

„Generating high-order harmonics is experimentally simple.”
*Anne L’Huillier*¹

Mivel a *Fizikai Szemlében* az attoszekundumos (10^{-18} s) impulzusok megvalósítási elvének eredetéről és tényleges megvalósításuk alakulásáról elsőkézből – az elvi lehetőséget felvető *Farkas Győző* [1], illetve az izolált impulzusok megvalósításában és a fizikai folyamatok vizsgálatára való alkalmazásukban élen járó *Krausz Ferenc* [2] tollából – átfogó írásokat olvashattunk, így jelen cikkben az attoszekundumos impulzusok elméleti leírásáról, az impulzusok karakterizálásáról, és igen friss elektron-interferenciás kísérletekről számolok be.

A lézer megjelenésével lehetővé vált olyan nagy intenzitású elektromágneses tér előállítása, amelynek hatására az elektron már nemlineáris folyamatokban vesz részt. A lézer megvalósítása után egy évvel már megfigyeltek kétfotonos gerjesztést és másodharmonikus keltést. Az azóta eltelt időben a lézertechnológia rohamosan fejlődött, a Q-kapcsolás, a módusszinkronizálás és a fázismodulált impulzuserősítés révén az elérhető csúcshintenzitás nagyságrendekkel nőtt. Az impulzus üzemi lézerek technológiájának folyamatos fejlődése az egyre növekvő impulzusenergia és ismétlési frekvencia, illetve az egyre rövidülő impulzusidők mára a kutatók számára igen nagy intenzitású terek előállítását teszik lehetővé, amelyek új tudományterületek születéséhez vezetnek és vezetnek. Atomok nagy intenzitású elektromágneses térbeli viselkedésének vizsgálata a lézertechnológiával együtt fejlődik, hiszen a kísérleti vizsgálatokhoz a lézerimpulzusok biztosítják a nagy intenzitás elérését. Atomok és nagy intenzitású impulzusok kölcsönhatásakor új folyamatok játszódnak le, ezek közül az egyik a magasrendű harmonikusok keltése. Először 1987-ben figyelték meg a közel állandó amplitúdójú, a lézer páratlan számú felharmonikusaiból álló spektrumot.

Magasrendű harmonikusok (HHG) keltése

Nagy intenzitású lézerimpulzust vákuumkamrában, egy kis méretű (1–20 mm), néhány mbar nyomású gáztargetre fókuszálva, a lézer terjedési irányában a lézer ω_0 körfrekvenciájának páratlan számú többszörösei ($3\omega_0$, $5\omega_0$, $7\omega_0$...) keltődnek. A harmonikus spektrum megfelelő feltételek esetén a több századik rendig is tarthat. A lézerimpulzus energiája tipikusan 1–10 mJ tartományba, az impulzushossz a femtoszekundum – pikoszekundum (10^{-15} – 10^{-12} s) tartományba esik. A keltő lézerimpulzus tulajdonságai, mint például az elliptikusság, a fókuszálás, a térbeli és időbeli impulzusalak mind befolyásolják a harmonikusok keltés hatékonyságát, és a keltett harmonikusok optikai tulajdonságait.

¹ „Magasrendű harmonikusok keltése kísérletileg egyszerű.” – *Anne L’Huillier*, Lundi Egyetem, Svédország

Magasrendű harmonikusok (high-order harmonic generation, HHG) kelthetők szilárd anyag felszínén keletkező plazmában is. Ebben az esetben a plazma elektronjai a lézer terében oszcillálnak, amely mozgás a nagy térerősség miatt torzul, anharmonikussá válik és felharmonikusok kibocsátásához vezet. A szilárd felületen történő felharmonikus-keltés mechanizmusa a gázokban való keltéstől gyökeresen eltér. Jelen cikkben csak a szabad atomok esetét vizsgáljuk.

Atomok nagyintenzitású terekben

A lézerimpulzusban az elektromos térerősség az időnek szinuszos függvénye, amely egy atom gyengén kötött elektronjára harmonikus kényszererőként hat. Amennyiben a lézer intenzitása alacsony, az elektromos erő kicsi, és az elektron képes a lézer térerősségének szinuszos változását követni. Ebben az esetben a dipólmomentum egyetlen (a lézer frekvenciájának megfelelő) komponenset tartalmaz. Ha növeljük a lézertér amplitúdóját, akkor az elektron mozgása anharmonikussá válik, és a kisugárzott spektrumban magasabb frekvenciakomponensek, felharmonikusok jelennek meg.

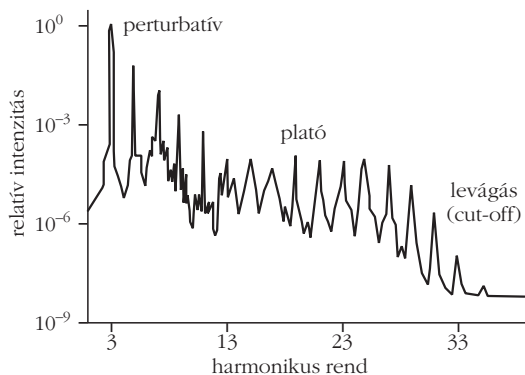
Az atomok külső elektronjai az iontörzs Coulomb-potenciálterében mozognak. Tipikus atomi távolságok esetén ez nagyságrendileg 10^{11} V/m térerősséget jelent. Amennyiben az atom olyan elektromágneses térbe kerül, amelyben az elektromos térerősség ezzel összemérhető (kb. 10^{15} W/cm² intenzitásnál), akkor annak hatása már nem kezelhető az atomi potenciál gyenge perturbációjaként. Jelen cikkben az ilyen teret nevezzük nagyintenzitású térnek.

Az elektromágneses térbe helyezett szabad elektron a polarizáció síkjában kényszerített rezgőmozgást végez, átlagos mozgási energiája, az U_p ponderomotoros energia az

$$U_p = \frac{e^2 I}{2 m_e \epsilon_0 c \omega^2}$$

képlettel adható meg, ahol I a lézerimpulzus csúcshintenzitása, m_e az elektron tömege, ϵ_0 a dielektromos állandó, c a fénysebesség, ω a lézer körfrekvenciája. Ez a mennyiség a lézer elektromágneses terének erősségére jellemző, nagysága szerint a lézer–atom kölcsönhatás kategorizálható. Példaként egy 3 mJ energiájú, 30 fs hosszúságú, 800 nm-es impulzust 500 μ m átmérőjű foltta fókuszálva 10^{14} W/cm² intenzitás érhető el, ami 6 eV ponderomotoros energiának felel meg.

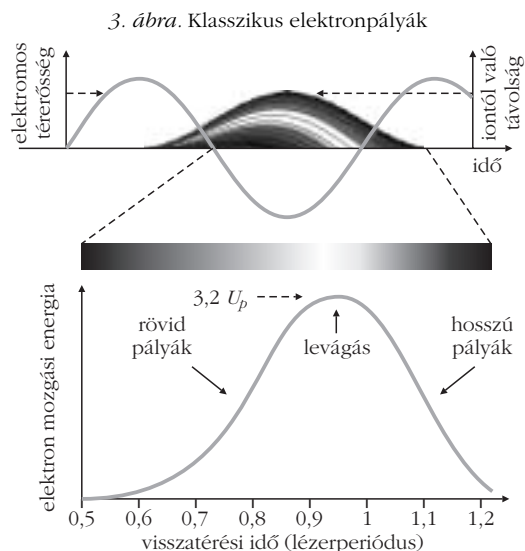
Az előbb említett nagyintenzitású lézerterek annak ellenére képesek az atomokat ionizálni, hogy egy foton energiája (800 nm-es fény esetén 1,55 eV) lényegesen alacsonyabb, mint a vizsgált atomok ionizá-



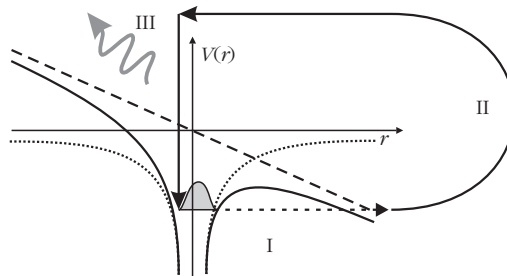
1. ábra. Argonatomok által kibocsátott magasharmonikus spektrum $1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ keltő intenzitás esetén.

ciós potenciálja (I_p , argon: 15,76 eV, neon 21,6 eV). Az ionizáció több foton együttes elnyelésével, többfotonos folyamat révén jön létre.

Az ionizációt követően az elektronok az ion közelében, a lézer terében maradhatnak. Ezek az elektronok a lézer elektromágneses terétől energiát nyerve, az atommal újabb kölcsönhatásba léphetnek. Ha ez a kölcsönhatás az elektron befogásával jár, akkor a lézer terétől nyert energia egy nagyenergiájú foton kigsugárzására fordítódik – ez nem más, mint a magas harmonikusok keltésének folyamata. Előfordulhat az is, hogy az elektron az atomon szóródik, vagy másik elektront lök ki. Ekkor küszöb feletti ionizációról (above threshold ionisation, ATI), vagy nem-szekvenciális kettős ionizációról (non-sequential double ionisation, NSDI) beszélünk. Mindezen folyamatok esetén azt tapasztaljuk, hogy a (foton vagy elektron) fésűszerű spektrum első néhány csúcsának intenzitása exponenciális csökkenést mutat, ez a perturbatív tartomány. Ez után egy állandó intenzitású tartomány következik, a plató, ami egy levágással (cut-off) ér véget (lásd 1. ábra). Az állandó amplitúdójú platótartomány igen érdekes: a következőkben bemutatom kialakulásának fizikai magyarázatát. Attoszekundumos impulzussorozat létrehozására is a spektrum ezen tartományát használjuk.



3. ábra. Klasszikus elektronpályák



2. ábra. A HHG háromlépcsős modellje: I. ionizáció alagút effektussal, II. szabad elektron a lézer terében, III. elektronbefogás, fotonkibocsátás.

A HHG-folyamat félklasszikus leírása

Perturbációszámítás szerint a magasrendű harmonikusok intenzitásának a rend inverze szerint kellene csökkennie, ezzel szemben a plató harmonikusai közel állandó konverziós hatásfokot mutatnak. Ezt a jellegzetes struktúrát és a levágás helyét jól magyarázza a 2. ábrán illusztrált háromlépcsős modell. Itt az atomot a kvantummechanika eszközeivel írjuk le, de a nagy fotonűrűség miatt a lézertér hatását klasszikusan kezeljük.

A lézerimpulzus maximuma közelében a lézer elektromos potenciáljának (szaggatott vonal) és az iontörzs Coulomb-potenciáljának (pontozott vonal) összege egy gátat eredményez, amelyen keresztül az elektron alagúteffektus útján kiszakadhat. Ez az elektron a lézer terében gyorsul, majd amikor a térerősség előjelet vált, lassulni kezd, és vissza is fordulhat az iontörzs felé. Ha az elektron visszajut az iontörzs közelébe, akkor bizonyos valószínűséggel befogódik, és a lézertéről nyert energiáját (az ionizációs potenciállal növelve) egy nagyenergiájú foton kibocsátásával veszíti el. Lévéen, hogy az alagút csak a lézertér maximuma közelében létezik, a létrejövő elektroncsomag időbeli mérete a lézertér periódusának töredéke, vagyis a pár száz attoszekundumos tartományba esik.

Ha az iontörzs hatását nem vesszük figyelembe, csupán feltételezzük, hogy az elektrosztatikus tér maximuma közelében egy elektron születhet az iontörzs környékén, akkor egy igen egyszerű, klasszikus számítás eredményeiből is igen sokat tanulhatunk a magasrendű harmonikus sugárzás tulajdonságairól.

A 3. ábra felső részében a szürke vonallal jelölt térerősség különböző fázisainál ionizált elektronok atommagtól való távolságát ábrázoljuk a folytonos, fekete vonalakkal. Az elektronpályák kiszámításához a klasszikus $F = qE = m\ddot{x}$ összefüggést alkalmaztuk, $x(t_i) = \dot{x}(t_i) = 0$ kezdeti feltétellel. Az ábra alsó felén az elektron visszatérési idejének függvényében (ami jó közelítéssel megegyezik a foton kibocsátásának idejével, hullámtani kifejezéssel élve a fáziskésleltetéssel) vizsgáljuk annak mozgási energiáját (ez az energia-megmaradás miatt a kibocsátott foton energiáját is meghatározza).

Az első megállapításunk az lehet, hogy csak azok az elektronok térnek vissza az atommag közelébe, amelyek a térerősség maximuma utáni negyed periódusban lökődtek ki. A visszatérő elektronok mozgási energiáját

a színskála jelzi (fekete a legalacsonyabb, fehér a legmagasabb energiát). Az elektron az $\omega t = 0,594\pi$ kibocsátási fázis esetén nyeri a legmagasabb energiát, amelynek értéke $3,2 U_p$. Látható, hogy a visszatérő elektronok spektruma egy jól definiált maximummal rendelkezik. Ennek megfelelően az elektronok befogásakor kibocsátott fotonok spektrumában is várható egy éles maximum, amelynek helye igen jól egyezik a kísérletileg tapasztalt $I_p + 3,2 U_p$ értékkel. Mivel az elektronok közel azonos valószínűséggel ionizálódnak az adott negyedperiódusban, egy állandó intenzitású plató megjelenését várhatjuk.

A következő tanulság, hogy minden energiához két elektronpálya tartozik, azaz egy adott energiájú foton két pálya eredményeként is előállhat. Ez a két pálya igen különböző időparaméterekkel rendelkezik, aminek eredményeként egy adott energiánál egy optikai féelperióduson belül is két fotonkibocsátással számolhatunk. Ezt a két elektronpályát a lézertérben töltött idő alapján két osztályba: a rövid és hosszú pályák csoportjába szokás sorolni. A különböző visszatérési idők (vagyis az adott energiához tartozó fáziskésleltetések) miatt e két elektronpálya-család együttes jelenléte teljesen tönkreteszi az attoszekundumos időalak létrehozásának lehetőségét. Szerencsére a külön családhoz tartozó XUV-sugárzás (extreme-ultraviolet radiation, nagyon magas frekvenciájú ultraibolya-sugárzás) fázistulajdonságai oly mértékben különböznek, hogy a családokat divergencia alapján – egy egyszerű térszűrővel – könnyen szétválaszthatjuk.

Klasszikus modellünkből az is következik, hogy még egy adott családon belül is, a különböző energia-komponensekhez különböző visszatérési idő, azaz különböző késleltetés tartozik, ami csörpölt XUV-impulzusokat eredményez. Ez a csörp² a rövid pályák esetén pozitív, a hosszú pályák esetén negatív.

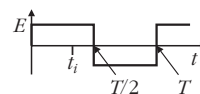
Már ebből is látszik, hogy a transzformáció-limitált attoszekundumos impulzusok léte a harmonikus sugárzásnak nem természetéből eredő következménye, azonban a sugárzás manipulációjával előállítható.

Az ionizációs-rekombinációs folyamat minden lézerperiódusban kétszer ismétlődik, a térerősség pozitív és negatív maximumánál. Ez egy fésűszerű spektrumot eredményez, amelyben a csúcsok távolsága a lézer frekvenciájának kétszerese.

A klasszikus modell segítségével betekintést nyerhettünk az atom nagyintenzitású elektromágneses térbeli viselkedésébe, azonban a teljes leíráshoz a kvantummechanikát kell segítségül hívnunk. Ebben a képben a kötött elektroncsomag egy része alagúteffektussal a klasszikus értelemben tiltott potenciálgáton kívülre kerül, ott a kontinuumban terjed, majd egy idő után interferál az alapállapotban maradt részével. A folyamatban a klasszikus fizikában ismeretlen hatások is szerepet kapnak, mint az alagutazás során nyert fázis, a Coulomb-potenciál hatása és az elektroncsomag térbeli kiterjedése a kontinuumban.

A magasrendű harmonikusok keltésének itt bemutatott modellje egy középiskolás versenyfeladatot is inspirált, amelyet a 2006. évi *Budó Ágoston Fizikai Feladatmegoldó Versenyen* tűztünk ki:

Ha egy atomot nagy intenzitású lézerimpulzus terébe helyezünk, akkor a lineárisan poláros fény elektromos tere ionizálni tudja azt.



A leszakított elektron a változó elektromos térben, bizonyos esetekben visszatérhet az iontörzshöz. Közelítsük a szinuszosan változó térerősséget négyszög-jellel. Az ábrán látható és t_i -vel jelölt időpillanatban következik be az ionizáció, ekkor jelenik meg az iontörzs mellett, nulla sebességgel a szabad elektron. Milyen t_i -érték esetén tud az elektron visszatérni az iontörzshöz? Mekkora lehet a visszatérő elektron mozgási energiájának legnagyobb értéke? Az iontörzs Coulomb-vonzását elhanyagoljuk. (A térerősség amplitúdója $3 \cdot 10^{10}$ V/m, a periódusidő 2,6 fs.)

Attoszekundumos impulzussorozat (APT) előállítása magasrendű harmonikus sugárzásból

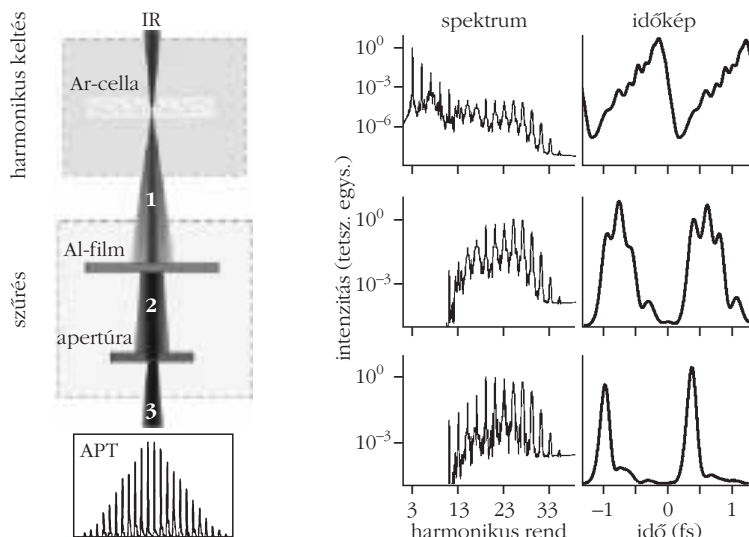
A lézeroszcillátorok esetén megismert módusszinkronizálással analóg módon feltételezhető, hogy a magasrendű harmonikusok fésűszerű spektruma – megfelelő fázisviszonyok esetén – szintén egy impulzussorozatot (attosecond pulse train: APT) eredményez, amelynek impulzusai a nagy sáv szélesség miatt az attoszekundumos tartományba esnek. N harmonikus összegzésekor az impulzus hosszúsága – konstans késleltetés esetén – $\approx (2N\omega_0)^{-1}$, vagyis egy titán-zafír alapú, 800 nm hullámhosszúságú keltő impulzus 5 felharmonikusa esetében akár 266 as is lehet, de előbbi modellünk szerint nem számíthatunk Fourier-limitált impulzusokra.

A 4. ábra azt szemlélteti, hogy a magasharmonikus sugárzás 1. sorban látható – tipikusan 1 fs hosszúságú – impulzusaiból miként lehet optikai szűrővel 170 as-os impulzusokat előállítani. A keltett sugárzást (1. sor) az alacsony harmonikusok dominálják, amit mind a spektrális, mind az időképen megfigyelhetünk. Ezeket a komponenseket egy pár száz nm vastagságú alumínium szűrő segítségével eltávolítjuk. Az alumínium abszorpciója az egyik oldalról, illetve a harmonikus spektrum levágása a másik oldalról sávszűrőként viselkedik, és csak a plató harmonikusait engedi át. Az alumínium csoportkésleltetés-diszperziója ebben a spektrális tartományban negatív, így alkalmasan megválasztva a szűrő vastagságát a harmonikus generálási folyamat természetes pozitív csörpjét kompenzálni tudjuk. Második lépésben egy apertúra segítségével kiválasztjuk a rövid elektrontrajektóriákhoz tartozó, alacsonyabb divergenciával rendelkező komponenseket. Mint azt a 4. ábra mutatja, ezek a lépések elengedhetetlenek valós attoszekundumos impulzusok előállításához.

Egy attoszekundumos impulzussorozat alkalmazhatósága az alacsony követési idő miatt eléggé behatárolt, ezért a sorozatból egyetlen impulzus izolálásához

² pozitív chirp (= a kisebb frekvenciakomponensek előre sietnek; a magyar szóhasználatban „csörp”) [1]

ra két módszert is kifejlesztettek. Az egyik eljárás a magasrendű harmonikusok keltésének erős intenzitásfüggését használja, ennek alkalmazásához olyan gyorsan változó = rövid (10 fs-nál rövidebb) lézerimpulzust kell alkalmaznunk, amely esetén a harmonikus spektrum legmagasabb energiájú része csak az impulzus csúcsán, egyetlen félpériódus alatt keltődik. A másik eljárás azon alapul, hogy a harmonikuseltetés valószínűsége a keltő impulzus ellipticitásának növelésével igen gyorsan csökken, hiszen a szabad elektron abban az esetben nem tud visszatérni az iontörzshöz. Két $\lambda/4$ lemez alkalmazásával előállítható olyan ultrarövid impulzus, amelynek csúcsán az elektromos tér lineárisan, de előtte és utána elliptikusan poláros. (Ezekről az optikai kapuzási módszerekről részletesebben [1]-ben olvashatunk.)



4. ábra. Valóságos attoszekundumos impulzussorozat létrehozása térbeli, spektrális és diszperzív szűréssel.

Kiterjedt közeg makroszkopikus válasza

A gázban keltett magasrendű harmonikusok konverziós hatásfoka alacsony, nem éri el a 10^{-4} -t. Ezért nagyon fontos, hogy a keltés hatásosságát növeljük, amelyhez két feltételnek kell teljesülnie. Először minden egyes atomnak keltenie kell nagyfrekvenciájú sugárzást (mikroszkopikus feltétel). Másrészt a megfigyelt harmonikus sugárzás az egyes atomok által kibocsátott sugárzás koherens összege, vagyis a magas harmonikus konverzió akkor lesz jó hatásfokú, ha a keltett sugárzás és a nemlineáris polarizáció fázisban marad, azaz a nemlineáris folyamatokhoz hasonlóan teljesül a fázisillesztés feltétele (makroszkopikus feltétel). Egyetlen atom és a lézertér kölcsönhatását kvantummechanikai modell segítségével adhatjuk meg, a kiterjedt közeg válaszához meghatározásához a Maxwell-egyenletek megoldására van szükség.

Karakterizálási módszerek

A magasrendű harmonikus sugárzást felfedezésük után sokáig kizárólagosan XUV fonspektrométerek segítségével vizsgálták, karakterizálásukat a spektrum tulajdonságaira korlátozva. A látható és infravörös tartományban széles körben használt korrelációs optikai karakterizálási módszerek (autokorreláció, FROG, SPIDER) a magas harmonikusok esetében közvetlenül nem alkalmazhatóak. A keltett XUV-fény intenzitása kizárólag az alacsony rendek esetén elegendő nemlineáris folyamat létrehozására (He kettős ionizációja).

A magas harmonikusok jellemzése terén az elmúlt pár évben komoly fejlődés történt, új technikákat fejlesztettek ki, amelyek az XUV-harmonikusok és a keltő lézerimpulzus egy töredékének késleltetett impulzusa közötti keresztkorreláción alapulnak. A keresztkorrelációs jel az XUV-intenzitással már csak lineárisan

változik, így a viszonylag kis intenzitású XUV-impulzusokra is alkalmazható. Külön kell választani a diszkrét spektrumú impulzussorozat és a folytonos spektrumú izolált impulzus karakterizálását, ezért az alábbiakban két technikát mutatunk be.

Mindkét kísérletben fotoelektron-spektrumokat vizsgálunk, amelyek úgy keletkeznek, hogy atomokat ionizálunk a magas harmonikus XUV-térrel, az infravörös (IR) lézertér jelenlétében. Az infravörös lézerimpulzus jelenlétében lezajló fotoionizáció folyamata két szempontból is jelentős. Egyrészt így nyerjük az impulzus karakterizálásához szükséges keresztkorrelációs jelet, másrészt ez lehetővé teszi a kibocsátott elektron-hullámcsoport bizonyos fokú formálását.

Ha a lézernyaláb intenzitása alacsony, akkor az ionizációra gyakorolt hatása abban mutatkozik meg, hogy az XUV-fotonenergiáknak megfelelő fésűszerű fotoelektron-spektrumban a

$$E_{kin} = \hbar\omega_{XUV} - I_p$$

helyzetű vonalak között, egy IR-fotonnak megfelelő távolságban mellésávok jelennek meg. Ezek a mellésávok szolgáltatják a két nyaláb keresztkorrelációs jelét, amelyet az alább leírt módszerrel az XUV-impulzusok karakterizálására használhatunk.

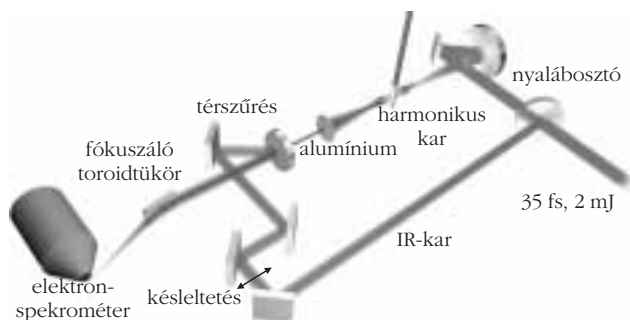
Ha a lézernyaláb intenzitása magasabb, akkor a két tér hatására keletkező fotoelektronokat úgy tekintjük, hogy az egyfotonos ionizáció révén létrejött elektron-csoportok a lézertérben az A vektorpotenciál pillanatnyi értékének megfelelő

$$p_f = p_i - eA$$

momentumeltolást szenvednek.

Diszkrét spektrumú APT karakterizálása (RABITT)

A magas harmonikus sugárzás plató tartományának attoszekundumos időskálán történő karakterizálására a RABITT (resolution of attosecond beating by interference of two-photon transitions) technika terjedt el.



5. ábra. Kísérleti elrendezés a RABITT-méréshez

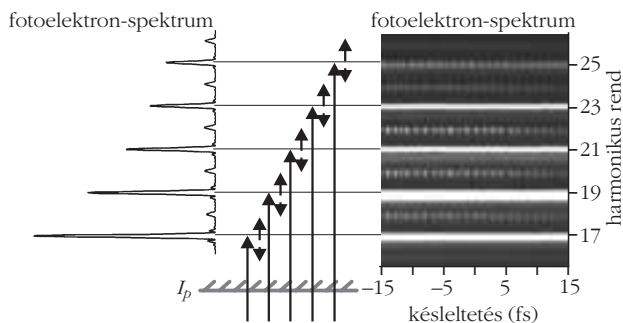
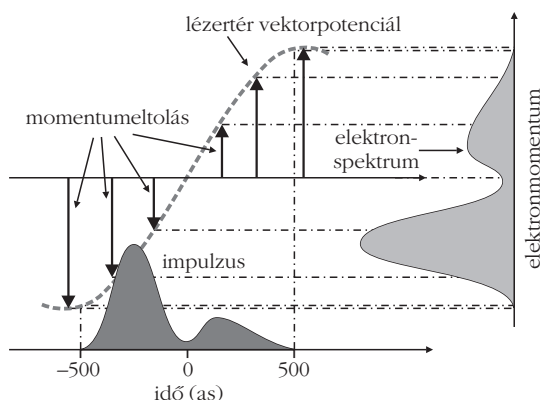
A módszer a fent említett XUV-lézer keresztkorreláción, a már tárgyalt melléksávok vizsgálatán alapul.

Egy lehetséges kísérleti elrendezés az 5. ábrán látható: a femtoszekundumos lézernyalábot két részre osztjuk. A nyaláb nagyobb intenzitású része az egyik karban magasrendű harmonikusokat kelt, a késleltethető másik kar szolgáltatja a kísérletekben a szinkronizált infravörös impulzusokat. Az attoszekundumos időstruktúra kialakításához a magasrendű harmonikusok először egy alumíniumszűrőn, majd egy apertúrán haladnak át. Az apertúra tulajdonképpen egy átfűrt tükör, amelynek első oldaláról verődik vissza a próbanyaláb, így történik az interferométer két ágának összeillesztése. A két nyalábot egy spektrométer aktív térfogatába fókuszáljuk, ahol kis nyomású (10^{-4} mbar) gáz van, itt jön létre a fotoionizáció.

A spektrum szerkezetét a 6. ábra mutatja. Az ionizációs potenciálnál nagyobb energiájú fotonok egyfotonos ionizációval, egymástól a lézerefoton energiájának kétszeresével szeparált csúcsokat hoznak létre. A harmonikus csúcsok között félúton úgynevezett melléksávokat (sideband) figyelhetünk meg.

A harmonikusok és az infravörös fotonok együttes jelenléte esetén egy IR-foton együttes elnyelése a q -ik harmonikussal, illetve egy IR-foton kibocsátása a $(q+2)$ -ik harmonikus elnyelésekor ugyanahhoz a $(q+1)$ -ik rendű melléksáv keltéséhez vezet. A két kvantumpálya között fellépő interferencia lehetővé teszi, hogy a két harmonikus közötti fáziskülönbséget meghatározzuk. Egymást követő melléksávok egyidejű vizsgálatával a harmonikusok fázisviszonyaira következtethetünk, és az impulzussorozat átlagos impulzusának időalakja meghatározható.

7. ábra. Attoszekundumos „sávkamera” működési elve



6. ábra. Impulzuskarakterizálási módszerek: RABITT-spektrum szerkezete

Polytonos spektrumú, izolált impulzus karakterizálása (attoszekundumos sávkamera)

Izolált impulzusok karakterizálására az előbb bemutatott módszer nem alkalmazható, hiszen a folytonos spektrumban a melléksávok számára „nincs hely”. Ezen impulzusok karakterizálására a sávkamera analógiáján alapuló eljárást fejlesztettek ki (7. ábra). Ebben a kísérletben is létrehozunk fotoionizáció révén az XUV-impulzus elektronmásolatát, amely a lézertérben születik. Az elektronimpulzus különböző szeletei a szinkronizált lézerezimpulzus különböző értékeit érzékelik, különböző mértékű momentumeltolást szenvednek. Így a szubfemtoszekundumos időstruktúra az egyszerűen mérhető energiaszerkezetévé képződik le.

Magasrendű harmonikusok alkalmazásai

Femtoszekundumos és attoszekundumos XUV-impulzusok

A magasrendű harmonikus sugárzásból egyetlen spektrális komponens kiválasztásával egy femtoszekundumos tartományba eső XUV- vagy röntgenimpulzust nyerünk. A teljes spektrum alkalmazásával pedig attoszekundumos impulzusokat állítunk elő. Az időbeli felbontás lehetővé teszi atomok mozgásának (molekulában vagy kristályrácsban 10–100 femtoszekundumos), vagy kötött elektronok mozgásának (gerjesztett atomban a 10–1000 attoszekundumos) vizsgálatát. A rövid hullámhosszak miatt a nagy időbeli feloldóképesség nagy térbeli felbontással is párosul.

A magasrendű harmonikusok – a keltő lézerezimpulzustól örökölt – igen kedvező optikai tulajdonságai (ultrarövid impulzushossz, magas fotonenergia, irányítottág, nagy fényesség, magas térbeli és időbeli koherencia) miatt egyedülálló XUV-forrásként szolgálnak. Alkalmazásuk széles körű, az atom- és molekulaszpektroszkópiától (XUV-IR pumpapróba-vizsgálatok) az XUV-interferometriás méréseken át nemlineáris vizsgálatokig terjed. A nagymértékű fókuszálhatóság lehetővé teszi akár 10^{14} W/cm² teljesítménysűrűség elérését, amivel már anyagmegmunkálás végezhető. A pumpapróba-vizsgálatokhoz igen előnyös a keltő lézerezimpulzus szinkronizált tere.

Molekula-tomográfia

A kvantummechanikai képet követve azt mondhatjuk, hogy a magasrendű harmonikusok keltésekor a részlegesen kiszabadult elektron az alapállapotban maradt részével interferál, vagyis ezzel a kvázi-szabad elektronnal „letapogathatjuk” a kötött állapotot. Ez atomok esetén kevésbé érdekes, de ha a harmonikusokat például molekulákban keltjük, akkor feltérképezhetjük a molekulapályákat. Femtoszekundumos lézerpulzusok segítségével elérhető molekulák irányba állítása, és ha a harmonikusokat irányított molekulákkal keltjük, akkor az irányítás szögét változtatva a molekuláról – a tomográfia elvének megfelelő módon – különböző irányú vetületeket képezünk le, ami lehetővé teszi a molekulapálya 2D rekonstrukcióját. A HHG felhasználásával *Paul Corkum* csoportja „felvételt készített” az N_2 -molekula elektronpályájáról.

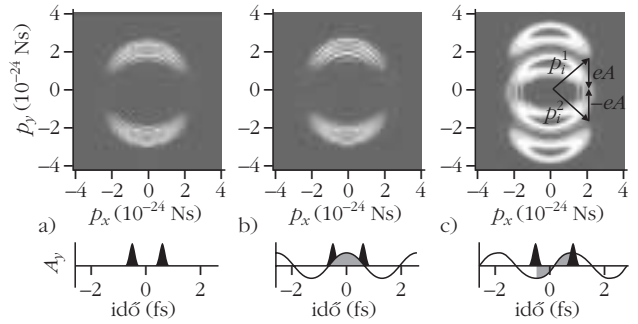
Elektroncsomag-interferencia

Egy VMI (Velocity Map Imaging) spektrométer segítségével lehetőség kínálkozik elektronok térbeli momentumeloszlásának vizsgálatára. Egy y irányú polarizációjú XUV-foton által kiváltott ionizáció esetén y körüli szimmetriát mutató eloszlást várhatunk, mint például a 8.a ábrán látható eloszlás burkolója.

A 8. ábrán az erőstér-közelítés alkalmazásával számolt elektronmomentum-eloszlásokat látunk, amelyeket két 160 as időtartamú, 37 eV központi energiájú XUV-impulzus hoz létre a szinkronizált lézertér jelenléte nélkül, illetve annak jelenlétében két késleltetésnél. A lézertér és az elektronok relatív késleltetését az alsó betétek illusztrálják. A két impulzus jelenléte miatt a két elektroncsomag interferenciáját figyelhetjük meg. Az (a) ábrán a két elektroncsomag azonos, csak időben késleltetett, ezért a középpontra szimmetrikus, energiában egyenközű gyűrűk alakulnak ki.

Ha az elektroncsomagok a lézer terében születnek, akkor a lézertérben momentumot és fázist akumulálnak. Mint azt korábban említettük, a magasrendű harmonikus sugárzás időbeli ismétlődésének periódusa a lézertér periódusának fele. Ez azt jelenti, hogy az egymást követő fotoelektronok a lézer elektromos terének különböző értékeinél születnek, így különböző momentumot és fázist nyernek a tértől: a (c) ábrán például az egymást követő impulzusok közül az egyik pozitív, míg a másik negatív irányú eltolást szenved. Az egymást követő elektroncsomagok lézertől nyert fázistolásának különbsége a vektorpotenciál – két impulzus közötti – integráljával arányos, ez pedig a (b) esetben lesz maximális.

Ha az ionizáció nem csupán két XUV-impulzus hatására megy végbe, hanem ez a folyamat a lézer periódusának megfelelően ismétlődik (mint egy valós impulzussorozat esetében), akkor ez egy újabb interferencia-struktúrát eredményez, ami az előző képekre „ráíródik”. Ez a struktúra mindig a $(p_x = 0, p_y = 0)$ pontra vonatkozó koncentrikus gyűrűk sorozata, amelyek energiában egy fotonenergiánként követik



8. ábra. Elektron-interferenciás kísérlet három speciális esete: amikor az elektron impulzusok a) lézertér nélkül vannak jelen, illetve a vektorpotenciál b) zérushelyeivel, c) extrémumaival esnek egybe.

egymást. A 8. ábrán ezt a struktúrát – a könnyebb áttekinthetőség érdekében – nem tüntetem fel.

Az elektroneloszlást két speciális késleltetés esetén mutatom be: először azt az esetet, amikor az elektroncsomagok a lézertér vektorpotenciáljának zérushelyeivel esnek egybe. Ebben az esetben nyilvánvalóan az elektronok nem szenvednek momentumeltolódást, vagyis a momentumeloszlások teljesen átfednek. Mivel azonban a két impulzus között a vektorpotenciál integrálja nem zérus, az elektronok különböző mértékű fázist akumulálnak, amelynek mértékére interferenciájukból következtethetünk. Az ábrán látható, hogy az interferenciakép egy gyűrűrendszert eredményez, amelynek középpontja a $(p_x = 0, p_y = \pm 2eA_0/\pi)$ pontba esik, vagyis a vektorpotenciál maximális értékére vonatkozó információt hordoz.

A másik speciális eset, amikor az XUV-impulzusok a lézertér vektorpotenciáljának extrémumaival esnek egybe, vagyis bizonyos impulzusok annak maximumával, a szomszédos impulzusok pedig a minimummal. Ebben az esetben fáziskülönbséggel nem kell számolnunk, de az ellentétes irányú eltolódás miatt különböző állapotok kerülnek fedésbe. Az ábrán a p_x tengely mentén kezdeti momentumban szimmetrikus állapotok interferenciája figyelhető meg, a maximumok helyzete attól függ, hogy az interferáló pontok fázisa azonos vagy ellentétes. Ez a kísérlet lehetővé teszi az elektron alapállapot szimmetriájának meghatározását.



Az attoszekundumos impulzusok keltése, alkalmazásai jelenleg igen gyorsan fejlődő tématerület. Az elmúlt pár évben számos nagy impaktú közlemény jelent meg, mindezek idézése helyett az irodalomjegyzékben két összefoglaló munkát [3, 4] jelöltem meg.

Köszönetnyilvánítás

A 7. ábráért *Krausz Ferenc*nek, a többi ábra elkészítésében nyújtott segítségért *Per Jonbsson*nak, a kézirat átolvasásáért *Hilbert Margit*nak tartozom köszönettel. Ezúton is szeretném megköszönni a Magyar Zoltán Posztdoktori Alapítvány támogatását.

Irodalom

1. Farkas, *Fizikai Szemle* 56 (2006) 408.
2. Krausz, *Fizikai Szemle* 52 (2002) 12.
3. Corkum, Krausz, *Nature Physics* 3 (2007) 381.
4. Agostini, DiMauro, *Rep. Prog. Phys.* 67 (2004) 813.