

ATOMOK ÉS ELEKTRONOK MOZGÁSBAN

Pillanatsfelvételek femto- és attoszekundumos fényimpulzusokkal

Krausz Ferenc
Bécsi Műegyetem
Magasabb szintű Fotonikai Intézete

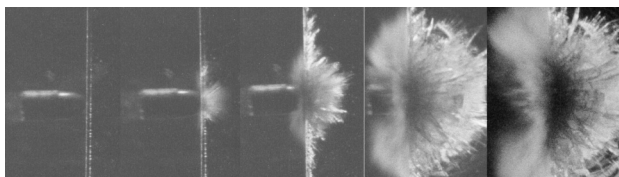
Ha egy mozgásban lévő tárgyat vagy élőlényt szeretnénk fényképezőgépünkkel megörökíteni, ügyelnünk kell az expozíciós idő helyes megválasztására. Ha ezt elmulasztjuk, könnyen megeshet, hogy az előhívott fényképen az objektum felismerhetetlenségig elmosódottan jelenik meg. Ennek az amatőr fotósok által gyakran észlelt jelenségnek egyszerű magyarázata, hogy a film megvilágítása közben az objektum jelentős mértékben elmozdult, megváltoztatta eredeti pozícióját. Éles képet ilyen körülmények között csak olyan rövid expozíciós idővel készíthetünk, amely a mozgást a felvétel ideje alatt „befagyasztja”. Minél sebesebb a mozgás, annál rövidebb megvilágítási időt kell használnunk.

Speciális nagysebességű kamerákkal az expozíciós idő a másodperc milliomodrésze, 1 mikroszekundum alá csökkenthető. Ez az idő elegendően rövid ahhoz, hogy éles pillanatsfelvételeket készítsünk még a leggyorsabb makroszkopikus objektumokról is, például egy kilőtt puskagolyóról. Az amerikai Cordin Co. (www.cordin.com) forgótükrös kamerájával gyors egymásutánban rögzített pillanatsfelvételekből az üvegbe behatoló golyó és az üveg kölcsönhatása pontosan rekonstruálható (1. ábra). Továbbfejleszhető-e ez a technika arra is, hogy tanulmányozzuk mikroszkopikus részecskék mozgását és kölcsönhatásait?

Atomok molekulákban történő mozgása alapvetően megváltoztathatja az illető anyag makroszkopikus tulajdonságait, kémiai összetételét. Utóbbi az atomközi kémiai kötések felbomlásának, illetve új kötések kialakulásának következménye. Ezek a folyamatok az atomok molekulán vagy szilárdtesten belüli eredeti egyensúlyi pozíciójukból való eltávolodásával, majd ezt követően új egyensúlyi pozíciók elfoglalásával magyarázhatók. Az elektromos áramkörök működése is mikroszkopikus részecskék – elektronok – vezető vagy félvezető kristályokban történő mozgásával értelmezhető.

Ugyanezen részecskék atomokon belüli mozgása – egy magasabb energiaállapotból alacsonyabbba történő átmenete – vezet látható fény, ultrahibolya vagy akár röntgensugárzás kibocsátásához. Hogy ezeket az alapvető természeti folyamatokat minél hatékonyabban a szolgálatunkba állíthassuk, mindenek előtt azok részletekbe menő megértése szükséges. Ehhez nyújt alapvető segítséget a fent említett és más jelenségek alapjául szolgáló mikroszkopikus folyamatok időbeli lefolyásának kísérleti tanulmányozása.

1. ábra. Pillanatsfelvételek puskagolyó ablaküvegbe való behatolásáról.



Mikroszkopikus folyamatok megörökítése: időfelbontásos spektroszkópia

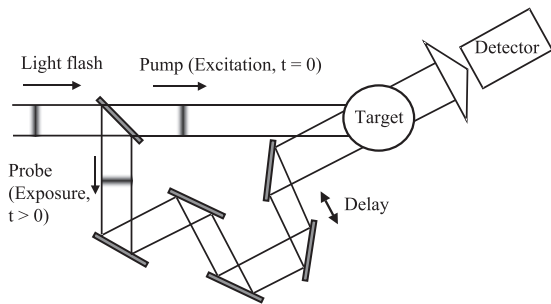
A folyamatokban résztvevő részecskék között ható elektromágneses erők és tömegek ismeretében sebességük nagyságrendje a klasszikus fizika keretei között megbecsülhető. Atomok kémia kötésük felbomlását követően rendszámuktól függően 1–10 km/s sebességgel hagyják el korábbi egyensúlyi pozíciójukat, míg az elektronok nagyságrendekkel kisebb tömegük következtében még ennél is néhány nagyságrenddel gyorsabban lehetnek.

A mikroszkopikus folyamatok követéséhez szükséges „expozíciós idő” ezek után már csak attól függ, mekkora utat kell a részecskéknek megtenni ahhoz, hogy képesek legyenek makroszkopikus szinten észlelhető változásokat, jelenségeket előidézni. Kémiai kötések elkerülhetetlen felbomlásához vezet, ha a kötésben résztvevő szomszédos atomok távolsága valamilyen külső kémiai, fizikai behatás következtében 10–30%-kal megnő, azaz az egyik atom kevesebb, mint 0,1 nm-t ($1 \text{ nm} = 10^{-9} \text{ m}$) kimozdul egyensúlyi helyzetéből.

A fent említett átlagsebességek esetében ilyen nagyságrendű elmozdulás 10–1000 fs (femtosekundum, $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) időskálán következik be. Ez több, mint egy milliószor rövidebb, mint a puskagolyó üvegbe való behatolásához szükséges idő! Nyilvánvaló, hogy ilyen rövid expozíciós idő még a leggyorsabb elektronikus kamerával sem valósítható meg. Ennek nemcsak az az oka, hogy az elektronika nem elég gyors az expozíció femtosekundumok alatt történő be- és kikapcsolásához. Ilyen rövid idő alatt hagyományos fényforrás megközelítően sem képes a felvételek elkészítéséhez szükséges mennyiségű fényenergia kibocsátására.

Ultrarövid impulzusokat kibocsátani képes lézerek 60-as évek végétől meginduló rohamos fejlődése megoldást hozott mindkét problémára. Optikai modulációs technikák kifejlesztésével a 80-as évek elejére lehetővé vált az irányított lézerefény rendkívül rövid – 100 fs körüli – impulzusok formájában történő periodikus kisugárzása. Ezzel nemcsak az ultrarövid expozíció, hanem a szükséges megvilágítási erősség is elérhetővé vált: a rövid fényimpulzus egyrészt önmaga be- és kikapcsolja a megvilágítást, másrészt ebbe a rövid időintervallumba jelentős mennyiségű fényenergia teljes mértékű koncentrációja a szükséges intenzitású megvilágítást is biztosítani tudja.

A nagysebességű fotográfia mikroszkopikus folyamatok vizsgálatára történő kiterjesztése ezek után már szinte triviális. A mozgás egymást követő fázisairól készített pillanatsfelvételeken alapuló eredeti koncepciót két vonatkozásban kellett módosítani. A rendkívül rövid

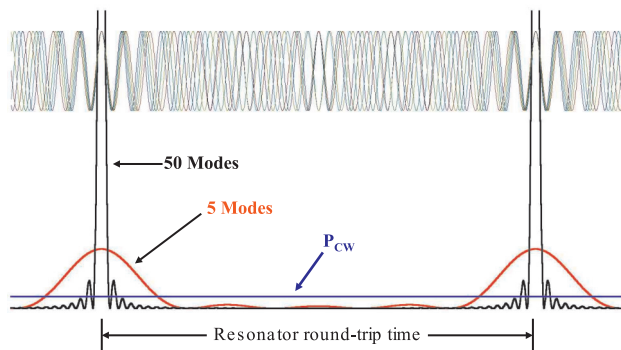


2. ábra. Sematikus kísérleti elrendezés időfelbontásos spektroszkópia megvalósítására.

időskála következményeként gondoskodnunk kell arról, hogy a pillanatfelvételeket femtoszekundumos pontossággal időzítsük a folyamat indításához. Ez csak úgy lehetséges, ha a mikroszkopikus mozgást ugyanazzal a fényimpulzussal indítjuk, amelyből a „fényképezéshez” szükséges ultrarövid villanást előállítjuk. Mint a 2. ábra mutatja, a gyakorlatban ezt néhány egyszerű optikai elemmel meg lehet valósítani. A lézertimpulzust egy nyalábosztó tükör segítségével kettéosztjuk. Az egyik (rendszerint nagyobb energiájú) részimpulzus vizsgálandó mintába történő besugárzásával gerjesztett mikroszkopikus állapotokat idézünk elő, ezzel pillanatszerűen (az impulzushossz által meghatározott pontossággal) megindítjuk a vizsgálandó folyamatot. A másik (mozgatható tükörrel, hosszabb pályával tetszőlegesen késleltetett) részimpulzus szolgál a folyamat későbbi fázisainak „lefényképezésére”. (30 mikrométer optikai úthosszkülönbség a fény 300 000 km/s-os sebességéből következően 100 fs késleltetést eredményez.)

A másik lényeges módosítás is az ultrarövid időskála következménye. Még ha sikerülne is femtoszekundumos fényimpulzusokat nagyon gyors egymásutánban előállítani, nincs az a mérőrendszer, amely képes lenne néhány száz femtoszekundumonként egy pillanatfelvételt rögzíteni. Ezért a gyakorlatban a folyamatot minden egyes felvétel elkészítéséhez változatlan körülmények között újra kell indítanunk. A mikroszkopikus mozgás különböző fázisait ily módon lépésről lépésre a folyamatot indító és azt „fényképező” impulzusok közötti időkéseletetés felvételről felvételre történő fokozatos változtatásával tudjuk megörökíteni.

Ezt a technikát a szakirodalomban időfelbontásos spektroszkópiának nevezzük, amely a nagysebességű fotográfia mikroszkopikus mozgások vizsgálatára való kiterjesztésének tekinthető. Ebben a fejezetben a „fényképezés” kifejezést idézőjelben használtuk. Az idézőjel magyarázata, hogy a mikroszkopikus részecskék mozgásáról készített pillanatfelvételek alatt nem szabad valódi fényképet értenünk, amely a részecskéket a puszkagolyóhoz hasonlóan ábrázolja. Ehelyett arról van szó, hogy a beindított mikroszkopikus folyamat megváltoztatja a vizsgált minta optikai tulajdonságait (például abszorpcióját), és a második „fényképező” impulzus ezt a változást méri a késleltetés függvényében. Az optikai tulajdonság(ok) mért időbeli változásából következtetünk a mikroszkopikus folyamatok lefolyására. Ahhoz, hogy az effektus viszonylag könnyen mérhetővé váljon, a vizsgált mikroszkopikus folyamatot rendszerint nagyszámú azonos mikroszkopikus környezetben (például molekulában) indítjuk azonos módon a kölcsönhatási térfogatban. Ily módon az ultrarövid fényimpulzus egy makroszkopikus minta makroszkopikus tulajdonságának (törésmutató, abszorpciós tényező) változását idézi elő, amely a késleltetett „fényképező” impulzussal mérhetővé válik. Az eljárás (időbeli) felbontóképességét az alkalmazott fényimpulzusok hossza határozza meg.



3. ábra. Ultrarövid impulzusok előállítása módusszinkronizációval.

roszkopikus környezetben (például molekulában) indítjuk azonos módon a kölcsönhatási térfogatban. Ily módon az ultrarövid fényimpulzus egy makroszkopikus minta makroszkopikus tulajdonságának (törésmutató, abszorpciós tényező) változását idézi elő, amely a késleltetett „fényképező” impulzussal mérhetővé válik. Az eljárás (időbeli) felbontóképességét az alkalmazott fényimpulzusok hossza határozza meg.

Femtoszekundumos lézertechnika

Néhány évvel a lézer felfedezését követően (a 60-as évek közepe táján) felismerték, hogy a lézer-rezonátor nagyszámú longitudinális módusának megfelelő fázissal való összelebegtetése folytán a rezonátorban rövid időtartamú konstruktív interferencia következtében felépül egy impulzus, amely (csakúgy, mint az egyes módusok) a rezonátorban cirkulál [1] (3. ábra). Valahányszor az impulzus megérkezik egy, a ráeső lézernyalábot nagyobb részben reflektáló, kisebb részben átteresztő rezonátortükrökhöz, az impulzus néhány százaléka kicsatolásra kerül és a lézer hasznosítható emisszióját képezi. A folyamat a rezonátor körüljárási idejének megfelelő időközönként (tipikusan $T_r \sim 10$ ns) ismétlődik és ezáltal egy periodikus impulzusvonulatot eredményez. Az impulzus τ_p hossza fordítottan arányos a fázis-szinkronizált módusok N számával és hozzávetőlegesen a $\tau_p \approx T_r/N$ formulával adható meg. Mivel a rezonátorban tárolt elektromágneses energia ebbe a rövid időintervallumba koncentrálódik, az impulzusok csúcsteljesítménye (energiájuk és időtartamuk hányadosa) sokszorososan túlszárnyalja a lézer átlagteljesítményét: $P_{csúcs} \approx N \cdot P_{átlag}$. Az eljárást a szakirodalom módus-szinkronizációként ismeri.

A módus-szinkronizációt a rezonátorban keringő lézertény periodikus amplitúdómodulációjával érhetjük el. Ha a modulátor átteresztőképessége a rezonátor körüljárási ideje alatt egyszer rövid időre (ideálisan 100%-ra) megnövekszik, akkor több módus rezgése esetén a fázis-szinkronizált állapot energetikailag kedvezőbb, hiszen a lézertér teljes energiája „átcsusszanhat” a modulátoron annak rövid ideig tartó „nyitott” állapota során, míg a folytonos sugárzást eredményező szinkronizálatlan állapotban a rezonátorban keringő sugárzás (az idő nagy részében) a modulátoron való áthaladáskor jelentős veszteséget szenved. Mint bármilyen (például mechanikai vagy elektronikus) oszcillátor, a pozitív visszacsatolás

következményeként a lézer is azt a rezgési állapotot részesíti előnyben, amely a rezonátorban az adott körülmények között maximális térenergia tárolását teszi lehetővé. A T_r periódusidejű amplitúdómoduláció jelenlétében ezt a rövid impulzust eredményező módus-szinkronizált állapot valósítja meg.

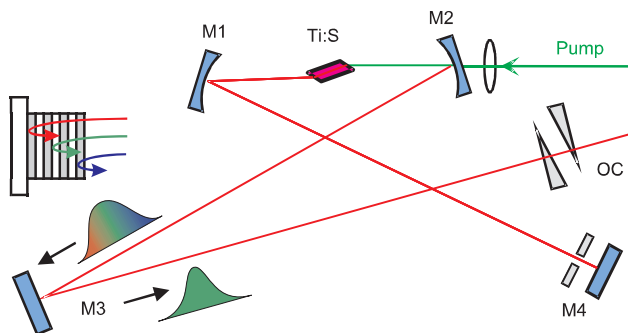
Az elektronikusan vezérelt fény-amplitúdómoduláció néhány száztól néhány ezer módus szinkronizálását és ezzel a τ_p és T_r közötti fenti összefüggésből következően pikoszekundumos ($1 \text{ ps} = 10^{-3} \text{ ns} = 10^{-12} \text{ s}$) impulzusok előállítását tette lehetővé. Lényegesen hatékonyabbnak bizonyult a módus-szinkronizáció optikailag vezérelt változata. Ebben az esetben a modulációt nem kívülről vezéreljük elektronikusan, hanem a lézerfény önmaga idézi elő egy arra alkalmas közeg optikai transzmissziójának változását. Ahhoz, hogy ez a változás módus-szinkronizációhoz vezethessen, a pillanatnyi transzmisszióknak növekednie kell a pillanatnyi fényintenzitás növekedésével. Ez biztosítja, hogy a módusok interferenciája eredményeként a rezonátorban formálódó impulzus önmaga számára (ideálisan 100%-osan) áteresztővé tehesse ezt a speciális közeget, amely a ráeső sugárzás egy részét alacsony fényintenzitás esetén elnyeli. Ebből a kölcsönhatásból megint csak az következik, hogy a rövid impulzus felépüléséhez vezető módus-szinkronizált állapot magasabb rezonátorban tárolt fényenergiához vezet, mint a folytonos emissziót eredményező szinkronizálatlan állapot. Az ily módon megvalósított módus-szinkronizációt a speciális (nemlineáris) optikai közeg segítségével maga a lézerfény idézi elő. Mivel itt – az elektronikusan vezérelt modulációval ellentétben – a megnövekedett transzmisszió időtartama az impulzussal együtt rövidül, és csúcserőteke az egyre növekvő csúcshintenzitással arányosan növekszik, ez a passzív módus-szinkronizációnak nevezett technika lényegesen hatékonyabb a rövidebb (és ezáltal intenzívebb) impulzusok előállításában, mint elődje, az aktív (elektronikus moduláció által előidézett) szinkronizáció. Passzívan módus-szinkronizált festéklézerek segítségével az 1980-as évek elején sikerült az első fényimpulzusokat a 100-femtoszekundumos tartományban előállítani, amely körülbelül 100 000 módus egyidejű fázis-szinkronizált rezgésével vált lehetővé. További jelentős technikai előrelépést a 1990-es évek elejétől a titán-zafír-lézerek elterjedésével sikerült elérni. (Itt a lézerfény kibocsátásához szükséges átmenet Al_2O_3 zafír-kristályba beágyazott titán-atomok kötött állapotai között valósul meg.)

Ez a szilárdtest-lézer minden eddiginél nagyobb sávzélességgel rendelkezik, a vörös fénytől ($\sim 600 \text{ nm}$) a közeli infravörösig ($\sim 1100 \text{ nm}$) képes fényerősítésre, amely elvileg a néhány femtoszekundumos impulzusok előállítása felé is megnyitja az utat. A lézerkristály törésmutatója nagy intenzitások esetén – a fény pillanatszerű intenzitásával arányosan – növekszik [1]. A Δn növekedés ugyan nagyon kis mértékű, de a λ lézerhullámhossznál sok nagyságrenddel hosszabb lézerkristályban ($L \gg \lambda$) mégis jelentős, $\Delta\phi = 2\pi\Delta nL/\lambda$ fáziseltolódást okozhat. Ez az intenzitással arányos fáziseltolódás a lézernyaláb optikai tengelyén a legnagyobb, amely – ugyanúgy, mint egy szemüveglencse – a nyaláb fóku-

szálásához, jelen esetben önfokuszálásához vezet. Az effektus rendkívül (a mai napig mérhetetlenül) gyors, a fókusztávolság erőssége gyakorlatilag késleltetés nélkül követi a lézerfény intenzitásának időbeli változásait. Ez a lézerkristályon áthaladt lézernyaláb átmérőjének pillanatnyi intenzitással arányos változását okozza, amelyet egy blende segítségével a rezonátorban keringő sugárzás intenzitásfüggő amplitúdómodulációjává alakíthatunk. Megfelelő átmérőjű és pozíciójű blendével elérhető, hogy a blende a legnagyobb elérhető intenzitások esetén közel 100%-os áteresztőképességgel rendelkezék, míg alacsonyabb intenzitások esetén a nyaláb jelentős hányadát (10–20%) blokkolja. Ezt a passzív módus-szinkronizációs technikát *Wilson Sibbett* és kollégái fedezték fel a 90-es évek elején [2], amely (egyszerűségének, valamint hatékonyságának köszönhetően) azóta szinte egyeduralmukodóvá vált a femtoszekundumos lézertechnikában.

Ezek után már csak egyetlen probléma várt megoldásra, a diszperzió, a fény csoportsebességének frekvenciafüggése, amely – kisebb-nagyobb mértékben – minden anyagban fellép. A szokásos normális diszperzió esetén a csoportsebesség a frekvencia növekedésével (azaz a hullámhossz csökkenésével) csökken. Ennek folyománnyaként egy ultrarövid impulzus optikai közegen (például lézerkristály) való áthaladásakor a fényhullámcsomag alacsony frekvenciájú „vörös” összetevői „előresietnek”, míg a magas frekvenciájú „kék” komponensek „lemaradnak” az impulzus közepéhez képest, amely az impulzus meghosszabbodásához vezet. A jelenség annál drámaibb méreteket ölt, minél nagyobb az impulzus sávzélessége, tehát egyre rövidebb impulzusok esetében egyre súlyosabb problémát jelent. A lézerkristály (normális) diszperzióját először a rezonátorba elhelyezett prizmákkal kompenzálták. Ezzel a technikával sikerült a titán-zafír-lézerek által előállított (vörösszínű) fényimpulzusok hosszát 10 fs környékére csökkenteni. Ezen a ponton egyszerre két újabb korlátozó tényező is szintérré lépett, mégpedig a prizmás diszperziókompenzáció, valamint a rezonátortükrök véges sávzélessége ($\sim 700\text{--}900 \text{ nm}$).

Mindkét korlátozó tényezőre megoldást hozott az a magyar találmány, amely időközben a 10 fs-os tartományban működő lézerek, illetve lézerrendszerek alapvető építőelemévé vált. A találmány, amely a szakirodalomban csörpölt vékonyréteg dielektrikum tükröként (*chirped multilayer dielectric mirror*) – röviden csörpölt tükröként – vált ismertté, lényege abban áll, hogy az azonos optikai vastagságú vékonyrétegekből álló hagyományos lézertükrökkel ellentétben itt a rétegek vastagságát a tükrök felszínétől való távolság függvényében variáljuk. Ezzel elérhető, hogy a tükrökre beeső fényhullámcsomag különböző frekvenciájú komponensei különböző mélységig hatolnak be a tükröbe, mielőtt visszaverődnének. A nagyszámú tervezési paraméternek köszönhetően (a rétegszám elérheti a 70-et) a csörpölt tükrök a prizmákhoz képest lényegesen szélesebb frekvenciatartományban képesek a titán-zafír-kristály (és más optikai közegek) diszperzióját pontosan kompenzálni. További előnyük, hogy a hagyományos lézertükrökhöz képest magas reflexiójú hullámhossz-tarto-



4. ábra. Csörpölt tükrökkel felépített femtoszekundumos titán-zafír lézer.

mányuk is jóval szélesebb. Az új diszperziókompenzációs technika feleslegessé tette a prizmák használatát, ezáltal megnyitván az utat a lehető legegyszerűbb felépítésű femtoszekundumos lézer megalkotása felé (4. ábra).

Ez a lézer, amely ma már a világ több száz laboratóriumában áll a tudomány szolgálatában, mindössze egy néhány milliméter hosszúságú titán-zafír-kristályt, néhány nagy sáv szélességű csörpölt tükröt, egy kicsatoló-tükröt, valamint egy blendét tartalmaz. Egyszerűsége ellenére rutinszerűen állít elő 8–10 femtoszekundumos fényimpulzusokat. Az első csörpölt tükröt 1993-ban Szípcős Róbert tervei alapján Kárpát Ferenc készítette az MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézetében, amelyek a Bécsi Műszaki Egyetemen kerültek (sikeres) kipróbálásra egy (azóta is tartó) kutatási együttműködés keretében [3]. Azóta lényegében a csörpölt tükrök tervezési és előállítási technikájának fejlődése határozza meg a femtoszekundumos lézertechnika teljesítőképességét. Segítségükkel időközben nagyteljesítményű, 4 femtoszekundumos impulzusokat sikerült előállítani 750 nm-es hordozóhullámhosszon [1], ahol a fény elektromágneses terének rezgési periódusa 2,5 fs.

Fényimpulzusunk tehát kevesebb, mint két oszcillációs periódusban hordozza energiájának 90%-át! Ez azt jelenti, hogy elérkeztünk egy végső, a fény hullámhossza által megszabott elvi korlát közvetlen közelébe, amely a látható fényvel előállított legrövidebb impulzusok hosszát néhány femtoszekundumra korlátozza. A hullámhosszal való összehasonlítás segítséget nyújt a szóban forgó időtartamok szinte elképzelhetetlen rövidségének érzékeltetéséhez: 4 femtoszekundumos időtartama alatt az impulzus kevesebb, mint két hullámhosszt, azaz 1,5 mikrométert halad előre, 300 000 km/s-os terjedési sebessége ellenére! Ilyen rövid időtartamokat természetesen még a leggyorsabb elektronikus mérés-technika sem képes megmérni. Szerencsére a femtoszekundumos lézertechnika fejlődésével párhuzamosan kifejlesztésre kerültek a fényimpulzus autokorrelációján alapuló mérési módszerek, amelyek segítségével ma megbízhatóan mérni tudjuk nem csak az impulzus hosszát, hanem időbeli alakját is, egészen a legrövidebb, néhány femtoszekundumos időtartamokig.

Ezekkel a fényimpulzusokkal a leggyorsabb kémiai átalakulások is követhetővé válnak, hiszen még a legkisebb rendszámú, azaz legkönnyebb atomnak, a hidrogén-atomnak is néhány femtoszekundumra van szüksége

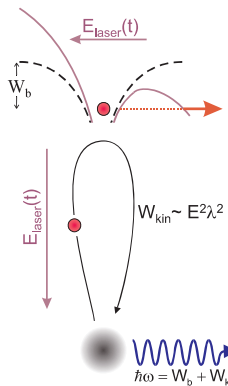
ahhoz, hogy kémiai folyamatok során valamely molekulához való kötődéséből kiszabadulva 0,1 nanométer nagyságrendű (azaz kémiai kötése hosszával összemérhető) utat megtegyen. A femtoszekundumos lézertechnika térhódítását és jelentőségét a kémiai folyamatok kísérleti vizsgálatában mi sem bizonyítja jobban, mint az 1999-es kémiai Nobel-díj, amelyet a femtokémia létrehozásában szerzett érdemeiért Ahmed Zewailnak, a Kaliforniai Műegyetem professzorának ítéltek.

Időközben a kutatási terület rohamosan továbbfejlődött. A femtoszekundumos fényimpulzusokat már nem csak az atomok molekulákban végbemenő mozgásának tanulmányozására használják, hanem időközben ezen mikroszkopikus mozgás irányítására is sikeresen bevetették. Ezzel első alkalommal nyílik lehetőség molekuláris, azaz kémiai, biokémiai folyamatok mikroszkopikus szinten történő tudatos befolyásolására, kontrollálására! A lépés hordereje aligha túlbecsülhető!

A fentiek összegzéseként nyugodtan kijelenthetjük, hogy a femtoszekundumos fényimpulzusok, illetve mérés-technikák megjelenése forradalmi előrelépéseket hozott az atomok molekulákban, illetve szilárdtestekben való mozgásának közvetlen (időtartománybeli) kísérleti vizsgálata területén. De lehetséges-e még ennél is „mélyebbre” hatolni az anyag mikroszkopikus folyamatainak megismerésében és betekintést nyerni az atomok belsejébe, azok gerjesztését követő elektronikus folyamatok időbeli lefolyásába? Mint a fentiekben említettük, ehhez számos esetben 1 femtoszekundumnál is rövidebb, attoszekundumos impulzusokra lenne szükségünk (1 as = 10^{-3} fs) a szóban forgó elektronikus gerjesztési és relaxációs folyamatok rendkívüli sebessége miatt. Néhány hete ez sem látszik lehetetlennek.

Attoszekundumos impulzusok és mérés-technika

A fent elmondottakból következik, hogy 1 femtoszekundumnál rövidebb impulzusokat csak a látható fénynél lényegesen rövidebb hullámhosszú sugárral lehet esélyünk előállítani. Az extrém ultraibolya (XUV), illetve a még rövidebb hullámú röntgensugarak elegendően rövid hullámhosszal rendelkeznek attoszekundumos impulzusok előállításához. Jóllehet számos XUV- és röntgenforrás áll régóta a tudomány, technika és gyógyítás területén alkalmazásban, a hagyományos források egyike sem képes még a femtoszekundumos időtartomány megközelítésére sem. A 90-es évek elején felfedeztek egy új rövid hullámú fénysugárforrást, amely felcsillantotta a reményt a látható fény rezgési periódusánál rövidebb impulzusok előállítására. Az új, lézernyalábhoz hasonló tulajdonságú XUV és (lágy) röntgensugarat gáz halmazállapotban lévő atomok nagyintenzitású femtoszekundumos lézerimpulzusokkal történő besugárzásakor észlelték kutatók [4, 5]. A sugárzás spektruma diszkrét vonalakkal, a lézerfrekvencia magas, páratlan-rendű felharmonikususaiból áll, ezért magasrendű felharmonikus sugárzásnak (*high-order harmonic radiation*) nevezték el. A sugárzás eredetét Paul Corkum kanadai kutatónak sikerült

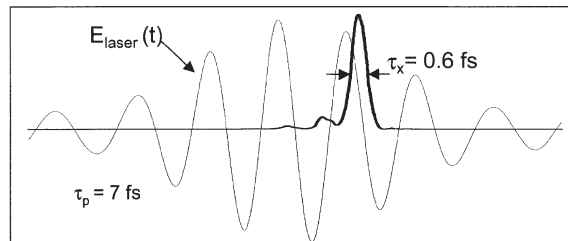
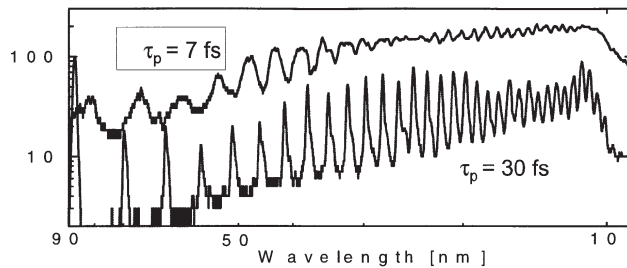


5. ábra. Magasrendű felharmonikuskeltség atomokban.

röviddel később egy szemléletes, félklasszikus modell segítségével megmagyarázni [6].

E szerint a rövid hullámú, XUV- és röntgenemisszió három, a besugárzott lézertény egyetlen rezgési periódusán belül lejátszódik, elemi folyamat eredménye (5. ábra). Első lépésben a nagyintenzitású ($I_{csúcs} \approx 10^{15} \text{ W/cm}^2$) lézerimpulzusban az elektromos mező oszcillációs csúcserőke környékén elegendően erőssé válik ahhoz, hogy az atom legkülső (leggyengébben kötött) elektronja által érzett sztatikus Coulomb-teret rövid időre (a rezgési félperiódus töredékére) olyan mértékig deformálja, hogy az elektron jelentős valószínűséggel képes legyen a alagúteffektus segítségével atomi kötött állapotából kiszabadulni. Ezt a folyamatot optikai térionizációnak nevezzük. Az atom kötelékéből kiszabaduló elektron-hullámcsomag időtartama a lézertény félperiódusának töredéke lehet, hiszen a lézertér csökkenésével a potenciálgát nagyon gyorsan áthatolhatatlanná válik. Ez 1 fs körüli félperiódus esetén néhány száz attoszekundumos időtartamot jelent.

Kiszabadulását követően az elektron-hullámcsomagot a nagyerejű lézertér először eltávolítja az atomtörzstől. Ha a lézertér lineárisan polarizált (azaz az elektromos és mágneses térerősség iránya rögzített) – és itt ezt feltételezzük –, akkor fél rezgési periódussal később az elektron mozgásiránya megfordul és az elektromos térerősség a teljes rezgési periódus befejezése előtt visszatéríti az atomtörzshöz. A visszatérő elektron mozgási energiája arányos a stacionárius körülmények között a lézertérben rezgő szabad elektron átlagos rezgési energiájával: $W_{kin} \propto W_{rezg} = e^2 E_a^2 / 4m_e \omega^2$. (e és m_e az elektron töltését és tömegét, E_a és ω pedig a lézer elektromos terének rezgési amplitúdóját és körfrekvenciáját jelölik.) Érzékenyen függ kiszabadításának pillanatától, utóbbi optimális értéke esetén a mozgási energia a visszatérés pillanatában az átlagos rezgési energia háromszorosát is elérheti: $W_{kin} \approx 3W_{rezg}$ [6]. Az elektron (kicsiny, de véges valószínűséggel bekövetkező) eredeti kötött állapotba való rekombinációja esetén ez az energia egy foton kisugárzásával felszabadul. Az emisszió fotonenergia-spektruma (az energia-megmaradás következményeként) megegyezik a visszaérkező elektron (kötési energiával megnövelt) energiaspektrumával, amely zérustól $\approx 3W_{rezg}$ értékig terjed. A lézerimpulzus csúcán, $I_{csúcs} \approx 10^{15} \text{ W/cm}^2$ és $\lambda \approx 750 \text{ nm}$ esetén a fotonenergia-spektrum közel 200 eV



6. ábra. Femtoszekundumos lézerimpulzusokkal keltett extrém ultraibolya felharmonikusok (felső ábra), felharmonikus-sugárzás szimulált időbeli lefolyása a $90 \pm 2,5 \text{ eV}$ -os tartományban 7 fs-os lézerimpulzusok esetén (alsó ábra).

energiáig terjed, amely 10 nm-nél rövidebb hullámhosszú lágy röntgensugár emisszióját jelenti. A modell (és kvantummechanikai számítások) szerint a nagyenergiájú fotonemisszió időtartama a maximális fotonenergia közelében akár 100 as rövidegű is lehet.

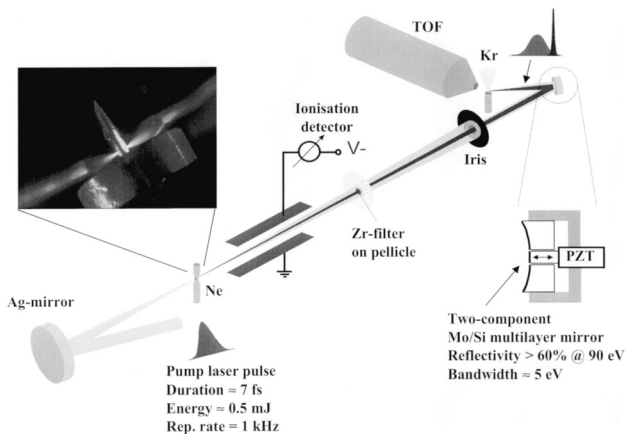
A fent leírt folyamat a beeső lézertény egyetlen rezgési periódusa alatt játszódik le. A folyamat minden rezgési félperiódusban (amikor a rezgő elektromos térerősség maximális), az alagúteffektussal újraindul, mindaddig, amíg az elektromos mező megfelelő erősséggel rezeg, illetve az alapállapot ki nem ürül. Ha a lézerimpulzus sok rezgési ciklusból áll ($\tau_p \gg 10 \text{ fs}$), akkor a fenti mikroszkopikus folyamat periodikus ismétlődésének közvetlen következménye, hogy a kibocsátott sugárzás emissziós spektruma diszkrét, a megjelenő vonalak a beeső lézertény magas (szimmetria-okokból páratlan-rendű) felharmonikusainak felelnek meg (lásd a $\tau_p = 30 \text{ fs}$ -os lézerimpulzusokkal mért görbét a 6. ábra felső részén). Jóllehet a számítások szerint az egyes röntgenimpulzusok időtartama legfeljebb néhány száz attoszekundumos, az a tény, hogy az emisszió nem egyetlen impulzusból, hanem gyors egymásutánban (körülbelül 1 fs-onként) egymást követő impulzusok vonulatából áll, jelentős problémákat okozna spektroszkópiai alkalmazásokban. Képzelnék el, hogy egy gyorsan mozgó tárgy fényképezése során filmünk nemcsak egyszer, hanem gyors egymásutánban többször is megvilágításra kerül. Bármilyen rövidke legyenek is az egyes expozíciók, ha a tárgy elmozdul az expozíciós sorozat teljes időtartama alatt, a kép elmosódott lesz. Ezért célunk egyes izolált impulzusok előállítására, amennyiben az impulzushossznak megfelelő időfelbontással szeretnénk mikroszkopikus folyamatokat tanulmányozni.

Számítások szerint a fent leírt felharmonikus-keltési folyamat egyetlen attoszekundumos röntgenimpulzust eredményezhet, ha a besugárzott lézerimpulzus mindössze néhány rezgési ciklusból áll ($\tau_p < 10 \text{ fs}$), és az emissziós spektrumból kiszűrjük a legnagyobb energiájú

fotonokat. Ilyen rövid lézerpulzusok esetén az utóbbiak előállításához szükséges térerősség csak egyetlen rezgési ciklusban (a lézerpulzus közepén) áll rendelkezésre! A 6. ábra alsó részén a folytonos vonal 7 fs-os, 750 nm-es lézerpulzusok által generált 90 eV energiájú (lágú) röntgenemisszió számítások által előrejelzett időbeli lefolyását mutatja. A körülbelül 500 attoszekundumos impulzushossz alig hosszabb, mint a számításokban használt sávszűrő 5 eV sávzélességével elméletileg elérhető legkisebb érték (azaz az impulzus gyakorlatilag sávzélesség-limitált). Ebből az elméleti előrejelzésből következik, hogy az emissziós spektrumnak folytonossá kell válnia. A 6. ábra felső részén ábrázolt kísérletileg előállított sugárzás spektruma a legnagyobb fotonenergiák tartományában (80–120 eV) valóban folytonossá válik. A folytonos spektrum azonban mindössze azt jelzi, hogy az adott energiájú röntgensugarak egyetlen impulzus formájában kerülnek kisugárzásra. Az impulzus hosszáról ez a mérés nem szolgáltat információt, mert a spektrális komponensek fázisait nem ismerjük!

Az elméleti vizsgálatok által megkövetelt paraméterekkel rendelkező lézerpulzusok a titán–zafír-lézer hullámhossztartományában ($\tau_p < 10$ fs, $\lambda \approx 750$ nm, $P_{csúcs} \approx 10^{11}$ W) már csaknem 5 éve rendelkezésünkre állnak [1], ezekkel majdnem ilyen régóta generálunk felharmonikus-sugárzást [7]. A röntgenimpulzus időtartamának mérése azonban lényegesen nehezebb feladatnak bizonyult, mint az impulzus előállítása, mert a látható fénynél alkalmazott autokorrelációs technikák a röntgenimpulzusok viszonylag alacsony intenzitása és az anyag röntgentartománybeli gyenge polarizálhatósága miatt nem vezethettek eredményre. Ezért az intenzív femtoszekundumos lézerpulzussal való korreláció látszott az egyetlen járható útnak. De hogyan lehet egy 5–10 fs-os lézerpulzussal való korrelációból egy esetlegesen 1 femtoszekundumnál is rövidebb röntgenimpulzus időtartamát megbízhatóan meghatározni?

Ez csak akkor elképzelhető, ha a fizikai mennyiség, amelyet a két impulzus közötti késleltetés függvényében mérünk, a röntgenimpulzus pillanatnyi intenzitásának (vastag vonal a 6. ábra alsó részén) és a lézerpulzus pillanatnyi *elektromos térerősségének* (vékony vonal a 6. ábra alsó részén) szorzatával arányos. Ebben az esetben a mérendő fizikai mennyiség a röntgenimpulzus késleltetésének változásával követné az elektromos mező oszcillációját. Ha a röntgenimpulzus hosszabb a lézer félperiódusánál, úgy az oszcilláció „elmosódik”, azt a túlságosan hosszú röntgen-„expozíció” nem képes felbontani. A mért fizikai mennyiség lézer elektromos tere által okozott oszcillációja annál kihangsúlyozottabban kerül napvilágra (annál „mélyebben” modulált a két impulzus közötti késleltetés függvényében), minél rövidebb a röntgenimpulzus időtartama a lézer félperiódusához képest. Ahogy az előbbi az utóbbi töredékére (körülbelül tizedére) csökken, a korrelációs függvény modulációs mélysége eléri elméleti maximumát, következésképp a röntgenimpulzus időtartamának további rövidülése esetén tovább nem változik, azaz az ilyen rövid impulzusok a módszerrel már nem mérhetőek. A lézer félperiódusának körülbelül 1 femtoszekundumos hossza esetén tehát a modulá-

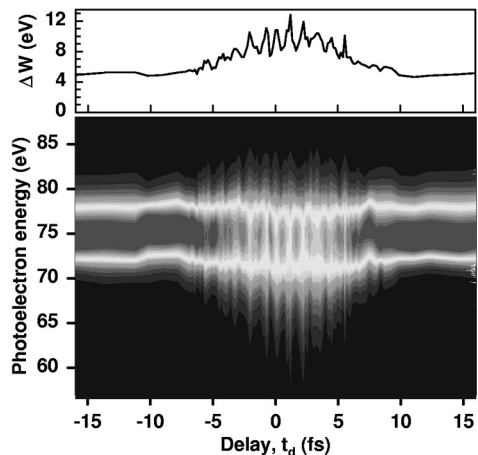


7. ábra. Attoszekundumos XUV impulzusok időtartamának mérése.

ciós mélység a röntgenimpulzushossz 0,1–1 fs (100–1000 as) közötti tartományában változik és ezzel lehetővé teszi annak meghatározását. A közelmúltban, hosszas előkészítést követően, sikerült ezt a mérési elvet a gyakorlatba átültetnünk.

A mérési elrendezést a 7. ábra mutatja [8]. Első lépésben 7 femtoszekundumos, 0,5 millijoule energiájú, 750 nm lézerpulzusokkal felharmonikus sugárzást állítunk elő neon-gázban, amelynek spektruma 120 eV-ig (~10 nm hullámhosszig) terjed. A koherens felharmonikus sugár az öt generáló lézersugárral kollinearisan terjed, rövidebb hullámhossza következtében a lézernyalábnál jóval rövidebb divergenciával. A két sugár egy (két részből álló) Mo/Si vékonyréteg fókuszálótükörre esik, miután a kisebb átmérőjű röntgenyaláb áthalad egy a lézersugarat a röntgenyaláb keresztmetszetében blokkoló vékony fémfólián (cirkónium). A röntgenyaláb keresztmetszetén kívül a lézernyaláb akadálytalanul haladhat, míg el nem éri a kétkomponensű tükört, amelynek külső része visszaveri. A „lyukas” lézernyalábban belül halad a röntgenimpulzus, amelyet a Mo/Si tükör belső része 90 eV fotonenergia környékén ~5 eV sávban reflektál. A tükör belső részét egy piezoelektromos kristály segítségével tudjuk a külső részhez képest mozgatni nanométeres pontossággal, amely attoszekundumos pontossággal változtatható késleltetést valósít meg a röntgen-, illetve lézerpulzus között. A két nyaláb végül a tükör fókuszában egy vékony csövecskéből kiáramló kripton-gázban találkozik.

Itt a röntgenimpulzus a lézertér jelenlétében ionizálja a kripton-atomokat. Az ionizáció során kiszabaduló elektronok kezdeti energiája a röntgen-fotonenergia ($\sim 90 \pm 2,5$ eV) és az elektron-kötési energia (~ 14 eV) különbsége, azaz $\sim 76 \pm 2,5$ eV. Mivel a szabadrá váló elektronok erős lézermezőben találják magukat, utóbbi befolyásolja mozgásukat, ezáltal kinetikus energiájukat. Egyszerűen megmutatható, hogy az energiaváltozás az elektron kiszabadulásának pillanatában uralkodó elektromos térerősség függvénye, amely így a röntgen- és lézerpulzus közötti késleltetés függvényében periodikusan változik. Ez a periodikus változás persze akkor és csak akkor mérhető, ha a röntgenimpulzus rövidebb 1 fs-nál. A fotoelektronok energiáját egy repülési idő detektorral mérjük a lézer- és röntgenpolarizációra me-



8. ábra. Erős lézertér jelenlétében generált röntgen-fotoelektron spektrum (alsó ábra) és annak félértékszélessége (felső ábra) a röntgenimpulzus (650 as) és a lézerimpulzus (7 fs) közötti késleltetés függvényében.

rőleges irányban. Ebből a detektálási geometriából következik, hogy a felfelé vagy lefelé mutató lézer-térfősség szimmetriaokokból ugyanolyan változást okoz a mért elektron-energiaspektrumban, azaz a késleltetéssel fellépő várt moduláció periódusa *fele* a lézer periódusának. Ez azt jelenti, hogy moduláció észlelését csak akkor várhatjuk, ha a röntgenimpulzus hossza *jelentősen* rövidebb a lézer körülbelül 1,2 fs-os félperiódusánál.

A mérési eredményt a 8. ábra mutatja [9]. Az elektronok kinetikus energiájának spektruma a késleltetés függvényében szignifikáns modulációt mutat, amelynek periódusa az elméleti előrejelzésnek megfelelően megegyezik a lézer félperiódusával. A moduláció esetünkben (az elmélettel összhangban) elsősorban a spektrum szélességének változásában jelenik meg. A spektrális szélesség periodikus változásában észlelt ~50%-os modulációs mélység a röntgenimpulzus időtartamát $\tau_x = 650 \pm 150$ as értékűnek határozta meg, jó egyezésben az elméleti előrejelzéssel. Ezzel első alkalommal sikerült 1 femtoszekundumnál rövidebb időtartamú elektromágneses impulzust generálnunk. A mérési eredményből, amelynek minden egyes késleltetéshez tartozó spektrumához sok ezernyi lézerimpulzus által generált jel akkumulálásával jutottunk, azt a spektroszkópiai alkalmazások szempontjából rendkívül fontos következtetést is levonhatjuk, hogy az attoszekundumos röntgenimpulzus attoszekundumos pontossággal szinkronizált az öt előállító néhány femtoszekundumos időtartamú fénycsillámmal képest. A mérésekből az is egyértelműen következik, hogy az elektron kötött állapotból szabad állapotba történő átmenete a gerjesztést néhány száz attoszekundumon belül követi. A nem különösebben meglepő eredmény jelentőségét az a tény adja, hogy az első attoszekundumos spektroszkópiai mérésnek te-

kinthető. Végül említésre méltó, hogy az attoszekundumos röntgenimpulzussal előállított fotoelektron-spektrum 8. ábrán mutatott változásai első alkalommal szolgáltatnak közvetlen (időfelbontott) fényképet a látható fény rezgéseiről! Több, mint száz év telt el *Hertz* híres kísérlete óta, amellyel bebizonyította, hogy a fény elektromágneses hullám, míg végre sikerült ezeket a hullámokat egy „fényképen” láthatóvá tennünk.

Az itt bemutatott mérési elrendezéssel első alkalommal válik lehetővé elektronok atomon belüli gerjesztése, relaxációja, valamint elektron-elektron kölcsönhatások időbeli lefolyásának kísérleti vizsgálata. Optikai térionizáció, belső héjon megüresedett állapot betöltése, belső állapotok közötti lebegés – megannyi alapvető atomfizikai folyamat, amelynek közvetlen, időtartománybeli kísérleti vizsgálatára eddig nem volt lehetőség. Az új kísérleti technikából fakadó lehetőségek teljes skáláját aligha lehetséges megjósolni. A tapasztalat azt mutatja, hogy gyakran éppen azok az alkalmazások válnak a legjelentősebbekké, amelyekre a kutatók az új módszerek, technikák kidolgozásakor nem is gondoltak. Egy-két év múlva talán már lényegesen többet tudunk. Remélem, hamarosan lesz okom és lehetőségem a Fizikai Szemle tisztelt olvasóit a további fejleményekről tájékoztatni.

Mivel budapesti egyetemem tanulmányaimat követő pályafutásom során ez az első anyanyelvemen megírt dolgozat, szeretném megragadni az alkalmat, hogy megköszönjem tanárainknak, *Marx Györgynek* és *Simonyi Károlynak* azt a szeretettel és érdeklődéssel, amelyet a kvantummechanika és elektrodinamika iránt belémoltottak, továbbá első tudományos témavezetőimnek, *Bakos Józsefnek*, hogy figyelemet egy (nem csak engem) lebilincselő kutatási terület irányába fordította.

Irodalom

1. T. BRABEC, F. KRAUSZ: *Intense few-cycle laser fields: frontiers of nonlinear optics* – Rev. Mod. Phys. 72(2000) 545–592
2. D.E. SPENCE, P.N. KEAN, W. SIBBETT: *60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser* – Opt. Lett. 16(1991) 42–44
3. R. SZIPŐCS, K. FERENCZ, CH. SPIELMANN, F. KRAUSZ: *Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers* – Opt. Lett. 19(1994) 201–203
4. J.J. MACKLIN, J.D. KMETEC, C.L. GORDON: *High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses* – Phys. Rev. Lett. 70(1993) 766–769
5. A. L'HUILLIER, P. BALCOU: *High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser* – Phys. Rev. Lett. 70(1993) 774–777
6. P.B. CORKUM: *Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization* – Phys. Rev. Lett. 71(1993) 1994–1997
7. CH. SPIELMANN, N.H. BURNETT, S. SARTANIA, R. KOPPITSCH, M. SCHNÜRER, C. KAN, M. LENZNER, P. WOBRAUSCHER, F. KRAUSZ: *Generation of coherent X-rays in the water window using 5-fs laser pulses* – Science 278(1997) 661–664
8. M. DRESCHER, M. HENTSCHEL, R. KIENBERGER, G. TEMPEA, CH. SPIELMANN, G.A. REIDER, P. CORKUM, F. KRAUSZ: *X-ray pulses approaching the attosecond frontier* – Science 291(2001) 1923–1927
9. M. HENTSCHEL, R. KIENBERGER, CH. SPIELMANN, G.A. REIDER, N. MILOSEVIC, T. BRABEC, P. CORKUM, U. HEIZMANN, M. DRESCHER, F. KRAUSZ: *Attosecond metrology* – Nature 414(2001) 509–513

Szerkesztőség: 1027 Budapest, II. Fő utca 68. Eötvös Loránd Fizikai Társulat. Telefon/fax: (1) 201-8682

A társulat Internet honlapja <http://www.kfki.hu/~elfthp>, e-mail címe: mail.elft@mtesz.hu

Kiadja az Eötvös Loránd Fizikai Társulat, felelős: Marx György, szerkesztő: Turiné Frank Zsuzsa,

nyomdai előkészítés: Kármán Tamás, nyomdai munkálatok: OOK-PRESS Kft., felelős vezető: Szathmáry Attila ügyvezető igazgató.

Terjeszti az Eötvös Loránd Fizikai Társulat, előfizethető a Társulathoz vagy postautalványon a 10200830-32310274-00000000 számú egyszámlán.

Megjelenik havonta, egyes szám ára: 500.- Ft + postaköltség.

HU ISSN 0015-3257