

Atosekundni sunki svetlobe: Nobelova nagrada za fiziko 2023

dr. Aleš Mohorič

Univerza v Ljubljani, Fakulteta za matematiko in fiziko

Nobelova nagrada za fiziko je bila leta 2023 podeljena za razvoj eksperimentalnih metod ustvarjanja atosekundnih sunkov svetlobe za proučevanje dinamike elektronov v snovi [1]. Nagrado so si v enakih deležih razdelili Pierre Agostini, Ferenc Krausz in Anne L'Huillier.

Pierre Agostini je francoski eksperimentalni fizik in zasluzni profesor na državni univerzi v Ohiu. Ferenc Krausz je madžarsko-avstrijski fizik, direktor Inštituta Max Planck za kvantno optiko in profesor eksperimentalne fizike na Univerzi Ludwiga Maximiliana v Münchnu v Nemčiji. Anne L'Huillier je francoska fizičarka in profesorica atomske fizike na Univerzi v Lundu na Švedskem.

Kaj je posebnega na atosekundnih laserskih sunkih? Najprej to, da so zelo, zelo kratki. Atosekunda je tolikšen del sekunde, kot je pol sekunde del starosti vesolja – trilijonina sekunde, 10^{-18} s. Sunek (energije, valovanja ipd.) si običajno zamislimo in izvedemo tako, da vir valovanja vključimo za kratek čas. Tudi z lasersko svetlobo lahko naredimo podobno. Krajše trajanje sunka pomeni manj nihajev elektromagnetnega valovanja – svetlobe. Zdi se, da spodnjo mejo dosežemo, če ustvarimo en sam nihaj. Nihaj vidne svetlobe pa traja nekaj femtosekund. Elektronska ali mehanska stikala odpovedo že veliko prej. Tu pride na pomoč interferenca. Večrodovni laserji generirajo svetlobo, ki jo sestavljajo valovanja podobnih valovnih dolžin, in ta valovanja interferirajo med seboj tako, da nastane zaporedje kratkih sunkov. Matematično bi nastanek lahko opisali s Fourierovo transformacijo, pa

se tu ne bomo spuščali tako globoko. Upam, da nas pričra pogled na sliko 2 b). Pogoj za nastanek sunkov je koherenca valovanj, torej medsebojna faza delnih valovanj se ne sme hitro in naključno spreminjati.

Tipičen nihajni čas vidne svetlobe je $t_0 = \frac{\lambda}{c} = \frac{6 \cdot 10^{-7}}{3 \cdot 10^8} \text{ s} \approx 2 \text{ fs}$. V sunkovnem laserju dosežemo sunke, katerih dolžina je tega velikostnega reda. Še vedno pa nas velikostni redi ločijo od atosekundnih laserskih sunkov.

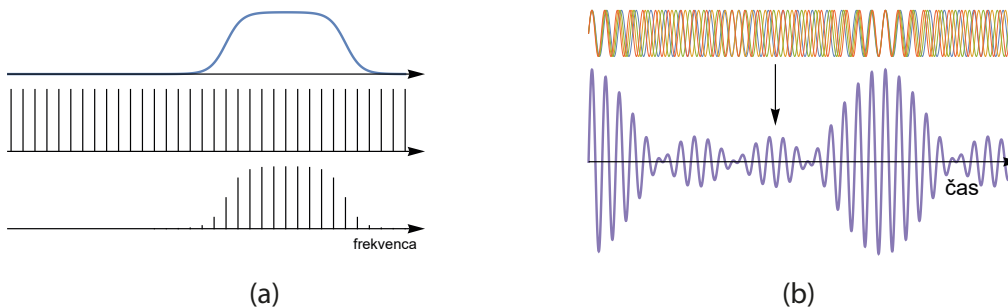
Zakaj bi želeli še krajše svetlobne sunke, mar niso že femtosekundni dovolj kratki? S kratkimi laserskimi sunki lahko zaznamo hitre pojave, npr. gibanje delcev. Čim krajši je čas osvetlitve, manj je lega zabrisana zaradi gibanja. S femtosekundnimi sunki lahko zaznavamo lego atomov v molekuli, elektroni pa so nekaj velikostnih redov lažji, zato so hitrejši in za zaznavanje njihove lege v molekulah potrebujemo nekaj velikostnih redov krajše sunke. Z zgoščevanjem svetlobe v sunke dosežemo tudi znatno višje vršne svetlobne moči. Namesto konstantne manjše moči dobimo v sunkih večjo moč. Zato lahko sunkovne laserje uporabljamo tudi za dovajanje energije, npr. za laserske operacije oči.

Kakšna je časovna skala za pojave na atomskem nivoju? Klasično si oglejmo elektron v osnovnem stanju vodikovega atoma pri Bohrovem radiju $a_0 = \frac{\epsilon_0 \hbar^2}{\pi e^2 m_e} = 52 \text{ pm}$, kar je tipična velikost atomov. V izrazu nastopajo električna konstanta, Planckova konstanta, osnovni naboj in masa elektrona. Elektrostatični privlak z jedrom – pripišimo



Slika 1: Od leve: Pierre Agostini, Ferenc Krausz in Anne L'Huillier.

Foto: ameriška ambasada na Švedskem, Thorsten Naeser in Bengt Oberger.



Slika 2: Spekter svetlobe večrodovnega laserja pojasnimo s slikami v stolpcu a). Zgornja slika kaže frekvenčni pas, na katerem je mogoče lasersko ojačevanje svetlobe, srednja kaže spekter lastnih nihajnih načinov, ki jih lahko vzbudimo v laserskem resonatorju, spodnja slika kaže spekter svetlobe večrodovnega laserja, v katerem je – kot že ime pove – hkrati vzbujenih več laserskih nihanj. Na primer tipični helij-neonski laser ima pas valovnih dolžin približno 0,002 nm pri osrednji valovni dolžini 633 nm, medtem ko ima s titanom dopiran safirni laser pas valovnih dolžin širok več kot 500 nm pri osrednji valovni dolžini 800 nm. Zato je v helij-neonskem laserju vzbujeno eno samo lastno resonatorsko nihanje, v titan-safirnem pa zelo veliko. Helij-neonski laser je zvezno delujoč, titan-safirni pa izrazito sunkovno. Slika b) prikazuje, kako seštevanje valovanj s podobno valovno dolžino generira sunke. Ti nastanejo zaradi ujemanja faze delnih valovanj.

mu en osnovni naboj, ostanek je senčen z oblakom notranjih elektronov (natančneje to opišemo z efektivno vrednostjo naboja e_{ef}) – povzroča centripetalno silo, ki elektron pospešuje v krožnico okoli jedra:

$$\frac{e_0^2}{4\pi\epsilon_0 a_0^2} = \frac{m_e 4\pi^2 a_0}{t_0^2}.$$

Obhodni čas takega elektrona ocenimo:

$$t_0 = \sqrt{\frac{16\pi^3 \epsilon_0 a_0^3 m_e}{e_0^2}} \approx 10^{-16} \text{ s} = 0,1 \text{ fs} = 100 \text{ as}.$$

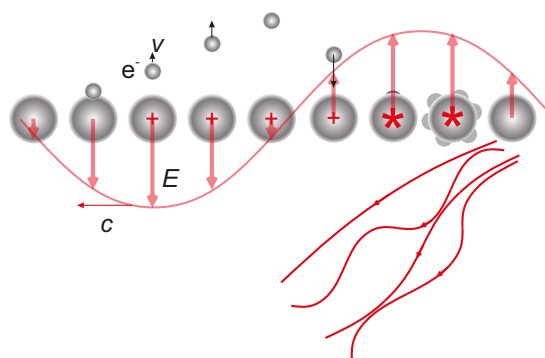
Tudi kvantni razmislek nam ponudi podobno oceno. Tipični čas pri prehodih med stanji z energijsko razliko $\Delta E = h\nu$ je reda 400 as, če upoštevamo velikostni red energijskih razlik 10 eV. Torej s femtosekundnimi sunki lahko opazujemo zgolj neko povprečno lego elektrona v atomu ali molekuli. Svojevrsten izziv pa predstavlja zaznavanje lege na atosekundni časovni skali.

Za atosekundne sunke potrebujemo svetlobo s precej višjo frekvenco, daljno ultravijolično ali celo mehko rentgensko svetlobo. Svetlobo z višjo frekvenco dobimo z nelinearnim optičnim pojavom, z generacijo višjih harmonikov [2]. Podoben pojav je sicer dokaj znan – večina zelenih laserjev z valovno dolžino 532 nm, ki jih uporabljamo kot laserske kazalnike, deluje tako, da laser z valovno dolžino 1064 nm generira infrardečo svetlobo. Tej se pri prehodu skozi poseben kristal podvoji frekvenca. Ko svetloba vpade na tak kristal, v njem vzbuja nihanje elektronov. Ti so vezani v nesimetričnem potencialu in v njihovem nihanju se pojavijo višje harmonične komponente, najmočnejša je pri drugem harmoniku. Pojav lahko razumemo tudi kot hkratno absorpcijo dveh fotonov nižje energije in izsevanje fotona s skupno energijo. Vendar pa frekvenčno podvojevanje ne zadošča za doseganje dovolj visokih frekvenc za generiranje atosekundnih sunkov. Višje harmonike dobimo tako, da z močno lasersko svetlobo ioniziramo snov. Običajno z infrardečim

laserjem ioniziramo žlahtni plin, pri tem se ionizacijski elektron pospeši, vrne do atoma ter pri tem izseva energijo. Shematično proces kaže slika 3.

Proces generacije višjih harmonikov svetlobe opišemo v treh korakih [3, 4]. V prvem električno polje laserske svetlobe spremeni coulombski privlačni potencial vezane elektrona z $\varphi_c = -\frac{e_{ef}}{4\pi\epsilon_0 r}$ na $\varphi_e = \varphi_c - E_0 r$ (slika 4), kar poveča verjetnost za tuneliranje elektrona iz atoma. Energijo elektrona dobimo tako, da potencial množimo z osnovnim nabojem ($W_c = e_0 \varphi_c$) in jo izrazimo z ustrežno atomsko enoto, rydbergom: $Ry = \frac{e_0^2}{8\pi\epsilon_0 a_0} = 13,6 \text{ eV}$.

Po tuneliranju elektron obravnavamo kot prosti, klasični delec. Energije elektrona so dovolj majhne, da relativistična obravnava ni potrebna. Električno polje laserske svetlobe elektron najprej pospešuje stran od iona, nato



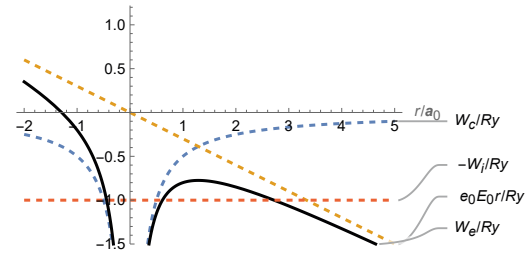
Slika 3: Električno polje laserske svetlobe, predstavljeno z rdečimi puščicami, ionizira atom. Elektron e^- pospeši najprej stran od iona, nato pa električno polje vpadne svetlobe E zaniha v nasprotno smer in pospeši elektron nazaj proti ionu. Elektron med rekombinacijo z ionom vzbudi atom. Vzburjeni atomi potem sevajo svetlobo (rdeče črte na desni) s spektrom, v katerem so zastopani višji harmoniki vzbujevalne svetlobe.

pa se smer električnega polja zaradi nihanja spremeni in elektron pospeši nazaj proti ionu. Električno polje niha s frekvenco ω , ki je tipično velikostnega reda $\sim 10^{15}$ Hz: $E = E_0 \cos \omega t$. Izbrali smo tako fazo, da je polje največje ob času $t = 0$. Elektron tunelira iz atoma ob času $t_0 > 0$, ki je krajši od nihajnega časa svetlobe, in takoj po ionizaciji miruje v izhodišču koordinatnega sistema. Električno polje ga pospešuje skladno z drugim Newtonovim zakonom: $m\ddot{x} = -e_0 E_0 \cos \omega t$. Os x koordinatnega sistema usmerimo vzporedno s smerjo polarizacije laserske svetlobe. Lega elektrona se s časom spreminja

$$x = \frac{e_0 E_0}{m \omega^2} [\cos \omega t - \cos \omega t_0] + \frac{e_0 E_0}{m \omega} (t - t_0) \sin \omega t_0.$$

Grafe gibanja za nekaj različnih časov tuneliranja t_0 kaže slika 5.

Elektron najprej pospešuje stran od iona, nato pa električno polje zaniha v drugo smer in elektron pospeši nazaj proti ionu. Približek, da je elektron na začetku v izhodišču koordinatnega sistema, je upravičen, saj se elektron na svoji poti oddalji za več deset atomskih polmerov. Razdalja, do katere se oddalji, je sorazmerna jakosti električnega polja, ne more pa biti poljubno velika. Elektron se mora za uspešno rekombinacijo vrniti do iona prej kot v enem nihaju. Pri prevelikih jakostih svetlobe na elektron deluje tudi znatna magnetna sila in elektron zavije stran od iona in do rekombinacije ne pride. Vidimo tudi, da se elektron ne vrne vedno nazaj, potreben pogoj je, da t_0 leži na intervalu od nič do četrtnine nihaja laserske svetlobe. Tu se izkaže prednost infrardeče svetlobe: če je frekvenca svetlobe visoka, se elektron prehitro vrne nazaj in ne nabere dovolj energije. To prelomno idejo je uresničila LHuillier, ona je prva za ionizacijo uporabila infrardečo svetlobo. Energijo, ki jo med opisanim gibanjem dobi elektron, najlažje izrazimo s povprečno energijo nihanja prostega elektrona. V polju laserske svetlobe prosti elektron niha s pospeškom $\frac{e_0 E_0}{m_e} \cos \omega t$, lego pa

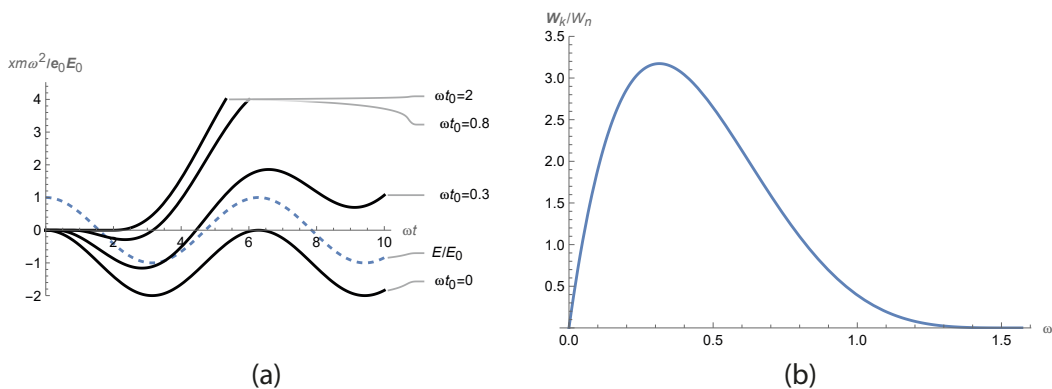


Slika 4: Električno polje laserske svetlobe spremeni električni potencial elektrona v atomu. Elektron lahko tunelira iz coulombske jame in potem ga obravnavamo kot prostega. S črtno modro črto je prikazana coulombska potencialna energija, z rumeno črtno pa potencialna energija električnega polja, ki ga zaradi valovne dolžine ~ 1000 nm, ki je mnogo večja od velikosti atoma, obravnavamo kot homogeno. S črno črto je označena skupna potencialna energija vezanega elektrona, katerega energijski nivo je označen z rdečo črtno črto in je za ionizacijsko energijo pod energijskim nivojem prostega elektrona.

napišemo, kot smo navajeni pri nihanju: $x = -\frac{1}{\omega^2} a$.

Polno energijo nihanja izrazimo $W_n = \frac{1}{2} m \omega^2 \langle x^2 \rangle = \frac{e_0^2 E_0^2}{4 m_e \omega^2}$.

Ion absorbira pospešeni elektron in se pri tem vzbudi. Po relaksaciji izseva svetlobo, ki ima v spektru tudi višje harmonike. Spekter, ki ga kaže slika 6, ima značilna plato in prag. Ta plato v spektru je pravzaprav nenavaden. Pričakovali bi namreč, da intenziteta višjih harmonikov zelo hitro pojema, saj gre vendar za večfotonske procese, ki so precej manj verjetni. V spektru enoatomnih žlahtnih plinov so zaradi simetrije prisotni le lihi višji harmoniki. Razlaga spektra presega nivo tega prispevka. Ko spektralne komponente interferirajo, nastanejo zelo kratki sunki. Iz grafa na sliki 5b vidimo, da je največja kinetična energija, ki jo lahko doseže elektron, približno $3,17 W_n$, in če prištejemo še ionizacijsko energijo W_i , dobimo energijo praga oz. energijo najvišjega



Slika 5: a) Grafi gibanja ionizacijskega elektrona za različne čase ionizacije. Elektron se sprosti ob času t_0 in pospešuje v električnem polju, ki niha s frekvenco ω . Če se elektron sprosti takrat, ko je faza električnega polja $\omega t_0 = 0$, pospeši stran od iona in se vrne do njega v času enega nihaja, njegova hitrost ob povratku pa je enaka kot na začetku, nič. Največjo hitrost ima elektron, za katerega je $\omega t_0 \approx 0,3$. Elektron, ki se sprosti ob $\omega t > \frac{\pi}{2}$, se ne vrne k ionu. Narisani so grafi prostega elektrona, elektron se lahko v trenutku, ko se vrne v izhodišče ($x = 0$), rekombinira z ionom. b) Graf kaže kinetično energijo elektrona po vrnitvi k ionu kot funkcijo časa ionizacije. Energija je največja, ko je $\omega t_0 \approx 0,3$ in enaka $W_k \approx 3,2 W_n$.

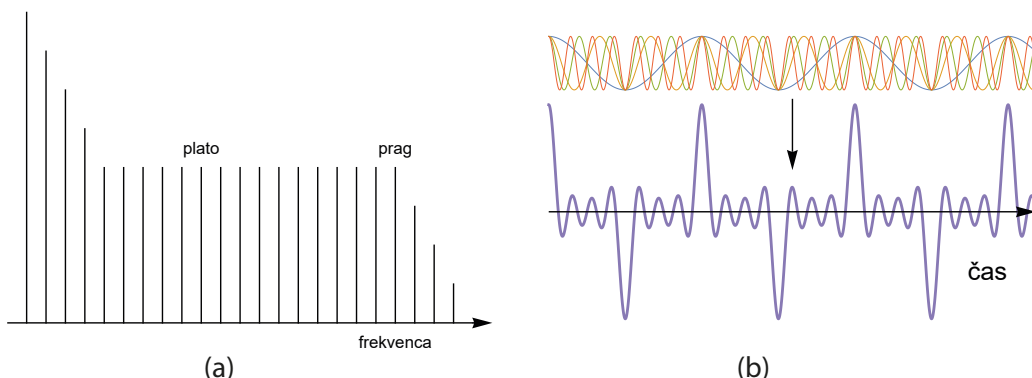
harmonika, ki ga v danem primeru lahko generiramo: $W_{\text{prag}} = W_i + 3,17 W_n$. Spomnimo še, da je amplituda jakosti električnega polja v laserski svetlobi povezana z gostoto energijskega toka svetlobe: $j = \frac{1}{2} c \epsilon_0 E_0^2$.

Tipični laserji, ki jih uporabljajo za generiranje atosekundnih sunkov, uporabljajo infrardeči laser z valovno dolžino, ki oddaja svetlobo v pikosekundo (to je milijon atosekund) dolgih sunkih z gostoto energijskega toka $10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Jakost električnega polja v taki svetlobi je $2 \cdot 10^9 \frac{\text{V}}{\text{m}}$. Spomnimo, prebojna jakost polja v zraku je $3 \cdot 10^6 \frac{\text{V}}{\text{m}}$. V neonu dosežejo najvišji harmonik reda > 100 in mehko rentgensko lasersko svetlobo s fotoni z energijo $> 100 \text{ eV}$, v heliju celo čez 1 keV [2].

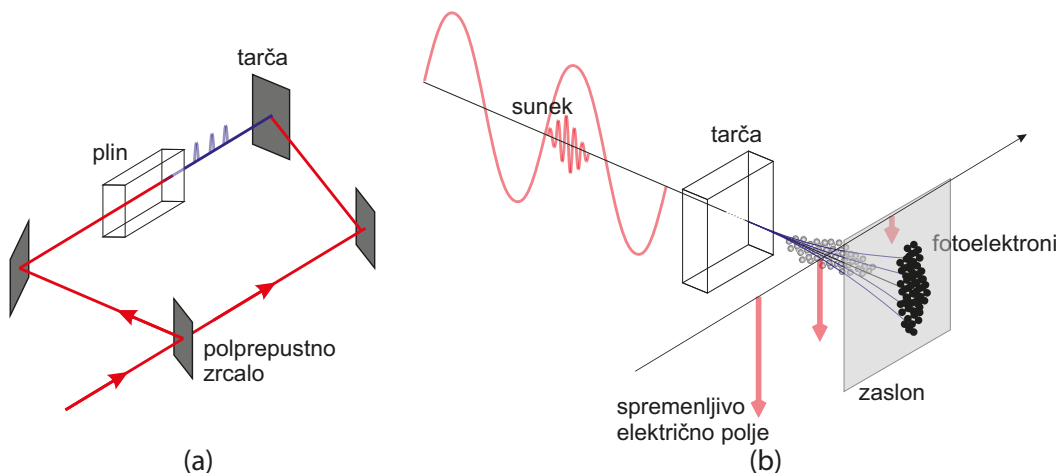
Kako vemo, da so sunki res tako kratki? Jasno, štoparice, ki bi neposredno merila dolžino sunka, ni. Pomagamo si s trikoma, foton iz kratkega sunka in foton iz vzbujevalne svetlobe hkrati uporabimo za ionizacijo atomov v tarči. Zakasnitev med fotonoma lahko natančno merimo in od nje je odvisno, kakšno energijo imajo izbiti fotoelektroni. Energijski spekter fotoelektronov merimo z nekakšno vrstično kamero, katere osnove so prikazane na sliki 7. Kratek sunek svetlobe povzroči v snovi fotoefekt in izbije gručo elektronov. Dolžina gruče je sorazmerna z dolžino laserskega sunka. To gručo vodimo v električno polje, ki

se v smeri prečno na gibanje gruče spreminja s časom. Tako se elektroni z različnega mesta v gruči v polju odklonijo za različne kote. Odklon pa je odvisen tudi od energije – hitrosti – elektronov. Na zaslonu v smeri curka nato iz dolžine sledi, ki jo pusti gruča, lahko sklepamo na energijo in dolžino sunka. Takšno kamero lahko uporabljamo tudi za spremljanje elektronske gostote v vzorcu, ki ga osvetljujejo laserski sunki, in njenega spreminjanja, ko vzbujamo določene reakcije.

Kje v zgodbi o atosekundnih laserskih sunkih najdemo nobelovce? Agostini je znan po svojem pionirskem delu na področju laserske fizike močnega polja in raziskav atosekundnih sunkov. Odkril je pojav večfotonske ionizacije [5]. Anne L'Huillier vodi skupino, ki proučuje gibanje elektronov v realnem času, kar omogoča razumevanje kemijskih reakcij na atomski ravni. Leta 1988 je prispevala pomembno odkritje, ko je v spektrih žlahtnih plinov, ioniziranih z infrardečim laserjem, odkrila plato višjih harmonikov [6]. Kasneje je s sodelavci pojasnila pojav tvorbe višjih harmonikov z numerično rešitvijo časovno odvisne Schrödingerjeve enačbe [7]. Ta odkritja so vodila njeno raziskovalno skupino k uspešnemu generiranju atosekundnih sunkov [8–10]. Naslednji izziv je bil razvoj načina merjenja zelo kratkih sunkov. Tu je pomemben korak prispeval Agostini s sodelavci [11].



Slika 6: a) Spekter svetlobe plina, ioniziranega z močno lasersko svetlobo. b) Demonstracija nastanka svetlobnih sunkov s seštevanjem višjih harmoničnih valovanj. Širina sunka je sorazmerna nihajnemu času komponente z največjo frekvenco.



Slika 7: a) Postavitev poskusa, pri katerem del laserske svetlobe uporabimo za generiranje sunkov, del pa za vzbujanje in detekcijo dogajanja v tarči. b) Podrobnosti dogajanja okoli tarče.

Raziskovali so frekvenčno modulacijo v dvobarvnem fotonem polju. Metoda omogoča merjenje dolžine zaporedja atosekundnih sunkov s hkratnim fokusiranjem visokofrekvenčnih sunkov ultravijoličnega in vzbujevalnega infrardečega laserja na plinsko tarčo in analizo spektra fotoelektronov, ki izhajajo iz tarče. Njegovi skupini je uspelo narediti sunke, dolge 250 as [12], njihovo dolžino pa so merili z novorazvito metodo rekonstrukcije atosekundnega utripanja z interferenco dvofotonskih prehodov. Infrardeča svetloba, ki iz laserja izhaja v obliki nekaj femtosekund dolgih sunkov, generira svetlobo, sestavljeno iz višjih harmonikov, ki se v izhodni svetlobi združi v zaporedje atosekundnih sunkov svetlobe. Nastalo zaporedje sunkov nato usmerimo v novo tarčo iz žlahtnega plina, na katero hkrati sveti tudi osnovni infrardeči laser. Z dodatnimi zrcali spreminjamo časovno zakasnitev infrardeče svetlobe. Svetloba ustrezne valovne dolžine iz atomov žlahtnega plina izbije fotoelektrone. Energija fotonov osnovne infrardeče svetlobe je prenizka, pomagajo jim fotoni visokih harmonikov. Kadar je zakasnitev med osnovno infrardečo svetlobo in atosekundnim sunkom tako majhna, da na atom hkrati vpadeta tako foton infrardečega valovanja kot tudi foton visokih harmonikov, ta fotona skupaj ionizirata atom. Energijo izbitih elektronov lahko natančno merimo in iz nje določimo energijo fotonov, ki so elektrone izbili. Ta energija zavzema diskretne vrednosti – vsaka vrednost ustreza fotonom enega vpadnega harmonika. Na detektorju tako poleg elektronov, ki so jih izbili posamezni visoki harmoniki, zaradi teh dvofotonskih pojavov opazimo tudi elektrone z vmesnimi vrednostmi energij. Njihova energija je

enaka vsoti ali razliki energij fotona visokega harmonika in osnovne infrardeče svetlobe. Tako pokažemo, da so višji harmoniki večinoma v fazi, in iz podatkov o fazi lahko razberemo obliko sunkov svetlobe. Agostini je s sodelavci izmeril serijo sunkov, dolgih po 250 atosekund, razmik med dvema zaporednima sunkoma pa je znašal približno petkrat toliko. Hitro ponavljanje sicer kratkih in jasno ločenih kratkih sunkov pa ne omogoča opazovanja dinamike elektronov. Prvi, ki mu je uspelo ustvariti posamezne atosekundne sunke svetlobe, je bil Ferenc Krausz. Posamezne sunke dobimo tako, da iz svetlobe, tvorjene iz višjih harmonikov, s filtrom odstranimo nižje harmonike, tako da ostane le nekaj najvišjih tik pod pragom [13]. Tako za vsak vpadni sunek infrardeče svetlobe nastane en sam atosekundni sunek v ekstremni ultravijolični oziroma že mehki rentgenski svetlobi.

Ker so atosekundni sunki zelo kratki, je časovna ločljivost eksperimentov izjemna in lahko sledi kinematiki elektronov v molekulah. Molekule lahko tudi vzbujajo z lasersko svetlobo, ki jo uporabijo za generacijo višjih harmonikov sunkov. Taka svetloba je časovno usklajena s sunki. Časovni zamik se enostavno prilagaja z zakasnilno linijo in tako lahko s spreminjanjem zamika spremljamo odziv sistema na motnjo. To metodo je mogoče uporabljati na številnih različnih področjih. V elektroniki je na primer pomembno razumeti in nadzorovati, kako se elektroni obnašajo v snovi. Atosekundne sunke je mogoče uporabiti tudi za identifikacijo različnih molekul, na primer v medicinski diagnostiki. ■

Viri in literatura

- [1] <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2023/summary/> (15. 2. 2024).
- [2] L'Huillier, A. in Balcou, P. (1993). High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. *Phys. Rev. Lett.* 70, 774–777.
- [3] Corkum, P. B. (1993). *Phys. Rev. Lett.* 71, 1994.
- [4] Lewenstein, M., Balcou, Ph., Ivanov, M. Yu., L'Huillier, A. in Corkum, P. B. (1994). *Phys. Rev. A* 49, 2117.
- [5] Agostini, P., Fabre, F., Mainfray, G., Petite, G. in Rahman, N. K. (1979). *Phys. Rev. Lett.* 42, 1127.
- [6] Ferray, M., L'Huillier, A., Li, X. F., Lompre, L. A., Mainfray, G., Manus, C. (1988). Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiatio in rare gases. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 21:L31–L35.
- [7] L'Huillier, A., Schafer, K. J. in Kulander, K. C. (1991). *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 24, 3315.
- [8] Antoine, P., L'Huillier, A. in Lewenstein, M. (1996). *Phys. Rev. Lett.* 77, 1234.
- [9] Salières, P., L'Huillier, A., Antoine, P. in Lewenstein, M. (1997). arXiv quant-ph/9710060.
- [10] Bellini, M., Lyngå, C., Tozzi, A., Gaarde, M. B., Hänsch, T. W., L'Huillier, A. in Wahlström, C.-G. (1998). *Phys. Rev. Lett.* 81, 297.
- [11] Schins, J. M., Breger, P., Agostini, P., Constantinescu, R. C. Muller, H. G., Grillon, G., Antonetti, A. in Mysyrowicz, A. (1994). *Phys. Rev. Lett.* 73, 2180.
- [12] Paul, P. M., Toma, E. S., Breger, P., Mullot, G., Augé, F., Balcou, Ph., Muller, H. G. in Agostini, P. (2001). *Science* 292, 1689.
- [13] Hentschel, M., Kienberger, R., Spielmann, Ch., Reider, G. A., Milosevic, N., Brabec, T., Corkum, P., Heinzmann, U., Drescher, M. in Krausz, F. (2001). Attosecond metrology, *Nature* 414, 509.