nm pontosságú, tengelyirányban pedig kb. 300 nm-es tűközelítést értem el (Higuchi et al., 2015), napi szinten megvalósítható módon. Azt várom, hogy ez utóbbi érték rezgésmentes épületben a vákuumkamra és a tűtartó elemek passzív, mechanikai stabilizálásával 100 nm alá csökkenthető.

A kifejlesztett módszer első alkalmazásaként két nanotű között ultragyors egyenirányító viselkedés figyelhető meg, amikor az elektronok kevés optikai ciklusú lézerpulzusok által okozott többfotonos fotoemisszióval főleg a katódtűből lépnek ki (Higuchi et al., 2015). A preferenciálisan a katódtűből keltett fotoemisszió a szembe fordított tűcsúcsok görbületi sugarának aszimmetrikussá tételével valósítható meg. Az erre a módszerre épülő kísérleti elrendezést (tkp. vákuumdiódát) femtoszekundumos lézerpulzusokkal meghajtva sikerült 1 ps alatti időtartammal áramot indukálni a két nanotű között, melyet a nanotűk fordított előfeszítésével meg lehet szüntetni (Higuchi et al., 2015).

A tűk távolságának további csökkentése további érdekes hatásokat eredményez: amikor ez a távolság a közeltér lecsengésével összemérhető, akkor a tűk már nem tekinthetők szeparált emittereknek és a térnövekmény is sokkal jelentősebbé válik (néhány tíz nm-es tűtávolságnál). Szub-nanométeres távolságnál pedig kvantumos alagutazási csatornák is felléphetnek a tűk között, melyeket a lézerpulzus elektromos tere közvetlenül is tud befolyásolni. Jobban közelített nanotűpárral pedig az így megvalósított diódaműködés akár attoszekundumos időskálán is végbemehet, ami PHz-es, optikai frekvenciákon üzemelő optikai kapcsolók építése előtt nyithatja meg az utat (ld. pl. Krausz és Stockman, 2014).

9 Impulzusösszenyomás időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükrökkel

Dolgozatom végén egy olyan lézerfizikai témát mutatok be, amelynek eredményeit közvetlenül ugyan nem használtam fel nanoskálán lokalizált elektromágneses terek előállítására, a jövőben, a kevés optikai ciklusú plazmonokkal végzendő kutatások során azonban ezt a lehetőséget is ki tudom majd aknázni. A természet jelenleg vizsgálható leggyorsabb folyamatainak láthatóvá tételéhez ugyanis elengedhetetlen olyan optikai impulzusok rendelkezésre állása, melyek minden korábbinál rövidebb időtartamúak. Magasrendű felharmonikusok keltésével ugyan lehetővé vált az attoszekundumos tartomány elérése (Ivanov és Krausz, 2009), ezek az impulzusok az elektromágneses spektrum egy olyan, köztes tartományába, az extrém ultrabolyába esnek, amely viszonylag nehezen használható ki akár (látható) spektroszkópiái, akár közvetlen (röntgenes) anyagszerkezeti vizsgálatokra. Ezért az attoszekundumos tudomány fejlődésével párhuzamosan, folyamatosan történnek kutatási erőfeszítések az optikai tartományban előállítható, minden korábbinál rövidebb lézerimpulzusok elérése érdekében, hiszen ezek a „hagyományos” időbontott optikai spektroszkópiái (és pl. plazmonikai) vizsgálatokat jelentősen előre tudnák mozdítani. Az utolsó tézispontban bemutatott eredményeim ebbe a máig aktívan művelt, lézerfizikai kutatási irányba illeszkednek.

A impulzuskompressziós kísérlet célja az volt, hogy bebizonyítsam, hogy egy újfajta optimalizációs eljárással készült fáziskorrigáló („csörpölt”) tükrök segítségével egy megfelelő, közel fehér femtoszekundumos fényforrásból jövő fény egy lépésben 5 fs alatti időtartamú impulzusokká konvertálható, vagyis a fehér fény keltése során torzult spektrális fázis a teljes sáv szélességben korrigálható. A tükröket egy egyedi és hatékony optimalizációs eljárással tervezték, melynek lényegét szintén bemutatom. A tükrök érdekessége, hogy a teljes, széles, 500-1150 nm közötti optimalizációs tartományban erősen oszcilláló fázisfüggvénnyel rendelkeznek, ennek ellenére sikerült bebizonyítanom, hogy a hatékony impulzuskompressziót ez nem akadályozza meg (Dombi et al., 2005). Az alábbiakban az ilyen újfajta, időtartományban optimalizált tükrök bemutatása után az impulzuskompressziós kísérletemet, annak következtetéseit és hatását ismertetem.

9.1 Az impulzuskompresszióhoz használt újfajta tükrök

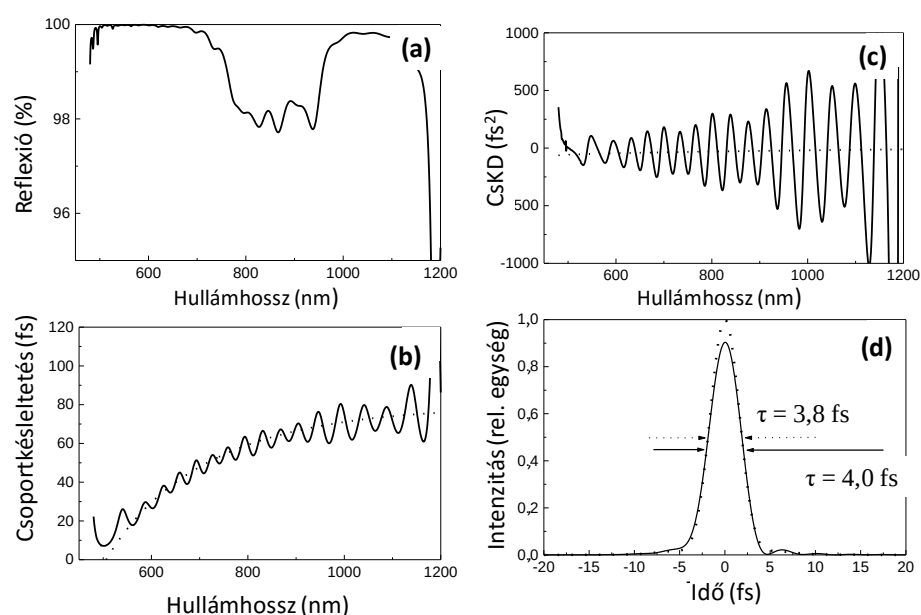
Fáziskorrigáló („csörpölt”) tükrök működési elve, hogy egy szélessávú lézerimpulzus különböző spektrális komponensei jól kontrollált módon, különböző mélységekbe hatolnak be egy dielektrikum-multirétegbe. Az ebből adódó spektrális fázistolás-függvény második deriváltja adja meg a lézerimpulzusra ható

tükördiszperziót. (Az első derivált csoportkéseletetést, vagyis csak a burkoló időbeli eltolását adja, az impulzusalakon nem változtat.) A fázisfüggvény körfrekvencia szerinti második deriváltját ezért hívják csoportkéseletetés-diszperzióknak (CsKD).

Az ilyen tükrök tervezése során az egyik legnagyobb kihívás annak elkerülése, hogy bizonyos hullámcsomagok rezonánsan csapdázódjanak a multirétegbe. Ha ez történik, akkor ugyanis a csoportkéseletetés (és értelemszerűen annak deriváltja) jelentős spektrális oszcillációkkal terhelt. Ennek elkerülését korábbi optimalizációs módszerekkel (Szipőcs és Köházi-Kis, 1997; Tempea et al., 1998) csak részben sikerült biztosítani, a levegő-tükrő határfelületről és a tükrőből jövő nyalábok közti káros interferencia azonban a sáv szélesség végső korlátozó tényezőjének bizonyult. Ugyan ezt a körülményt tömbi üveg felőli beeséssel enyhíteni lehet (Matuschek et al., 2000), például a tükrő felületére helyezett vékony, ékes lemezzel (Tempea et al., 2001), az ezekhez a megoldásokhoz kapcsolódó kontaktálási, csiszolási stb. technológia azonban nem jelent praktikus megoldást.

A tükrő tulajdonságainak frekvenciatartománybeli vizsgálata helyett azonban Gabriel Tempea kollégám időtartományban optimalizálta a tükrőket, és arra a következtetésre jutott, hogy bizonyos feltételek megléte esetén még a spektrális CsKD-görbe nagy oszcillációi sem kompromittálják a visszavert impulzusoknál elérhető időalakot. Ez a megállapítás két feltétel együttes megléte esetén érvényes: i) a spektrális CsKD-görbe simított, oszcillációktól megtisztított változata jól követi a tervezési célgörbét és ii) a CsKD-oszcillációk a frekvencia függvényében kváziperiodikusak és a periódusuk lényegesen kisebb, mint a lézerimpulzus spektrális szélessége. Ezekkel a feltételekkel, a szokásos tükrőoptimalizáló algoritmusok segítségével akár az optikai oktávnak megfelelő sáv szélességű, jól használható tükrők is tervezhetők, feltéve, ha optimalizációs célfüggvénynek a visszavert impulzus alakját állítjuk be.

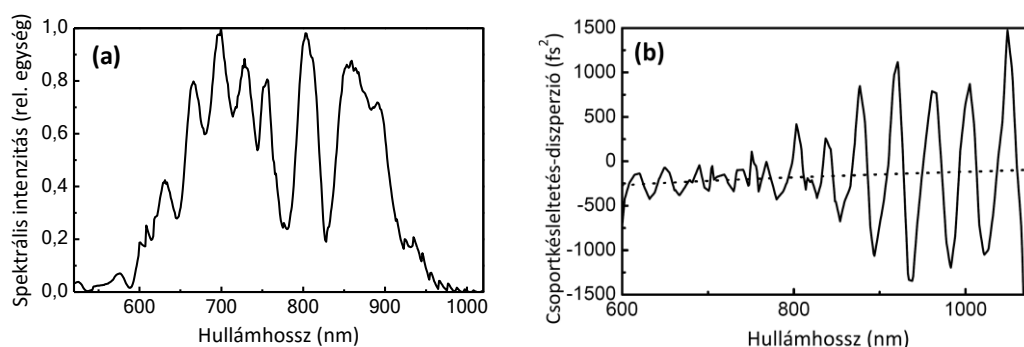
A 9.1 ábra egy ilyen módon optimalizált tükrő tervezési eredményét mutatja be, amelynek a feladata reflexiónként 0,83 mm-nyi kvarcüvegen való áthaladás diszperziókompenzálása. A spektrális csoportkéseletetés és CsKD-görbéken jól látszanak a jelen esetben megengedett, hatalmas spektrális oszcillációk, azonban fontos megjegyezni, hogy ezek a tervezési célgörbe körül történnek (ld. pontozott vonalak a 9.1 ábrán). Mivel egy tipikus kapillárisos impulzuskompresszor kimenetén kb. 2,5 mm-nyi kvarcüvegnek megfelelő diszperziót kell kompenzálni, így az várható, hogy a megtervezett tükrőről vett 3 reflexióval ez megoldható. A 9.1(d) ábra egy ilyen, szimulált esetet mutat be 800 nm központi hullámhosszal rendelkező, 4,0 fs-os impulzusok előállításához. Az eredetileg 3,8 fs-os, transzformációkorlátozott impulzusok először 2,5 mm kvarcüvegen haladnak át, majd ezt 3 tükrőreflexió kompenzálja, így kapjuk a 9.1(d) ábrán bemutatott, 4,0 fs-os időalakot. A tükrő nagy CsKD-oszcillációi mindössze kis mellékimpulzusok megjelenésében érhetők tetten, melyek az impulzus teljes energiájának csak kb. 4 %-át hordozzák. A következőkben bemutatom, hogy miként igazoltam kísérletileg is ezeket a következtetéseket.



9.1 ábra Időtartományban optimalizált, 80 db SiO_2 és TiO_2 rétegből álló fáziskorrigáló („csörpölt”) tükör tervezési görbéi. (a) A tükör reflexiója, (b) csoportkésleltetés, (c) csoportkésleltetés-diszperzió (CsKD). A (b) és (c) paneleken látható pontozott vonalak a tervezési célfüggvényeket jelölik. A (d) panelen a pontozott vonal egy 3,8 fs-os, transzformációkorlátozott impulzust mutat, a folytonos vonal pedig ugyanennek az impulzusnak az alakját miután 2,5 mm kvarcüvegen keresztülhalad és 3 tükörreflexió után újrakomprimálódik.

9.2 Extrém sáv szélességű impulzusok összenyomása és jellemzésük

Az időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükrök 5 fs alatti impulzushosszak előállítására való alkalmasságát a következő kísérlettel igazoltam. A Bécsi Műszaki Egyetemen egy többutas titán-zafír erősítóből nyert femtoszekundumos lézerimpulzusok spektrális kiszélesítésére rendelkezésre állt egy kaszkád-rendszerű, kétkapillárisos rendszer. Ebben az elrendezésben egy standard kapillárisból nyert 0,4 mJ-os, 10 fs-os impulzusok energiájának töredékét (70 μJ -t) egy második, 7 cm-es, 166 μm magátmérőjű, 2 bar Kr-gázzal töltött kapillárisba fókuszáltam. Az így keltett, közel 400 nm széles szuperkontinuum-spektrumot a 9.2(a) ábrán mutatom be. Az időtartományban optimalizált tükrök lehetőségeit ennek az extrém széles spektrumnak megfelelő, fázismodulált impulzusok összenyomásával demonstráltam. A 9.1 fejezetben bemutatottak szerint gyártott tükrök fehér fényű interferométerrel mért spektrális CsKD-görbéi a 9.2(b) ábrán láthatók, a mérési módszerhez ld. pl. Kovács et al., 1995.



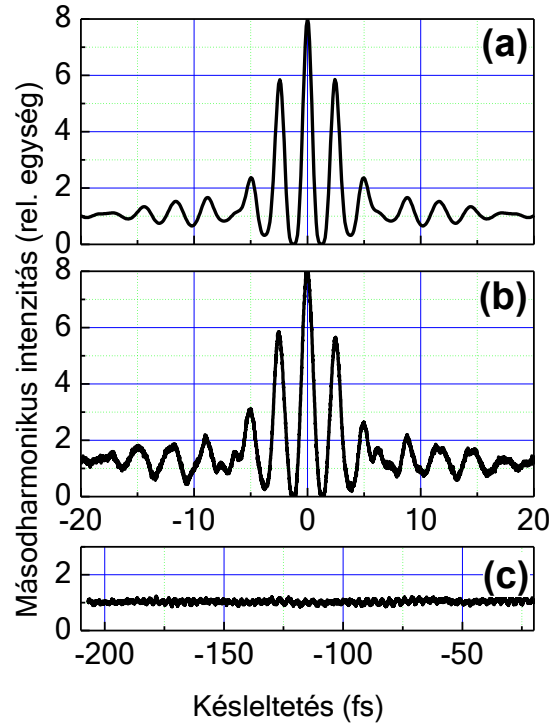
9.2 ábra (a) 10 fs-os, 50 μ J-os impulzusok spektruma 2 bar Kr-nal töltött kapillárisban történő nemlineáris terjedés során. Az ehhez a spektrumhoz tartozó transzformációkorlátozott impulzushossz 4,3 fs. (b) Az időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükrökre épülő impulzuskompresszor (6 tükröreflexió egyféle tükrőről) csoportkésleltetés-diszperziója (folytonos vonal) és egy ideális impulzuskompresszor CsKD-célfüggvénye (pontosított vonal), amely utóbbi a szélessávú szuperkontinuum spektrális fázisának felel meg.

A 9.2(b) ábrán bemutatott CsKD azonos tükrőről vett 6 reflexió összesített, 600-1100 nm között mért diszperziójának felel meg. Ugyan a tükröket Gabriel Tempea kollégám az 550-1150 nm-es tartományra tervezte, azonban az interferométer limitált sáv szélessége nem tette lehetővé a teljes karakterizálást. A CsKD az ideális, a szuperkontinuum spektrális fázisát kompenzáló impulzuskompresszor CsKD-célfüggvénye körül oszcillál, részben 1000 fs^2 körüli amplitúdóval. Azonban egy saját építésű, speciális, szélessávú autokorrelátorral sikerült bebizonyítanom, hogy ez az impulzuskompresszió minőségét gyakorlatilag semennyire sem kompromittálja, hiszen teljesülnek a 9.1 fejezetben bemutatott i) és ii) feltételek.

A mérést a következőképpen végeztem. A kapillárisból kijövő fehér fényt kollimáltam, majd két azonos, időtartományban optimalizált tükrőből álló tükrőpáron 3-3 reflexiót valósítottam meg. Az így nyert impulzusokat egy olyan speciális, általam épített autokorrelátorba irányítottam, amelyben a szélessávú impulzuskarakterizálást a következő megoldások biztosították. A Michelson-interferométer felépítésű autokorrelátor csak szélessávú ezüsttükröket tartalmazott a nyalábosztó kivételével, amely egy optikai bevonat nélküli, átlátszó, 20 μm vastag polimer hártya volt („pellicle”). Az interferométer kimenetét egy szintén ezüstbevonatú off-axis parabolatükrővel fókuszáltam egy 9 μm vastag β -bárium-borát (BBO) másodharmonikuseltő kristályra, az ilyen vékony kristály extrém nagy sáv szélességű fázisillesztést biztosít (Reider, 2005). Az alap- és a másodharmonikus jelet ezután szintén nagy sáv szélességet biztosító Fresnel-reflexióval és prizmával választottam szét, a másodharmonikus jelet az alacsony jelszint miatt egy fotoelektron-sokszorozóval (Hamamatsu, H5773) detektáltam.

Az így mért interferometrikus autokorrelációs függvényt mutatja a 9.3(b) ábra. Megfigyelhető, hogy ez a függvény egy feltűnően rövid impulzus autokorrelációja. Az összehasonlításához meghatároztam a mért spektrumhoz (9.2(a) ábra) tartozó

transzformációkorlátozott impulzushoz számolható autokorrelációt, ezt a 9.3(a) ábrán mutatom be. A feltűnő hasonlóság arra enged következtetni, hogy a kísérlet során nyert impulzushossz nagyon közel van a 4,3 fs-os transzformációkorláthoz, és mindenképpen 5 fs alatti.



9.3 ábra (a) Az impulzusok mért spektrumából származtatható, számolt, másodrendű interferometrikus autokorrelációs függvény, mely 4,3 fs-os transzformációkorlátozott impulzushoz tartozik. (b) Az időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükörrel összenyomott impulzus mért autokorrelációja. (c) Hosszú pásztázású autokorrelátorral mért autokorreláció a szövegben írtak szerint, melyből látható, hogy nincsenek mellékimpulzusok.

Ahhoz, hogy bebizonyítsam azt, hogy a megépített impulzuskompresszor tükrői nem okoznak elő- és utóimpulzusokat, egy standard, hosszú pásztázású autokorrelátorral is megmértem a kompresszor kimeneti impulzusait (Femtometer, Femtolasers GmbH). Mivel ebben egy 20 μm -es kristály kelti a másodharmonikus jelet, ezért a mérés dinamikus tartománya is jobb. Az eredményt a 9.3(c) ábrán mutatom be, melyen látszik, hogy a vizsgált tartományon nincsenek jelentős energiát hordozó mellékimpulzusok, az időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükrök ebből a szempontból is igen hatékonyak.

Az eredményeket összefoglalva megállapítható, hogy időtartományban optimalizált fáziskorrigáló tükrök különösen is alkalmasak mindössze 1-2 optikai ciklus rövidegű lézerimpulzusok előállítására a nagy sávszélességben elérhető

megfelelő diszeprziós tulajdonságaik miatt (Dombi et al., 2005). Kísérleti bizonyítást nyert, hogy a tükrök spektrális csoportképletetése nem kell, hogy a frekvencia függvényében alacsonyrendű polinom legyen. Nagy CsKD-oszcillációk bizonyos feltételek fennállása esetén jól tolerálhatók, és ez a tükrök oktávnál is szélesebb spektrális tartományban történő optimalizálását teszi lehetővé. Kísérletileg bizonyítottam be, hogy több száz fs^2 -es CsKD-oszcillációs amplitúdók is lehetővé teszik az 5 fs alatti időtartamra történő impulzusösszenyomást. Ennek a megoldásnak a továbbfejlesztése jelentősen hozzájárult kevés optikai ciklusú lézerimpulzusok stabil, széles körű előállításához. Így azt várom, hogy 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 (Krausz és Stockman, 2014; MacDonald et al., 2009).

10 Összefoglalás, hasznosulás, alkalmazási lehetőségek

Az itt bemutatott, néhol többfelé is ágazó kutatómunka egyes részeredményeinek hasznosulását tekintve fontos megemlíteni, hogy a 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.

További hasznosulás, hogy a budapesti fényforrásfejlesztésnek és a nanooptikai mérőeszközök és laboratórium kiépítésének köszönhetően az ezeket magukba foglaló infrastruktúrát „Wigner Femtoszekundumos Lézerlaboratórium (FEMTOLAB)” néven országos Stratégiai Kutatási Infrastruktúrának 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 vezetőjeként pedig Magyarországon elsőként „Max Planck Partnercsoport” státuszt nyertem el a német Max Planck Társaságtól 2014-ben.

Az egyedülálló, MHz-es ismétlési frekvenciájú titán-zafír lézeroszcillátorra alapozva egyedi lézeres tesztállomást építettünk femtoszekundumos optikai komponensek roncsolási küszöbének vizsgálatára (Nagy et al., 2015). Ennek köszönhetően az ilyen optikai elemek gyártásában vezető Layertec GmbH a budapesti laboratóriumban vizsgálhatja be újonnan fejlesztett tükreit, így az ultragyors tükrök technológiájának előreviteléhez is hozzájárulunk.

Az itt bemutatott eredmények abban a tágabban vett értelemben is hasznosultak, hogy az elmúlt években több áttekintő cikk és könyvfejezet írására is felkértek (Dombi, 2016; Dombi és Elezzabi, 2015; Dombi, 2009).

Általánosságban véve, a jelen dolgozatban bemutatott kutatómunka fő célja a diffrakciós limit alatti térbeli tartományba lokalizált elektromágneses energia és különböző anyagi rendszerek kölcsönhatásának teljesebb megértése volt. Fény (illetve a fény által keltett felületi plazmonok) és elektronok nanométeres térbeli és femtoszekundumos időbeli skálán lezajló kölcsönhatásainak vizsgálata számos, önmagában is érdekes jelenség feltárását tette lehetővé kutatásaim során. A tézispontok szempontjából vett teljesség igénye nélkül ilyenek az elektronok felületi plazmonok nanométeres terében, akár keV-os energiáig történő gyorsítása (Dombi et

al., 2010), a mért elektronenergiák és a plazmonos térnövekmény közti egyértelmű kapcsolat megmutatása (Dombi et al., 2013), vagy éppen ultrarövid, kevés optikai ciklusból álló felületi plazmonoszciillációk (Földi et al., 2015) és hullámcsomagok előállítása (Dombi et al., 2010).

Az 1-3. illetve 5-6. tézispontokban bemutatott eredmények a felületi plazmonok erőstér-kölcsönhatásainak vizsgálatára irányulnak, ezért főleg alapkutatási természetűek. Az alkalmazások és a gyakorlati hasznosulás a kutatási láncolat végén jelenik majd meg, hiszen az alapkutatási kérdések megválaszolása már most is számos módszertani fejlesztést tett lehetővé a plazmonos térnövekmény kísérleti mérésének lehetőségétől kezdve felületi plazmon-hullámcsomagok időbeli karakterizálásáig. Fotoelektronoknak ezekre a célokra történő felhasználása több szempontból is újnak mondható és komplexebb elektronleképező-rendszerekkel (sebességtérkép-leképezés, elektronspektroszkópiai félgömbanalizátor) a plazmonos térnövekmény értékéről minden eddiginél pontosabb képet nyerhetünk majd a felület nanométeres környezetében (Thomas et al., 2013; Dombi et al., 2013).

Ezen a módszertani, diagnosztikai érdeklődésen azonban túlmutat az a törekvés, amely a kérdéses nanorendszereket olyan újfajta, integrált nanooptikai áramkörök megvalósítási platformjának tekinti, melyek a mikroelektronikus eszközök sebességét nagyságrendekkel meghaladó kapcsolási sebességeket tesznek majd lehetővé. Ez a kutatási irány az elmúlt években új lendületet kapott, a témában aktív konzorciumok szerveződnek és számos demonstrátort tudtunk megépíteni, mint például a nanoméretű, ultragyors vákuumdióda-elrendezést (Higuchi et al., 2015). Ehhez kapcsolódva több olyan kapcsolódó részfeladatot is sikerült megoldanunk, mint például kevés ciklusú lézerimpulzusok adiabatikus nanofókuszálását (Vogelsang et al., 2015), melyek a későbbiekben fontos építőkövei lesznek például egy nanoméretű optikai tranzisztor architektúrájának (MacDonald et al., 2009, Krausz és Stockman, 2014). Így azt várom, hogy a bemutatott eredmények konkrét nanooptikai eszközök megvalósítását már a közeljövőben megalapozzák.

11 Köszönetnyilvánítás

Az első és legfőbb köszönet családomat illeti az elmúlt években a munkámhoz nyújtott mindenfajta, szerető és megértő támogatásért.

A munka szakmai oldalával kapcsolatban szeretnék köszönetet mondani azoknak a mentoroknak, akiket részben szerzőtársaimnak is tudhatok: Krausz Ferenc, Kroó Norbert, Farkas Győző és Czitrovsky Aladár professzoroknak. Az ő támogatásuk, a velük folytatott diszkussziók nélkül nem jöhettek volna létre a dolgozat alapjául szolgáló kísérletek és publikációk. Ugyanez igaz az MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézet, majd később az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont igazgatóira, Kollár János, Buka Ágnes és Lévai Péter professzorokra. Kiemelt köszönet illeti Dr. Rácz Péter egykori doktoranduszhallgatómat és jelenlegi munkatársamat több, itt bemutatott eredmény születése során nyújtott fontos és megbízható támogatásáért. Köszönöm Koós Margit és Kamarás Katalin professzoroknak a dolgozat megírásához nyújtott értékes tanácsait.

Az elképzelések megvalósításában nagy segítséget nyújtottak az együttműködő kutatócsoportok azon vezetői és lelkes tagjai, akikkel szerencsém volt egy-egy kísérleti ötletet közösen kidolgozni, illetve akik kutatási infrastruktúrát bocsátottak rendelkezésemre: Jens Biegert, Joachim Krenn, Peter Hommelhoff, Andrius Baltuška és Abdul Elezzabi kutatócsoport-vezetők valamint csoportjaik számos korábbi és jelenlegi kutatója. Az összes, hozzájárulást nyújtó kolléga felsorolása helyett arra szeretnék rámutatni, hogy munkájuk elismerése a tézispontokhoz kapcsolódó publikációk társszerzőjeként is megjelenik. Néhányuk kimondottan fontos egyéni hozzájárulását pedig a dolgozat szövegében külön is kiemeltem. Mindannyiukat köszönet illeti a laboratóriumban vagy azon kívül nyújtott megbízható támogatásukért.

12 A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

(Dombi et al., 2005) **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).

(Dombi et al., 2007) **P. Dombi**, P. Antal, J. Fekete, R. Szipőcs, Z. Várallyay „Chirped-pulse supercontinuum generation with a long-cavity Ti:sapphire oscillator,” *Appl. Phys. B* **88**, 379 (2007).

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

(Dombi et al., 2009a) **P. Dombi**, P. Rácz, B. Bódi, „Surface plasmon-enhanced electron acceleration with few-cycle laser pulses,” *Laser and Particle Beams* **27**, 291-296 (2009).

(Dombi et al., 2009b) **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).

(Dombi et al., 2010) **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).

(Dombi et al., 2013) **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).

(Dombi et al., 2014) **P. Dombi**, P. Rácz, L. Veisz and P. Baum, „Conversion of chirp in fiber compression,” *Opt. Lett.* **39**, 2232-2235 (2014).

(Dombi, 2016) **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).

(Fekete et al., 2013) 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).

(Földi et al., 2015) 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).

(Higuchi et al., 2015) 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).

(Naumov et al., 2005) 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).

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

(Rácz et al., 2011) 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).

(Rácz et al., 2014) P. Rácz, B. J. Nagy, K. Ferencz, **P. Dombi**, „Intracavity Herriott-cell testbed for large-aperture femtosecond optics,” *Laser Phys. Lett.* **11**, 125805 (2014).

(Teichmann et al., 2015) 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).

13 Irodalomjegyzék

- (Agostini et al., 1968) P. Agostini, G. Barjot, J. Bonnal, G. Mainfray, C. Manus, J. Morellec, „Multiphoton ionization of hydrogen and rare gases,” *IEEE J. Quant. El.* **4**, 667-669 (1968).
- (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).
- (Apolonski et al., 2004) A. Apolonski, P. Dombi, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, T. Udem, C. Lemell, K. Torizuka, J. Burgdörfer, T. W. Hänsch, F. Krausz, „Observation of light-phase-sensitive photoemission from a metal,” *Phys. Rev. Lett.* **92**, 073902 (2004).
- (Atwater 2007) H. A. Atwater, „The Promise of Plasmonics,” *Scientific American* **296**, 56-63 (2007).
- (Atwater és Polman, 2010) H. A. Atwater, A. Polman, „Plasmonics for improved photovoltaic devices,” *Nature Mat.* **9**, 205-213 (2010).
- (Backus et al., 1998) S. Backus, C. G. Durfee, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, „High power ultrafast lasers,” *Rev. Sci. Instrum.* **69**, 1207-1223 (1998).
- (Baltuska et al., 2003) A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Haensch, F. Krausz, „Attosecond control of electronic processes by intense light fields,” *Nature* **421**, 611-615 (2003).
- (Berini, 2009) P. Berini, „Long-range surface plasmon polaritons,” *Adv. Opt. Phot.* **1**, 484-588 (2009).
- (Boot és Harvie, 1957) H. Boot, R. Harvie, „Charged Particles in a Non-uniform, Radio-frequency Field,” *Nature* **4596**, 1187 (1957).
- (Bormann et al., 2010) R. Bormann, M. Gulde, A. Weisman, S. V. Yalunin, C. Ropers, „Tip-Enhanced Strong-Field Photoemission,” *Phys. Rev. Lett.* **105**, 147601 (2010).
- (Brabec és Krausz, 1997) T. Brabec, F. Krausz, „Nonlinear Optical Pulse Propagation in the Single-Cycle Regime,” *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3282-3285 (1997).
- (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).
- (Cho et al., 2001) S. H. Cho, F. X. Kärtner, U. Morgner, E. P. Ippen, J. G. Fujimoto, „Generation of 90-nJ pulses with a 4-MHz repetition-rate Kerr-lens mode-locked Ti:Al₂O₃

laser operating with net positive and negative intracavity dispersion,” *Opt. Lett.* **26**, 560-562 (2001).

(Ciappina et al., 2012) M. F. Ciappina, J. A. Pérez-Hernández, T. Shaaran, J. Biegert, R. Quidant, M. Lewenstein, „Above-threshold ionization by few-cycle spatially inhomogeneous fields,” *Phys. Rev. A* **86**, 023413 (2012).

(Corkum, 1993) P. B. Corkum, „Plasma perspective of strong-field multiphoton ionization,” *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994-1997, (1993).

(Cundiff, 2002) S. T. Cundiff, „Phase stabilization of ultrashort optical pulses,” *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35**, R43-R59 (2002).

(Dombi et al., 2003) P. Dombi, A. Apolonski, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, Th. Udem, Ch. Lemell, J. Burgdörfer, T. W. Hänsch, F. Krausz, „Solid-state light phase detector” CLEO/QELS, Baltimore, Maryland, USA, „postdeadline” absztrakt QThPDA4 (2003).

(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).

(Dombi et al., 2006) P. Dombi, F. Krausz, G. Farkas, „Ultrafast dynamics and carrier-envelope phase sensitivity of multiphoton photoemission from metals,” *J. Mod. Opt.* **53**, 163 (2006).

(Dombi és Antal, 2007) P. Dombi, P. Antal, „Investigation of a 200-nJ chirped-pulse Ti:Sapphire oscillator for white light generation,” *Laser Phys. Lett.* **4**, 538-542 (2007).

(Dombi 2009) 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).

(Dombi és Elezzabi, 2015) 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).

(Dombi, 2016) 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).

(Dwayne Miller 2014) R. J. Dwayne Miller, „Femtosecond Crystallography with Ultrabright Electrons and X-rays: Capturing Chemistry in Action,” *Science* **343**, 1108-1116 (2014).

(Einstein, 1905) A. Einstein, „Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt,” *Ann. Phys.* **322**, 132-148 (1905).

(Ell et al., 2001) R. Ell, U. Morgner, F. X. Kärtner, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, M. J. Lederer, A. Boiko, B. Luther-Davies, „Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti: sapphire laser,” *Opt. Lett.* **26**, 373-375 (2001).

- (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).
- (Fann et al., 1991) W. S. Fann, R. Storz, and J. Bokor, „Observation of above-threshold multiphoton photoelectric emission from image-potential surface states,” *Phys. Rev. B* **44**, 10980 (1991).
- (Farkas és Tóth, 1991) G. Farkas, C. Tóth, „Energy spectrum of photoelectrons produced by picosecond laser-induced surface multiphoton photoeffect,” *Phys. Rev. A* **41**, 4123-4126 (1991).
- (Farkas et al., 1993) G. Farkas, C. Tóth, A. Kőházi-Kis, „Above-threshold multiphoton photoelectric effect of a gold surface,” *Opt. Eng.* **32**, 2476-2480 (1993).
- (Fernandez et al., 2004) A. Fernandez, T. Fuji, A. Poppe, A. Fürbach, F. Krausz, A. Apolonski, „Chirped-pulse oscillators: a route to high-power femtosecond pulses without external amplification,” *Opt. Lett.* **29**, 1366-1368 (2004).
- (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).
- (Fowler és Nordheim, 1928) R. H. Fowler, L. Nordheim, „Electron emission in intense electric fields,” *Proc. Royal Soc. London A* **119**, 173–181 (1928).
- (Girardeau-Montaut és Girardeau-Montaut, 1991) C. Girardeau-Montaut, J. P. Girardeau-Montaut, „Space-charge effect on the energy spectrum of photoelectrons produced by high-intensity, short-duration pulses on a metal,” *Phys. Rev. A* **44**, 1409-1411 (1991).
- (Gires és Tournois, 1964) F. Gires, P. Tournois, „Interferometre utilisable pour la compression d’impulsions lumineuses modulees en frequence,” *C. R. Acad. Sci. Paris* **258**, 6112 (1964)
- (Gotschy et al., 1996) W. Gotschy, K. Vonmetz, A. Leitner, F. R. Aussenegg, „Optical dichroism of lithographically designed silver nanoparticle films,” *Opt. Lett.* **21**, 1099-1101 (1996).
- (Haus 2000) H. Haus, „Mode-locking of lasers,” *IEEE J. Sel. Top. Quant. El.* **6**, 1173-1185 (2000).
- (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).
- (Herink et al., 2012) G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde, C. Ropers, „Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion,” *Nature* **483**, 190-193 (2012).
- (Herriott et al., 1964) D. Herriott, H. Kogelnik, and R. Kompfner, „Off-axis paths in spherical mirror interferometers,” *Appl. Opt.* **3**, 523–526 (1964).
- (Hertz 1887) H. Hertz, „Über den Einfluss des ultravioletten Lichtes auf die elektrische Entladung,” *Ann. Phys.* **267**, 983–1000 (1887).

- (Hobbs et al., 2014) R. G. Hobbs, Y. Yang, A. Fallahi, P. D. Keathley, E. De Leo, F. X. Kärtner, W. S. Graves, K. K. Berggren, „High-yield, ultrafast, surface plasmon-enhanced, Au nanorod optical field electron emitter arrays,” *ACS Nano* **8**, 11474-11482 (2014).
- (Hohenester és Trügler, 2012) U. Hohenester, A Trügler, „MNPBEM – A Matlab toolbox for the simulation of plasmonic nanoparticles,” *Comp. Phys. Comm.* **183**, 370-381 (2012).
- (Hommelhoff et al., 2006a) P. Hommelhoff, Y. Sortais, A. Aghajani-Talesh, M. A. Kasevich, „Field Emission Tip as a Nanometer Source of Free Electron Femtosecond Pulses,” *Phys. Rev. Lett.* **96**, 077401 (2006).
- (Hommelhoff et al., 2006b) P. Hommelhoff, C. Kealhofer, M. A. Kasevich, „Ultrafast Electron Pulses from a Tungsten Tip Triggered by Low-Power Femtosecond Laser Pulses,” *Phys. Rev. Lett.* **97**, 247402 (2006).
- (Ibe et al., 1990) J. P. Ibe, P. P. Bey, S. L. Brandow, R. A. Brizzolara, N. A. Burnham, D. P. DiLella, K. P. Lee, C. R. K. Marrian, R. J. Colton, „On the electrochemical etching of tips for scanning tunneling microscopy,” *J. Vac. Sci. Technol.* **8**, 3570-3575 (1990).
- (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).
- (Irvine és Elezzabi, 2006) S. E. Irvine, A. Y. Elezzabi, „Surface-plasmon-based electron acceleration,” *Phys. Rev. A* **73**, 013815 (2006).
- (Ivanov és Krausz, 2009) M. Y. Ivanov, F. Krausz, „Attosecond Physics,” *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163-234 (2009).
- (Kalashnikov et al., 2005) V. L. Kalashnikov, E. Podivilov, A. Chernykh, S. Naumov, A. Fernandez, R. Graf, A. Apolonski, „Approaching the microjoule frontier with femtosecond laser oscillators: theory and comparison with experiment,” *New J. Phys.* **7**, 217 (2005).
- (Kawano, 2008) H. Kawano, „Effective work functions for ionic and electronic emissions from mono-and polycrystalline surfaces,” *Prog. Surf. Sci.* **83**, 1-165 (2008).
- (Keldis 1965) L. V. Keldysh, „Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,” *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965).
- (Kim és Seidman, 2003) Y.-C. Kim, D. N. Seidman, „An electrochemical etching procedure for fabricating scanning tunneling microscopy and atom-probe field-ion microscopy tips,” *Metals Mater. Int.* **9**, 399–404 (2003).
- (Knight et al., 1998) J. C. Knight, T. A. Birks, R. F. Cregan, P. S. J. Russell, „Large mode area photonic crystal fibre,” *Electronics Lett.* **34**, 1347-1348 (1998).
- (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).
- (Kovács et al., 1995) A. P. Kovács, R. Szipöcs, K. Osvay, Z. Bor, „Group-delay measurement on laser mirrors by spectrally resolved white-light interferometry,” *Opt. Lett.* **20**, 788-790 (1995).

(Kowalewicz et al., 2003) A. M. Kowalewicz, A. Tucay Zare, F. X. Kärtner, J. G. Fujimoto, S. Dewald, U. Morgner, V. Scheuer, G. Angelow, „Generation of 150-nJ pulses from a multiple-pass cavity Kerr-lens mode-locked Ti:Al₂O₃ oscillator,” *Opt. Lett.* **28**, 1597-1599 (2003).

(Krausz és Stockman, 2014) F. Krausz, M. I. Stockman, „Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing,” *Nature Phot.* **8**, 205-213 (2014).

(Kroó et al., 1991) N. Kroó, J.-P. Thost, M. Völcker, W. Krieger, H. Walther, „Decay length of surface-plasmons determined with a tunneling microscope,” *Europhys. Lett.* **15**, 289 (1991).

(Kroó et al., 2008) N. Kroó, G. Farkas, P. Dombi, S. Varró, „Nonlinear processes induced by the enhanced, evanescent field of surface plasmons excited by femtosecond laser pulses,” *Opt. Express* **16**, 21656 (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).

(Kulander et al., 1993) K. C. Kulander, K. J. Schafer, J. L. Krause, „Dynamics of short-pulse excitation, ionization and harmonic conversion,” in: Proceedings of the Workshop on Super Intense Laser Atom Physics (SILAP III), B. Piraux (Ed.), Plenum, New York, pp. 95-110 (1993).

(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).

(Lal et al., 2007) S. Lal, S. Link, N. J. Halas, „Nano-optics from sensing to waveguiding. *Nature Photon.* **1**, 641-648 (2007).

(Leemans et al., 2014) W.P. Leemans, A.J. Gonsalves, H.-S. Mao, K. Nakamura, C. Benedetti, C. B. Schroeder, Cs. Tóth, J. Daniels, D. E. Mittelberger, S. S. Bulanov, J.-L. Vay, C. G. R. Geddes, E. Esarey, „Multi-GeV Electron Beams from Capillary-Discharge-Guided Subpetawatt Laser Pulses in the Self-Trapping Regime,” *Phys. Rev. Lett.* **113**, 245002 (2014).

(Lemell et al., 2003) C. Lemell, X.-M. Tong, F. Krausz, J. Burgdörfer, „Electron Emission from Metal Surfaces by Ultrashort Pulses: Determination of the Carrier-Envelope Phase,” *Phys. Rev. Lett.* **90**, 076403 (2003).

(Lénárd, 1902) P. Lenard, „Über die lichtelektrische Wirkung,” *Ann. Phys.* **313**, 149–198 (1902).

(Li et al., 2013) R. K. Li, H. To, G. Andonian, J. Feng, A. Polyakov, C. M. Scoby, K. Thompson, W. Wan, H. A. Padmore, and P. Musumeci, „Surface-Plasmon Resonance-Enhanced Multiphoton Emission of High-Brightness Electron Beams from a Nanostructured Copper Cathode,” *Phys. Rev. Lett.* **110**, 074801 (2013).

(Liehl, 2015) A. Liehl személyes közlése (2015).

(Lin és Stolen, 1976) C. Lin, R.H. Stolen, „New nanosecond continuum for excited-state spectroscopy,” *Appl. Phys. Lett.* **28**, 216 (1976).

- (Liu et al., 2004) X. Liu, H. Rottke, E. Eremina, W. Sandner, E. Goulielmakis, K. O. Keeffe, M. Lezius, F. Krausz, F. Lindner, M. G. Schaetzel, G. G. Paulus, H. Walther, „Nonsequential Double Ionization at the Single-Optical-Cycle Limit,” *Phys. Rev. Lett.* **93**, 263001 (2004).
- (Ma et al., 2004) L.-S. Ma, Z. Bi, A. Bartels, L. Robertsson, M. Zucco, R. S. Windeler, G. Wilpers, C. Oates, L. Hollberg, S. A. Diddams, „Optical Frequency Synthesis and Comparison with Uncertainty at the 10^{-19} Level,” *Science* **303**, 1843-1845 (2004).
- (MacDonald et al., 2009) K. F. MacDonald, Z. L. Sámson, M. I. Stockman, N. I. Zheludev, „Ultrafast active plasmonics,” *Nature Phot.* **3**, 55-58 (2009).
- (Maier, 2007) S. A. Maier, „Plasmonics: Fundamentals and Applications,” Springer, Berlin (2007).
- (Malka és Miquel, 1996) V. Malka, G. L. Miquel, „Experimental Confirmation of Ponderomotive-Force Electrons Produced by an Ultrarelativistic Laser Pulse on a Solid Target,” *Phys. Rev. Lett.* **77**, 75-78 (1996).
- (Marchese et al., 2008) S. V. Marchese, C. R. E. Baer, A. G. Engqvist, S. Hashimoto, D. J. H. C. Maas, M. Golling, T. Südmeyer, U. Keller, „Femtosecond thin disk laser oscillator with pulse energy beyond the 10-microjoule level,” *Opt. Express* **16**, 6397-6407 (2008).
- (Matuschek et al., 2000) N. Matuschek, L. Gallmann, D. H. Sutter, G. Steinmeyer, U. Keller, „Back-side-coated chirped mirrors with ultra-smooth broadband dispersion characteristics,” *Appl. Phys. B* **71**, 509 (2000).
- (Mével et al., 2003) E. Mével, O. Tcherbakoff, F. Salin, E. Constant, „Extracavity compression technique for high-energy femtosecond pulses,” *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 105-108 (2003).
- (Mollenauer et al., 1980) L. F. Mollenauer, R. H. Stolen, J. P. Gordon, „Experimental observation of picosecond pulse narrowing and solitons in optical fibers,” *Phys. Rev. Lett.* **45**, 1095-1098 (1980).
- (Moulton, 1986) P. F. Moulton, „Spectroscopic and laser characteristics of $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$,” *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 125-133 (1986).
- (Müller, 1951) E. W. Müller, „Das Feldionenmikroskop,” *Z. Phys.* **131**, 136-142 (1951).
- (Nagy et al., 2015) B. J. Nagy, L. Gallais, L. Vámos, D. Oszetzky, P. Dombi, „Direct comparison of kilohertz- and megahertz-repetition rate femtosecond damage threshold,” *Opt. Lett.* **40**, 2525-2528 (2015).
- (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).
- (Nisoli et al., 1996) M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, „Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique,” *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2793-2796 (1996).
- (Novotny és Hecht, 2012) L. Novotny, B. Hecht, „Principles of Nano-Optics,” 2. kiadás, Cambridge University Press, Cambridge, Egyesült Királyság (2012).
- (Okhotnikov et al., 2004) O. Okhotnikov, A. Grudinin, M. Pessa, „Ultra-fast fibre laser systems based on SESAM technology: new horizons and applications,” *New J. Phys* **6**, 177 (2004).

- (Paulus et al., 2003) G. G. Paulus, F. Lindner, H. Walther, A. Baltuska, E. Goulielmakis, M. Lezius, F. Krausz, „Measurement of the Phase of Few-Cycle Laser Pulses,” *Phys. Rev. Lett.* **91**, 253004 (2003).
- (Perry et al., 1999) M. D. Perry, D. Pennington, B. C. Stuart, G. Tietbohl, J. A. Britten, C. Brown, S. Herman, B. Golick, M. Kartz, J. Miller, H. T. Powell, M. Vergino, V. Yanovsky, „Petawatt laser pulses,” *Opt. Lett.* **24**, 160-162 (1999).
- (Pervak et al., 2008) V. Pervak, C. Teisset, A. Sugita, S. Naumov, F. Krausz, A. Apolonski, „High-dispersive mirrors for femtosecond lasers,” *Opt. Express* **16**, 10220-10233 (2008).
- (Petek és Ogawa, 1997) H. Petek, S. Ogawa, „Femtosecond time-resolved two-photon photoemission studies of electron dynamics in metals,” *Prog. Surf. Sci.* **56**, 239-310 (1997).
- (Piglosiewicz et al., 2014) B. Piglosiewicz, S. Schmidt, D. J. Park, J. Vogelsang, P. Groß, C. Manzoni, P. Farinello, G. Cerullo, C. Lienau „Carrier-envelope phase effects on the strong-field photoemission of electrons from metallic nanostructures,” *Nature Phot.* **8**, 37-42 (2014).
- (Raether, 1988) H. Raether, „Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings,” Springer, Berlin (1988).
- (Reider, 2005) G. A. Reider, „Photonik,” Springer-Verlag, Wien (2005).
- (Rimington et al., 2001) N. W. Rimington, A. Cornea, A. J. Van Tassle, J. Santoro, W. A. Schroeder, „Femtosecond Ti:sapphire oscillator electro-optically cavity dumped at 50 kHz,” *Appl. Opt.* **40**, 4831-4835 (2001).
- (Ropers et al., 2007a) C. Ropers, D. R. Solli, C. P. Schulz, C. Lienau, T. Elsaesser, „Localized Multiphoton Emission of Femtosecond Electron Pulses from Metal Nanotips,” *Phys. Rev. Lett.* **98**, 043907 (2007).
- (Ropers et al., 2007b) C. Ropers, C. C. Neacsu, T. Elsaesser, M. Albrecht, M. B. Raschke, C. Lienau, „Grating-Coupling of Surface Plasmons onto Metallic Tips: A Nanoconfined Light Source,” *Nano Lett.* **7**, 2784-2788 (2007).
- (Schenk et al., 2010) M. Schenk, M. Krüger, P. Hommelhoff, „Strong-Field Above-Threshold Photoemission from Sharp Metal Tips,” *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257601 (2010).
- (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).
- (Siegman, 1986), A. E. Siegman, „Lasers,” University Science Books, Sausalito (1986).
- (Siwick et al., 2003) B. J. Siwick, J. R. Dwyer, R. E. Jordan, R. J. Dwayne Miller, „An Atomic-Level View of Melting Using Femtosecond Electron Diffraction,” *Science* **302**, 1382-1385 (2003).
- (Stebbing et al., 2011) S. L. Stebbings, F. Süßmann, Y.-Y. Yang, A. Scrinzi, M. Durach, A. Rusina, M. I. Stockman, M. F. Kling, „Generation of isolated attosecond extreme ultraviolet

pulses employing nanoplasmonic field enhancement: optimization of coupled ellipsoids,” *New J. Phys.* **13**, 073010 (2011).

(Szipőcs et al., 1994) R. Szipőcs, K. Ferencz, C. Spielmann, F. Krausz, „Chirped multilayer coatings for broad-band dispersion control in femtosecond lasers,” *Opt. Lett.* **19**, 201-203 (1994).

(Szipőcs és Kőházi-Kis, 1997) R. Szipőcs, A. Kőházi-Kis, „Theory and design of chirped dielectric laser mirrors,” *Appl. Phys. B* **65**, 115 (1997).

(Taflove és Hagness, 2005) A. Taflove, S. C. Hagness, „Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method,” Artech House Publishers (2005).

(Tempea et al., 1998) G. Tempea, F. Krausz, Ch. Spielmann, K. Ferencz, „Dispersion control over 150 THz with chirped dielectric mirrors,” *IEEE J. Spec. Topics Quant. El.* **4**, 193 (1998).

(Tempea et al., 2001) G. Tempea, V. Yakovlev, B. Bacovic, F. Krausz, K. Ferencz, „Tilted-front-interface chirped mirrors,” *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 1747 (2001).

(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., 1990) T. Tsang, T. Srinivasan-Rao, J. Fischer, „Surface-plasmon-enhanced multiphoton photoelectric emission from thin silver films,” *Opt. Lett.* **15**, 866-868, (1990).

(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).

(Udem et al., 2002) T. Udem, R. Holzwarth, T. Haensch, „Optical frequency metrology,” *Nature* **404**, 233-237 (2002).

(Vogelsang et al., 2015) 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).

(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).

(Walker et al., 1996) B. Walker, B. Sheehy, K. C. Kulander, L. F. DiMauro, „Elastic Rescattering in the Strong Field Tunneling Limit,” *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5031-5034 (1996).

(Wang és Tang, 2012) J.-N. Wang, J.-L. Tang, „Photonic Crystal Fiber Mach-Zehnder Interferometer for Refractive Index Sensing,” *Sensors* **12**, 2983-2995 (2012).

(Wang et al., 2013) X. Wang, R. Zgadzaj, N. Fazel, Z. Li, S. A. Yi, X. Zhang, W. Henderson, Y.-Y. Chang, R. Korzekwa, H.-E. Tsai, C.-H. Pai, H. Quevedo, G. Dyer, E. Gaul, M. Martinez, A. C. Bernstein, T. Borger, M. Spinks, M. Donovan, V. Khudik, G.

- Shvets, T. Ditmire, M. C. Downer, „Quasi-monoenergetic laser-plasma acceleration of electrons to 2 GeV,” *Nature Comm.* **4**, 1988 (2013).
- (Yakovlev et al., 2003) V. S. Yakovlev, P. Dombi, G. Tempea, C. Lemell, J. Burgdörfer, T. Udem, A. Apolonski, „Phase-stabilized 4-fs pulses at the full oscillator repetition rate for a photoemission experiment,” *Appl. Phys. B* **76**, 329-332 (2003).
- (Yalunin et al., 2011) S. V. Yalunin, M. Gulde, C. Ropers, „Strong-field photoemission from surfaces: Theoretical approaches,” *Phys. Rev. B* **84**, 195426 (2011).
- (Yamane et al., 2003) K. Yamane, Z. Zhang, K. Oka, R. Morita, M. Yamashita, „Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation,” *Opt. Lett.* **28**, 2258-2260 (2003).
- (Yudin és Ivanov, 2001) G. L. Yudin, M. Y. Ivanov, „Nonadiabatic tunnel ionization: Looking inside a laser cycle,” *Phys. Rev. A* **64**, 013409 (2001).
- (Zawadzka et al., 2000) J. Zawadzka, D. Jaroszynski, J. J. Carey, K. Wynne, „Evanescent-wave acceleration of femtosecond electron bunches,” *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **445**, 324-328, (2000).
- (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).
- (Zewail, 2006) A. H. Zewail, „4D ultrafast electron diffraction, crystallography, and microscopy,” *Annu. Rev. Phys. Chem.* **57**, 65-103 (2006).
- (Zhang et al., 2012) X. Zhang, E. Schneider, G. Taft, H. Kapteyn, M. Murnane, S. Backus, „Multi-microjoule, MHz repetition rate Ti:sapphire ultrafast regenerative amplifier system,” *Opt. Express* **20**, 7015-7021 (2012).
- (Zhavoronkov et al., 2005) N. Zhavoronkov, H. Maekawa, H. Okuno, K. Tominaga, „All-solid-state femtosecond multi-kilohertz laser system based on a new cavity-dumped oscillator design,” *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 567-571 (2005).
- (Zherebtsov et al., 2011) S. Zherebtsov, T. Fennel, J. Plenge, E. Antonsson, I. Znakovskaya, A. Wirth, O. Herrwerth, F. Süssmann, C. Peltz, I. Ahmad, S. A. Trushin, V. Pervak, S. Karsch, M. J. J. Vrakking, B. Langer, C. Graf, M. I. Stockman, F. Krausz, E. Rühl, M. F. Kling, „Controlled near-field enhanced electron acceleration from dielectric nanospheres with intense few-cycle laser fields,” *Nature Phys.* **7**, 656-662 (2011).
- (Zijlstra és Orrit, 2011) P. Zijlstra, M. Orrit, „Single metal nanoparticles: optical detection, spectroscopy and applications,” *Rep. Prog. Phys.* **74**, 106401 (2011).