

22.

ATTOFIZIKAI KÍSÉRLETEK AZ ATOMI-, MOLEKULÁRIS- ÉS OPTIKAI-, VALAMINT SZILÁRDTESTFIZIKA TÉMAKÖREIBŐL

**Major Balázs^{1,2}, Chinmoy Biswas¹, Csizmadia Tamás¹, Filus Zoltán¹, Grósz Tímea¹, Gulyás
Oldal Lénárd¹, Kiss Dániel¹, Subhendu Kahaly^{1,3}, Varjú Katalin^{1,2}**

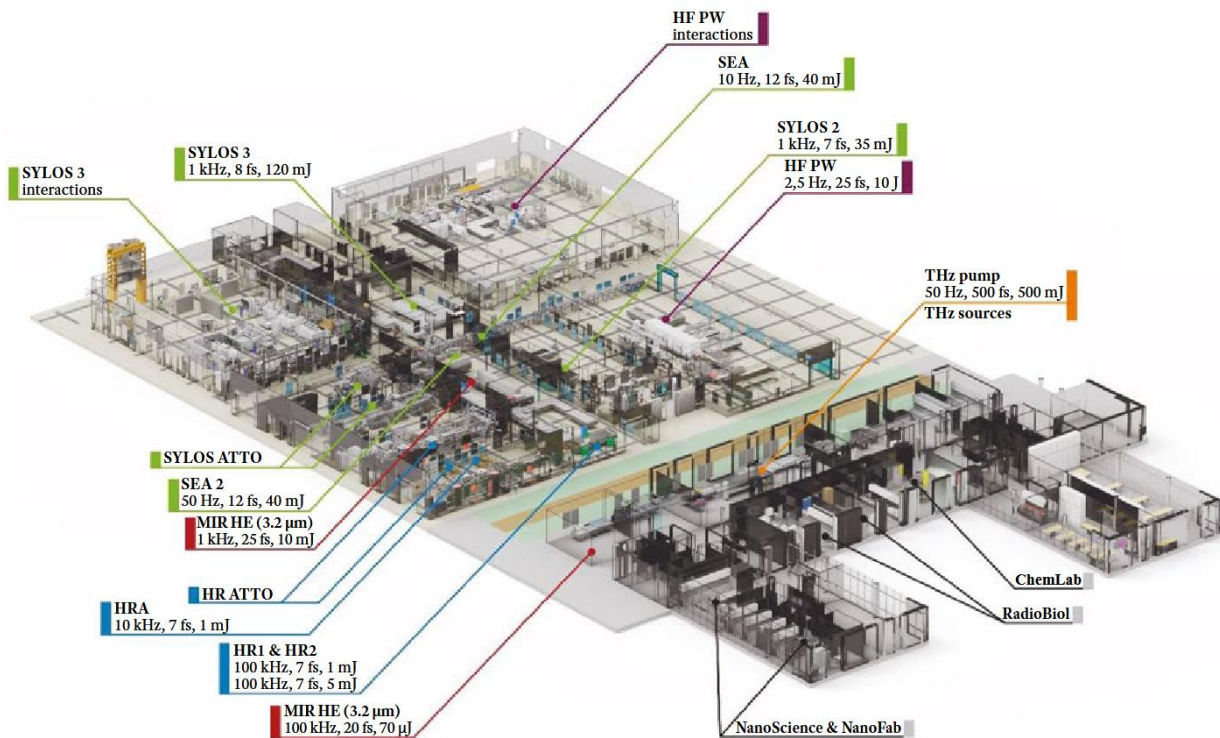
¹ELI ALPS Lézeres Kutatóintézet, Szeged

²Szegedi Tudományegyetem, Fizikai Intézet, Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék, Szeged

Az attoszekundumos fizika (vagy röviden attofizika) akkor kapott különösen nagy figyelmet, amikor 2023-ban a Nobel-díjbizottság ezen tudományterületen végzett úttörő munkásságukért ítélte oda a fizikai Nobel-díjat három – köztük egy magyar – kutatónak: Pierre Agostininek, Krausz Ferencnek és Anne L’Huilliernek [1,2]. Mint ismert, Alfred Nobel hagyatékának megfelelően olyan eredmények eléréséért ítélke oda a Nobel-díj(ak)at, amik az „emberiséget a legnagyobb mértékben szolgálják”. Azt, hogy a fenti három kutató felfedezései mekkora horderejűek, a tudományos közösség már korábban felismerte, és ennek eredményeként hívta életre a szegedi Extreme Light Infrastructure Attosecond Light Pulse Source (ELI ALPS) kutatóintézetet. Az ELI ALPS-ban a világ legbővebb attofizikai kísérleti eszközparkja található meg, és 2023-as hivatalos megnyitása óta (valójában már évekkel korábban is) számos a tudományterületet meghatározó kísérleti eredményt sikerült itt elérni. Ehhez hozzájárult többek között az, hogy a felhasználói igényekhez igazodva az intézet kísérleti eszközei folyamatos fejlesztés alatt állnak, ezáltal az intézetben egyedülálló berendezések érhetők el az egyedi kísérleti igények kielégítésére. Ebben a rövid összefoglalóban egyrészt ezen unikális technikai megoldások – amik önmagukban is fontos tudományos eredménynek minősülnek – másrészt az ezeknek köszönhetően elérhetővé vált kutatási eredményekből hozunk néhány példát. Az ELI ALPS kutatási infrastruktúrájának lelkét ultragyors (femtoszekundumos) lézerek adják. Ehhez kapcsolódnak az úgynevezett magasharmonikus-keltésen (high-harmonic generation, HHG) alapuló attoszekundumos nyalábvonalak és kísérleti állomások (lásd 1. ábra) [3-5]. Ezen fizikai folyamat teszi lehetővé attoszekundumos fényimpulzusok létrehozását, és a HHG az az eszköz, amivel „elektronok atomokban, molekulákban és szilárd anyagokban történő mozgásának” [2] tanulmányozása lehetséges. Ezen folyamat során a lézerek infravörös (infrared, IR) sugárzásából az extrém ultraibolya (extreme ultraviolet, XUV) tartományba eső elektromágneses hullámcsomagok jönnek létre.

Az elektronok mozgásának vizsgálatához önmagában az attoszekundumos impulzus nem elég, a kísérletek kulcseleme a pumpa-próba módszer, amikor is egy pumpa impulzussal létrehozunk a vizsgálni kívánt folyamatot, majd egy próba impulzussal vizsgáljuk azt. A kettő impulzus közti késleltetést pedig kontrolláltan változtatjuk ahhoz, hogy a megfelelő időpillanatokban kapjunk információt a próba segítségével. Attoszekundumos időskálán lezajló folyamatok esetén a késleltetés beállításának is attoszekundumos pontosságúnak kell lennie, ami komoly technikai és tudományos kihívást jelent. Különösen igaz ez például az ELI ALPS HR lézercsaládjához (HRA, HR1, HR2, lásd 1. ábra) [3-5] köthető nyalábvonalak (gyakorlatilag pumpa-próba kísérleti elrendezések), amelyek esetében a nagy átlagteljesítmény miatt nagymértékű hőterhelés éri a főleg vákuumban elhelyezett optikai elrendezést. Ezen hőhatások (főleg hőtágulás) rendkívül nehezíti a pump-próba interferométerek több méteres karjai közti úthosszkülönbség nanométeres precizitással való stabilan tartását (a fénysebesség 0.3 nm/as, tehát néhány attoszekundumos precizitáshoz nanométeres pontosság kell). Az ELI ALPS-ban sikerült egy olyan aktív visszacsatolású, pumpa-próba késleltetést stabilan tartó interferométert kiépítenünk, ami képes 80 as pontossággal működni akár 70 órán keresztül (lásd 2. ábra) [6]. Ez azért különösen fontos, mert a HR Gas nyalábvonalhoz kapcsolódó Reakciós Mikroszkóp (Reaction Microscope, ReMi) kísérleti állomása olyan módon működik, hogy a nyers adatok feldolgozásához a kísérletek során egyetlen lézerimpulzus maximum egyetlen elemi folyamatot (például egyetlen elektron kiszakítása a céltárgy atomból fotoionizáció révén) hozhat

létre, különben a folyamat nem rekonstruálható. Ezáltal kellő mennyiségű adathoz rendkívül hosszú (több napos) mérésekre van szükség.

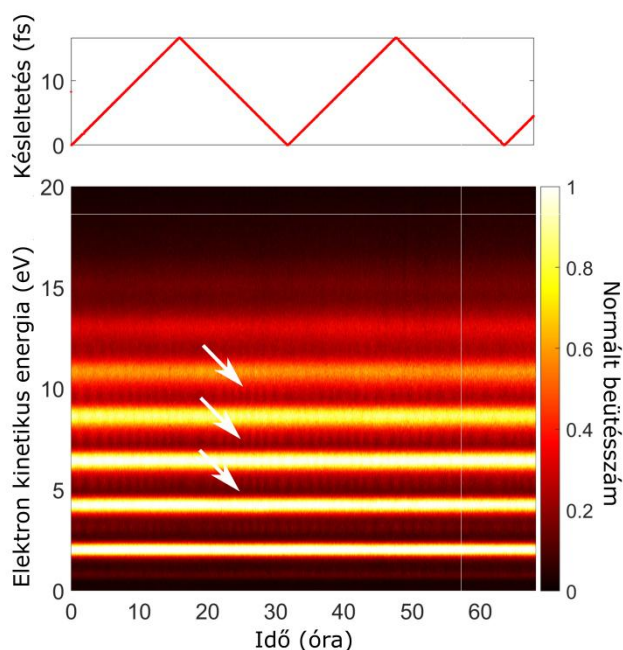


1. ábra: Extreme Light Infrastructure Attosecond Light Pulse Source (ELI ALPS) kutatóintézet kutatási infrastruktúrájának főbb elemei az épület háromdimenziós modelljével feltüntetve. Az elsődleges források (felmtoszekundumos lézerek) főbb paraméterei (ismétlési frekvencia, impulzushossz, impulzusenergia) a releváns helyeken az eszköz neve alatt került feltüntetésre. A nevek mellett található színek azt jelölik, hogy az adott berendezés melyik elsődleges forrás családhoz tartozik. Ebben a munkában a fenti ábrán HR ATTO névvel illetett HR Gas és HR Condensed attoszekundumos nyalábvonalakkal, illetve a hozzájuk csatlakozó ReMi és NanoESCA kísérleti állomásokkal elért eredményekből szemezgetünk. Forrás: [5]

A 2. ábrán a ReMi berendezéssel rögzített fotoelektron-beütésszám látható egy olyan 70 órán át tartó mérés során, ahol az XUV és IR – azaz a attoszekundumos impulzussorozat és femtoszekundumos lézerimpulzus – pumpa- és próba késleltetést 0 és 15 fs között változtattuk (a HR Gas nyalábvonalban) a teljes mérés során összesen több mint két teljes körben. A 2. ábrán látható fehér nyilak mutatják azt a tartományt, ahol a fotoelektron spektrumban interferencia mintázat jelenik meg. Ez a mintázat hordoz információt mind az attoszekundumos impulzusok időbeli alakjáról és időbeli hosszáról, mind az atomokból kilépő elektronok fotoionizációs időkéseleltetéséről. Emellett akár azon parciális hullámok külön-külön is mérhetők, amik a fotoionizációs folyamathoz hozzájárulnak [7]. Az ELI ALPS-ban kifejlesztett rendszer az eddigi paraméter limitációkat jelentősen kibővíti.

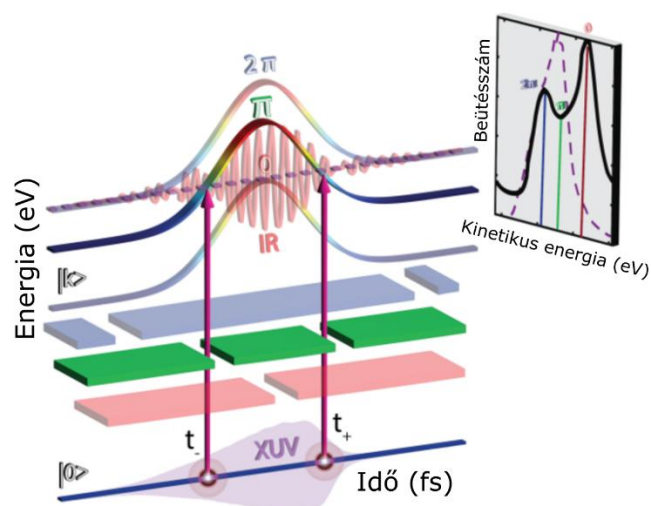
Az előző folyamathoz hasonlóan, ahol a parciális hullámok interferenciája határozza meg a fotoionizációs folyamat eredményeként létrejövő fotoelektronok energia- és momentumeloszlását, egy a HR Condensed nyalábvonalon végzett kísérletben szintén fotoelektron eloszlásban megjelenő interferencia mintázatot elemeztünk. Történt ez annak érdekében, hogy a fotoelektronok kvantumos hullámcsomagjáról információt nyerjünk [8]. A kísérlet lényegében egy időbeli kétréses kísérlet (lásd 3. ábra), ahol az XUV foton elnyelésével az atomból az alapállapotból ($|0\rangle$ a 3. ábrán) távozó elektron valamilyen szabad, úgynevezett kontinuum állapotba ($|k\rangle$ a 3. ábrán) kerül. Egy IR lézerimpulzussal időben átfedve azonban a lézer elektromos tere miatt az atomi állapotok Stark-eltolódást szenvednek. Az XUV impulzus különböző (időbeli) részeiben ionizált elektronok különböző elektromos

térerősséget és különböző Stark-eltolódást tapasztalnak a lézerimpulzus időbeli alakja miatt, és a $|k\rangle$ végállapotuk kicsit más kinetikus energiával jellemezhető lesz (ez eredményezi a 3. ábra jobb felső sarkában látható fotoelektron spektrumon látható eloszlást). Időben szimmetrikus XUV és IR impulzusok esetén minden kinetikus energiához két olyan időpillanat tartozik, amikor az elektron az adott kinetikus energiára tesz szert a fotoionizáció során. Ezen elektronok hullámcsomagjai interferálhatnak (interferencia mintázat jelenik meg a fotoelektron spektrumban), és ez a két időpont jelenti a két rést a kétréses kísérletben (lásd 3. ábra). A kísérleteink során valójában háromréses kísérleteket hajtottunk végre [8], és ezáltal közelebb kerültünk ahhoz, hogy a fotoelektronok kvantumos hullámcsomagjának holográfiájára használjuk ezt a megoldást.



2. ábra: Egy 70 órán át tartó mérés eredménye a Reakciós Mikroszkóp (Reaction Microscope, ReMi) kísérleti állomással. Az alsó ábra argon atomok fotoionizációjának (XUV-IR pumpa-próba elrendezésben) eredményeként az atomoktól elszakadó fotoelektronok számát mutatja a mérés időpontjának és az elektronok kinetikus energiájának függvényében. A felső ábra azt hivatott bemutatni, hogy a 70 órás mérés során a késleltetést folyamatosan változtattuk, ezáltal egy pumpa-próba kísérletet végeztünk el. A fehér nyilak három olyan kinetikus energia- és mérési idő-tartományt mutatnak, ahol az attoszekundumos impulzus(sorozatok) időbeli karakterizálását is lehetővé tevő interferencia mintázatok megjelennek a fotoelektron spektrumban. Lásd még: [6]

Utolsó példaként egy szilárdtest felületén végzett attofizikai mérést említünk meg röviden [9]. Ezen kísérlet során a HR Condensed nyalábvonalat használtuk a NanoESCA kísérleti állomással kombinálva, ami lényegében ugyanúgy fotoelektronok energia- és momentum feloldott mérését teszi lehetővé, akárcsak a ReMi, csak gáz halmazállapotú minták helyett szilárd testek esetében. A kísérlet során a 2. ábrán láthatóval analóg jellegű pumpa-próba mérést végeztünk el, azonban a világon elsőként tudtuk ezt szilárd testben úgy elvégezni, hogy a szilárd test teljes sávszerkezetét (a teljes első Brillouin-zónát) monitorozni tudtuk. Ezáltal ki tudtuk mérni, hogy például egy grafit minta valencia sávjából az XUV foton elnyelésének eredményeként kilépő elektronok egymáshoz képest milyen késleltetéssel távoznak a szilárdtest felületéről attól függően, hogy a kilépés „időpontjában” a Brillouin-zónában hol helyezkedtek el. Ezen eredmény is egyedülálló lehetőségeket nyit az attoszekundumos szilárdtestfizika területén.



3. ábra: A HR Condensed nyalábvonalon egy femtoszekundumos XUV-IR pumpa-próba mérés koncepcionálisan időbeli kétréses kísérletként való értelmezését bemutató grafika. Az XUV foton elnyelése által az atomból kilépő elektron a $|0\rangle$ alapállapotból a $|k\rangle$ szabad (kontinuum) állapotba kerül. Ennek megfelelően adott kinetikus energiával rendelkezik, amit a jobb felső sarokban látható fotoelektron-spektrumban való megjelenésével detektálhatunk. Az atomi állapotok az időben átfedő IR impulzus miatt Stark-eltolódást szenvednek, aminek eredményeképp a különböző időpillanatokban kiszabaduló elektronok különböző kinetikus energiával rendelkeznek. Egyszerű esetben (időben szimmetrikus XUV és IR impulzusok), általában két olyan időpont van, ami azonos kinetikus energiájú fotoelektronhoz vezet, amik a fázisuktól függően konstruktívan vagy destruktívan interferálhatnak (lásd a 0, π és 2π -vel jelölt esetek). Lásd még: [8]

Felhasznált irodalom

- [1] <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2023/summary/>
- [2] Varjú Katalin, Dombi Péter, Szabó Gábor, Magyar tudomány **185**(1), 9-19 (2024). <http://dx.doi.org/10.1556/2065.185.2024.1.2>
- [3] S. Kühn et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **50** 132002 (2017). <https://doi.org/10.1088/1361-6455/aa6ee8>
- [4] M. Shirozhan et al., Ultrafast Sci. **4**, 0067 (2024). <https://doi.org/10.34133/ultrafastscience.0067>
- [5] Varjú Katalin, Dombi Péter, Börzsönyi Ádám, Fizikai Szemle **LXXIV**(9), 299-301. (2024).
- [6] T. Csizmadia et al., APL Photonics, közlésre elfogadva (2025). <https://doi.org/10.1063/5.0273558>
- [7] W. Jiang et al., Nat. Commun. **13**, 5072 (2022). <https://doi.org/10.1038/s41467-022-32753-8>
- [8] F. Vismarra et al., Phys. Rev. Lett. **135**, 033202 (2025). <https://doi.org/10.1103/73tl-w87y>
- [9] A. Bellissimo et al., “Mechanisms and Dynamics of Electron Emission from Graphitic Surfaces: Insights from Correlated and Time-Resolved Spectroscopies”, DPG Spring Meeting of the Condensed Matter Section (SKM) 2025, Talk O7 (2025).

Köszönetnyilvánítás

Az ELI ALPS projekt (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió támogatásával, az Európai Regionális Fejlesztési Alap társfinanszírozásával valósul meg. A Bolyai János Kutatási Ösztöndíj támogatásával készült.