

Erős-tér fotoemisszió ultrarövid lézerimpulzusokkal

Ligeti Gábor Mihály

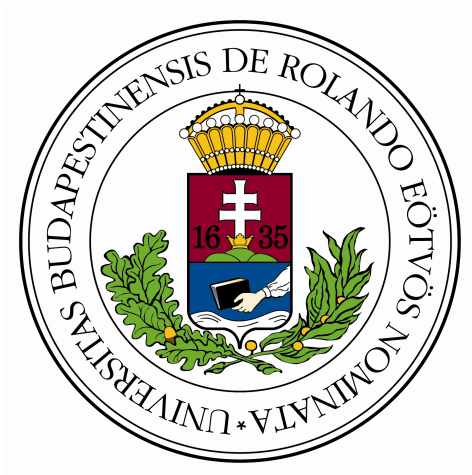
Anyagtudomány MSc II. félév

TDK dolgozat

Témavezetők:

Dr. Dombi Péter, dr. Kiss Gellért Zsolt

Wigner Fizikai Kutatóközpont, Ultragyors Nanooptikai Kutatócsoport



Eötvös Loránd Tudományegyetem

2023

Tartalomjegyzék

1. Bevezető	3
2. Erős-tér fotoemisszió elmélete	5
2.1. Fotoemissziós mechanizmusok	5
2.1.1. Fotoeffektus alapjelensége	5
2.1.2. Sokfotonos emisszió	5
2.1.3. Fényindukált alagútemisszió és a Keldis-elmélet	6
2.1.4. Küszöbfeletti fotoemisszió és sokfotonos csatornabezáródás	9
2.2. Plazmonikus tér szerepe a fotoemisszióban	12
2.2.1. Felületi plazmonok	12
2.2.2. Homogén és inhomogén plazmonikus terek	12
3. Fotoemissziós folyamatok modellezése fém nanoszerkezetekről	14
3.1. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet megoldása fotoemisszióra	14
3.1.1. Fém felületek fotoemissziójának modellezése	14
3.1.2. Időfüggő Schrödinger-egyenlet numerikus megoldása	17
3.1.3. Fotoelektron spektrumok számolása hullámfüggvényből	18
3.1.4. Komplex elnyelési potenciál	19
3.2. Erősterű fotoemissziós folyamatok szimulációs eredményei	19
3.2.1. Szimulációs részletek	19
3.2.2. Levágási energiák számolása homogén térben	20
3.2.3. Elektronhozam impulzushossz függése	24
3.2.4. Küszöbfeletti fotoemisszió és csatornabezáródás	26
3.2.5. Küszöbfeletti fotoemisszió CEP függése	31
3.2.6. CEP függés vizsgálata 2 optikai ciklusú lézerimpulzusra	33
4. Összefoglalás, következtetések	37

1. Bevezető

A nanotechnológia és a lézerfizika elmúlt évtizedes ugrásszerű fejlődésének köszönhetően új távlatok nyíltak meg a fény és az anyag kölcsönhatásának nanométeres és femtoszekundumos skálán való megértésében, mely többek között az attofizika tudományterületét is megalapozta (lásd idei magyar vonatkozású fizikai Nobel díj [1]). A nanotechnológiai fejlesztéseknek köszönhetően ma már képesek vagyunk nem csak atomi vagy molekuláris rendszerek, de nanorészecskék ultragyors elektron folyamatait vizsgálni [2].

Korábbi megfigyelések alapján tudjuk, hogy fém nanorészecskék környékén külső elektromágneses (EM) tér hatására rezonánsan kelthetők úgynevezett felületi plazmonok. A lokalizált felületi plazmonok fém nanorészecskékben külső EM hullám hatására rezonánsan létrejövő töltéssűrűség-oszcilláció. Ezeknek jellegzetes tulajdonsága, hogy a gerjesztett plazmonikus tér nanométeres skálán lokalizálódik a nanorészecske közelében, illetve hogy akár több százszoros is lehet itt az elektromos térnövekmény a külső térerősséghez képest [3]. Egyedi tulajdonságai miatt a felületi plazmonoknak számos alkalmazási területe van, például a bioszenzorikában [4], vagy a félvezetőfizikában [5].

A kutatói közösségben különösen nagy érdeklődést váltott ki plazmonikus nanorészecskék és ultrarövid lézerimpulzusok kölcsönhatásának vizsgálata [6]. Ultrarövid nagyintenzitású lézerimpulzusokkal keltett nanoplazmonikus térben fotoelektron-emisszió is megfigyelhető, mely segítségével információt kaphatunk a nanoplazmonikus tér nagyságára és eloszlására vonatkozóan. Az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont Ultragyors Nanooptika Kutatócsoport megmutatta, hogy fotoelektronok segítségével képesek meghatározni a nanoplazmonikus térnövekményt [7]. A kutatócsoport további munkáiban pedig már olyan egyedi viselkedést is kimutattott, mint a nemadiabatikus alagutazás [8].

Mindegyik alkalmazásban kiemelt szerepe van a fém nanostruktúrák környékén az ultrarövid lézerimpulzus által indukált plazmonikus térnövekménynek és a lézertér hatására a fém felületéről kilépő nagyenergiájú elektronok emissziójának.

Nagyintenzitású lézer-anyag kölcsönhatások terén jól ismert a Keldis-féle skálaparaméter, amely tulajdonképpen a kilépési munka (W) és egy szabad elektron lézertérbeli átlagos kinetikus energiájának U_p hányadosának vett négyzetgyökeivel arányos $\gamma = \sqrt{W/(2U_p)}$. A γ -val jelölt paraméter alapján az egyes fotoemissziós mechanizmusok jól megkülönböztethetők: míg $\gamma \gg 1$ esetén sokfotonos addig $\gamma \ll 1$ esetén alagút fotoemisszióról beszélhetünk. A $\gamma \sim 1$ átmeneti tartományban jellemző folyamat az úgynevezett küszöbfeletti fotoemisszió.

Ezeket a küszöbfeletti fotoemissziós csúcsokat fémek esetén először csak 2010-ben sikerült kísérletileg kimérni [9]. A kísérletben az úgynevezett fotoncsatorna-bezáródás (*channel closing*) jelenségét is sikeresen kimutatták, amit korábban atomi rendszereken vizsgáltak először [11].

A *channel closing* jelenség a lézertér által okozott AC Stark-effektussal magyarázható [12]. A

Stark-eltolódás miatt az egyes sokfotonos kontinuum állapotok energiája pozitív irányba eltolódik ezáltal az effektív kilépési munka megnő. A Stark-eltolódás mértéke megmutatható, hogy lineárisan skálázódik a ponderomotoros energiával ebből kifolyólag a lézertér intenzitást növelve a sokfotonos fotoelektronok kinetikus energiája csökkeni fog, végül pedig egy küszöb intenzitás értéknél megszűnik az adott sokfotonos rendből érkező járuléka.

Mivel ezek a folyamatok mélyen kvantumos természetűek, így dolgozatomban egy önállóan implementált 1D időfüggő Schrödinger-egyenleten alapuló numerikus szimulációt használok ultrarövid infravörös lézerimpulzusok és fém nanostruktúrák kölcsönhatásának modellezésére. Dolgozatom fő eleme, hogy számításaimon keresztül bemutassam a küszöbfeletti fotoemisszió kialakulását és szerepét a fémfelületi/plazmonos fotoemissziós mechanizmusban.

Dolgozatom első részében röviden áttekintem a lézerfizikában széleskörben használt Keldis formalizmust szilárdtestekre. Ebben a részben bemutatom a fotoemissziós mechanizmusok és alapjelenségek elméleti hátterét. A fejezet végén az általam használt numerikus módszereket és modellt tárgyalom.

A dolgozat második felében saját eredményeimet mutatom be, ahol különböző lézerparaméterekre vizsgálom meg a csatornabezáródás jelenségét. Korábbi elméleti munkák alapján tudjuk, hogy bizonyos intenzitásértékeknél a fotoáram lecsökken és egy jellegzetes oszcilláció alakul ki a fotoáram görbén [13]. A fotoáram görbe ezen karakterisztikája a csatornabezáródással magyarázható. Dolgozatom egyik célja, hogy megmutassam, hogy a fotoemissziós spektrumok (ATP, *Above-threshold Photoemission*) csúcsainak eltolódását vizsgálva megmagyarázható a fotoáram görbe karakterisztikája. A korábban említett elméleti cikkben a lézertér vivő-burkoló fázisának hatását nem vizsgáltak meg, így dolgozatomban ennek a szerepét is megvizsgálom a csatornabezáródásra és a fotoáramra vonatkozóan.

Dolgozatom célkitűzése, hogy jobban megérthessük a fotoelektron dinamikát nanométeres és femtoszekundumos skálán és elméleti megalapozást adjak a Wigner Fizikai Kutatóközpont Ultragyors Nanooptika Kutatócsoportjának jövőbeli, ehhez kapcsolódó kísérleteihez. A dolgozatomban részletesen bemutatok és diszkutálok fotoemissziós elektronspektrumokat a sokfotonos és a „strong-field” tartományban, valamint elemzem a csatornabezáródási jelenséget és annak fizikai hátterét.

2. Erős-tér fotoemisszió elmélete

Ebben a részben a fotoemisszió szilárdtestekre vonatkozó elméleti alapjait tárgyalom. A fejezet első részében az általános Keldis-elméletet alapul véve a γ skálaparaméteren keresztül bemutatom az egyes fotoemissziós mechanizmusokat és további alapjelenségeket mint például a csatornabezáródást. A következő alrészben a nanorészecskék közelében lokalizálódó plazmonterek fotoelektron dinamikára gyakorolt hatását tekintem át.

2.1. Fotoemissziós mechanizmusok

2.1.1. Fotoeffektus alapjelensége

A fotoemisszió vagy másnéven fotoelektromos effektus régóta ismert jelenség, melynek napjainkban számos gyakorlati alkalmazása van akár az elektronmikroszkópiában vagy a fotodetektor-technológiában. Heinrich Hertz és Lénárd Fülöp [14][15] kísérleteire alapozva a fotoelektromos effektusnak Albert Einstein fektette le az elméleti alapjait [16] a fény kvantumos természetével magyarázva, melyet a kvantummechanika első mérföldkövének is tartanak számon. A fotoemisszió lényege, hogy a felületről kilépő elektron kilépési munkáját a felületre érkező megfelelő energiájú foton fedezi. A korai felfedezések idején csak a lineáris fotoemissziós vizsgálatára volt lehetőség, amikor is egy foton egy elektront vált ki. Lineáris fotoemissziós esetén fotoelektronok maximális kinetikus energiája Einsten-féle fotoelektromos összefüggése alapján alakul:

$$E_{kin} = \hbar\omega - W, \quad (1)$$

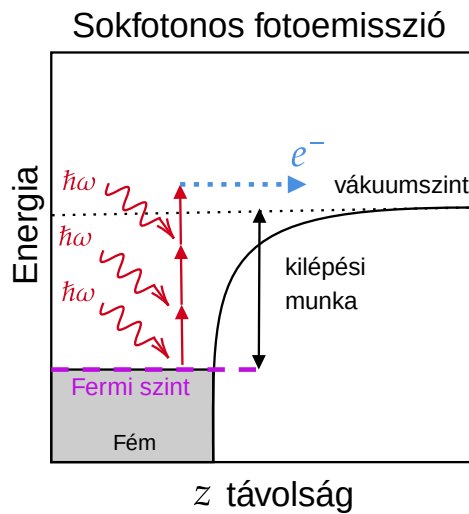
ahol $\hbar\omega$ a kölcsönható foton energiája, W pedig az adott anyagra jellemző kilépési munka (ω a külső EM tér körfrekvenciája). Ebben a tartományban az emittált fotoelektronok száma, vagyis a fotoáram lineárisan változik az intenzitással. Fémek esetén tipikusan 5 eV körüli kilépési munka jellemző, így lineáris fotoemissziót ultraibolya tartományú fotonokkal lehet előidézni.

2.1.2. Sokfotonos emisszió

Napjainkban a nagyintenzitású és ultrarövid lézerimpulzusoknak köszönhetően már nemlineáris fotoemissziós jelenségek is vizsgálhatók. A különböző nemlineáris fotoemissziós tartományokat a lézerintenzitása alapján lehet megkülönböztetni. Alacsony intenzitások esetén "gyenge-tér" (*weak-field*), míg nagyintenzitások esetén az "erős-tér" (*strong-field*) elnevezéseket használja a szakirodalom, így a következőekben én is ezeket a kifejezéseket alkalmazom.

Weak-field tartományban a külső elektromágneses tér gyenge perturbációként van jelen, illetve egy foton energiája sem elegendő ahhoz, hogy a fémre jellemző kilépési munkát elérje az elektron. Ilyenkor az elektronkibocsátás több foton közel egyidejű abszorpciójával valósul meg, ez az úgynevezett

sokfotonos vagy multifotonos emisszió jelensége [17] [18]. Adott energiájú foton és kilépési munka esetén kiszámítható az emisszióhoz szükséges fotonszám is, amit a multifoton rendjének nevezünk: $n_{min} = W/\hbar\omega$. A sokfotonos fotoemissziós folyamat az n -ed rendű időfüggő perturbációs elmélet alapján magyarázható [19].



1. ábra. Sokfotonos fotoemisszió sematikus ábrája. Ebben az esetben a multifoton rend $n_{min} = 3$.

Sokfotonos elektronok energiamérlege analóg módon, hasonlóan alakul az Einstein-féle fotoelektromos összefüggéshez:

$$E_{kin} = n\hbar\omega - W, \quad (2)$$

ahol n a minimális fotonszámmal egyezik meg. Emellett a sokfotonos tartományban a teljes fotoáram az intenzitás multifotonos rendjének hatványával változik:

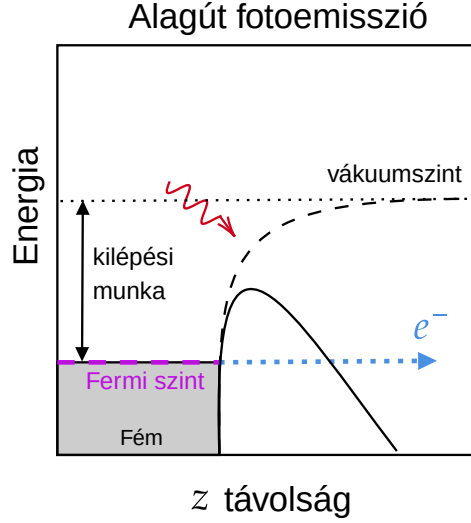
$$P(I) = \sigma I^{(W/\hbar\omega)} = \sigma I^{n_{min}}. \quad (3)$$

2.1.3. Fényindukált alagútemisszió és a Keldis-elmélet

A fényintenzitást növelve, egy bizonyos értéknél, a fény elektromos tere által a kötött elektronokra kifejtett erő összemérhetővé válik az elektronokra ható (anyagon belüli) kötési erővel, ekkor az úgynevezett *strong-field* vagy erős-tér tartományról beszélünk. Ezen esetben a külső tér már nem gyenge perturbációként van jelen, és olyan erősen nemlineáris folyamatok figyelhetők meg, mint például a küszöb feletti sokfotonos emisszió, vagy a fényindukált alagútemisszió.

1964-ben Leonid V. Keldis úttörő munkájának köszönhetően, sikeresen megmagyarázta a fényindukált alagútionizáció jelenségét atomi rendszerekre [20]. Ekkor a külső tér olyannyira erős, hogy képes "letörni" az atom vagy fémfelületre jellemző potenciált létrehozva ezáltal egy véges magasságú és

szélességű potenciálgátat, amin keresztül az elektron nem nulla valószínűséggel alagutazhat egy folytonos kontinuumb (az elektron egy adott impulzusértékkel jellemezhető kontinuum állapotába).



2. ábra. Fényindukált fotoemisszió sematikus ábrája. A külső tér letörve a potenciált létrehoz egy potenciálgátat, amin keresztül az elektron átalagutazhat (lásd kék szaggatott vonal). Fémek esetén tipikusan a Fermi szintről történik az emisszió.

A későbbiekben az is kiderült, hogy elméleti megközelítése kapcsolatot teremt a különböző ionizációs/emissziós folyamatok között. Az elmélet alapvetően atom és molekula rendszerek ionizációját magyarázza, ugyanakkor az elmélet fémek fotoemissziójára is egyszerűen kiterjeszthető, ilyenkor a leggyengébben kötött elektron kötési energiájának helyére a fémfelület kilépési munkája W lép [21].

Keldis elméleti leírásában definiált egy karakterisztikus paramétert γ -t, ami a fotoemissziós folyamatok adiabaticitására szolgál, és amely a Keldis- γ elnevezést kapta. γ paraméter a következő összefüggéssel adható meg:

$$\gamma = \sqrt{\frac{W}{2U_p}} \begin{cases} \gamma \ll 1 \rightarrow \text{Alagút fotoemisszió;} \\ \gamma \gg 1 \rightarrow \text{Sokfotonos fotoemisszió} \end{cases} \quad (4)$$

A fenti egyenletben W az adott anyagra jellemző kilépési munka, U_p pedig az úgynevezett ponderomotoros energia. A ponderomotoros energia az erős-tér lézerfizikában, egy adott térerősségű elektromágneses térben egy szabad elektron egy ciklusra átlagolt, oszcillációs mozgási azaz *quiver*, energiáját jelenti. A ponderomotoros energia a következőképpen számolható:

$$U_p = \frac{e^2 \mathcal{E}_0^2}{4m_e \omega^2}, \quad (5)$$

Ahol e az elektron töltése, m_e az elektron tömege, $\mathcal{E}_0$ a lineárisan polarizált lézer elektromos terének

amplitúdója és ω a lézertér oszcillációs körfrekvenciája. A ponderomotoros energia a lézer csúcsintenzitásával ($I = c\varepsilon_0\mathcal{E}_0^2/2$) és hullámhosszával $\lambda = 2\pi c/\omega$ is megadható. Ekkor eV (elektronvolt) egységekben a következőképpen számolható: $U_p[\text{eV}] = 9.33 \cdot \lambda^2[\mu\text{m}^2] I[10^{14}\text{W}/\text{cm}^2]$.

Fontos hangsúlyozni, hogy a Keldis-elmélet csak alacsony frekvenciás határesetben alkalmazható. Ez azt jelenti, hogy a foton energiájának kisebbnek kell lennie, mint a kilépési munka. Fémek esetén átlagosan 5 eV-al számolva ez azt jelenti, hogy közeli infravörös tartományú fotonok, például 800 nm (1.55 eV) esetén már jól alkalmazható a Keldis-elmélet.

Az általános Keldis-elmélet [20] és Perelomov, Popov, Terent [22][23] (PPT-modell) munkássága alapján analitikus formulával megadható a teljes fotoemissziós áram atomi rendszerek esetén. Fémek esetén az atomokra jellemző ionizációs potenciál helyére a kilépési munka kerül. A teljes fotoáram alakja a következő:

$$P(\gamma) \sim \exp \left\{ -\frac{2W}{\hbar\omega} \left[\left(1 + \frac{1}{2\gamma^2} \right) \sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{2\gamma} \right] \right\} \quad (6)$$

Ez a lézerfizikában az úgynevezett általános Keldis-ráta ami monokromatikus ω körfrekvenciájú és *cw* (*continuous wave*), azaz folytonos lézerterekre adja meg a fotoáram karakterisztikáját a teljes γ tartományon.

A fenti (6)-os egyenletnek két határeset van. Az egyik $\gamma \gg 1$ gyengeterű sokfotonos és $\gamma \ll 1$ erősterű alagút emissziós tartomány. Hátértékben megkapható az egyes tartományokban a fotoemissziós ráta alakja:

$\gamma \gg 1$ gyenge-tér közelítés esetén:

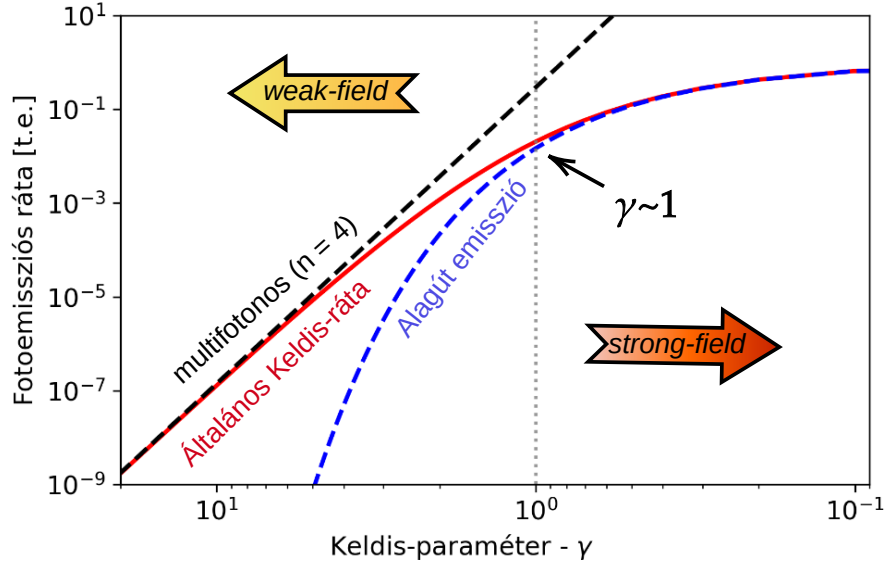
$$\sinh^{-1} \gamma \approx \ln 2\gamma \Rightarrow P_{weak}(\gamma) \sim \exp \left(-\frac{2W}{\hbar\omega} \ln 2\gamma \right) \sim \left(\frac{1}{2\gamma} \right)^{2W/(\hbar\omega)} \sim I^{W/(\hbar\omega)} \quad (7)$$

$\gamma \ll 1$ erős-tér közelítés esetén:

$$\sinh^{-1} \gamma \approx \gamma \Rightarrow P_{strong}(\gamma) \sim \exp \left(-\frac{2W}{\hbar\omega} \cdot \frac{2\gamma}{3} \right) \sim \exp \left(-\frac{4\sqrt{2m}W^{3/2}}{3|e|\hbar\mathcal{E}_0} \right) \quad (8)$$

Mindkét levezetésben felhasználtuk a (4) és (5) képleteket. Láthatjuk, hogy gyenge-tér közelítésben visszakaptuk a sokfotonos emisszióra korábban bemutatott formulát (3). Továbbá az ADK-modell (Ammosov, Delone, Krainov modell) [24] atomok és molekulák ionizációjára levezetett alagút-emissziós formuláját is visszakaptuk $\gamma \ll 1$ határesetben.

A következő ábrán 800 nm-es középponti hullámhosszra (1.55 eV) és 5 eV kilépési munkára láthatjuk az egyes fotoemissziós rátákat (6-8) képletek alapján. 5 eV -os kilépési munka és 1.55 eV fotonenergia mellett a multifotonos nemlinearitás ~ 4 -nek adódik.



3. ábra. Általános Keldis-ráta látható piros görbével. Erős-tér $\gamma \ll 1$ tartományban alagútémissziós ráta kékkel látható. $\gamma \gg 1$ sokfotonos tartományban feketével van ábrázolva a ráta. A szürke pontozott vonal a $\gamma = 1$ -nél látható, ami az átmeneti értéket jelenti a két tartomány között.

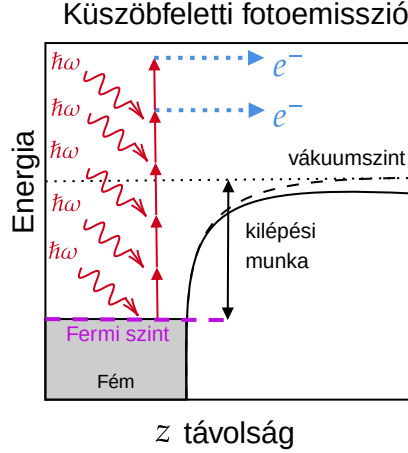
Láthatjuk, hogy gyenge-tér tartományban log-log skálán a fotoáram lineárisan növekszik a multifotonrenddel skálázva, míg erős-tér tartományban a fotoáram egyre jobban telítődik (szaturálódik). A fenti 3. ábrához hasonlóan az intenzitás függvényében ábrázolva a fotoáram görbéket.

A következő alrészben a $\gamma \sim 1$ átmeneti tartományban jellemző folyamatot az úgynevezett küszöbfeletti fotoemissziót mutatom be.

2.1.4. Küszöbfeletti fotoemisszió és sokfotonos csatornabezáródás

Gyenge-tér tartományon, mint korábban láttuk a legalacsonyabb multifotonos rend határozza meg a fotoemissziós folyamatot. Az intenzitást növelve egyre kisebb γ értékek felé haladva azonban a tér egyre jobban perturbálja a potenciált, így akár a minimális fotonszámnál több foton egyidejű elnyelésével is történhet elektronkibocsátás. Ezt a folyamatot nevezzük küszöbfeletti fotoemissziónak. Ezt először atomi rendszerek esetén sikerült megfigyelni 1979-ben [10]. Majd, csak jóval később sikerült fém-nanoszerkezetekre tisztán kimutatni az ATP csúcsokat [9]. A küszöbfeletti fotoncsúcsok (ATP) jellegzetes struktúrát mutatnak a fotoemissziós spektrumokban. Az egyes sokfotonos rendek csúcspozíciója a fotonenergia egész számú többszörösei. Az elektronok energia mérlege a következőképpen alakul:

$$E_{kin}^{(n)} = n\hbar\omega - W, \quad n > n_{min} \quad (9)$$



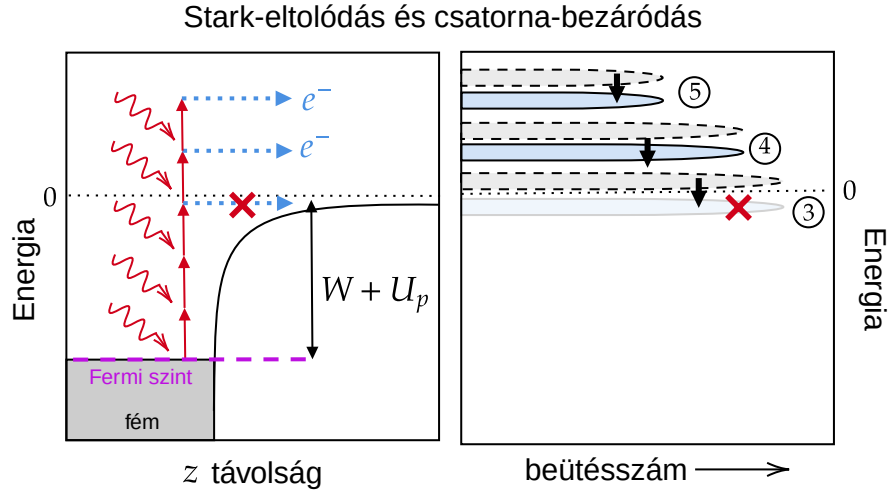
4. ábra. A küszöbfeletti fotoemisszió sematikus ábrája látható fém potenciálra. Láthatjuk, hogy a legalacsonyabb rend $n_{min} = 3$, így a két következő sokfotonos rend 4 és 5, amelyek már mind küszöbfeletti fotoemissziós folyamathoz tartoznak.

Az intenzitást növelve, $\gamma \sim 1$ felé haladva, a fotoelektronok ponderomotoros energiája egyre nagyobb lesz és már nem lesz elhanyagolható a kilépési munkához képest. Például 10 TW/cm^2 -es 800 nm középponti hullámhossz esetén 0.6 eV a ponderomotoros energia, ami 5 eV -os kilépési munka esetén már nem elhanyagolható. Ekkor az elektronoknak nem csak a sokfotonos kontinuum állapotokhoz szükséges energiát, de a lézertérben a *quiver* mozgáshoz tartozó ponderomotoros energiát is el kell érniük. Ez azt eredményezi, hogy az effektív kilépési munka megnő az elektron számára és a következőképpen módosul a (9)-es összefüggéshez képest:

$$E_{kin}^{(n)} = n\hbar\omega - W - U_p \geq 0 \quad (10)$$

Mivel a ponderomotoros energia az intenzitástól függ, így az intenzitást növelve adott sokfotonos csúcs pozíciója alacsonyabb energia felé tolódik, végül egy kritikus intenzitásnál ez az energia nulla értéket vesz fel. Ekkor az adott fotoemissziós rend járuléka megszűnik. Az intenzitást növelve tehát az alacsonyabtól az egyre magasabb rendig megszűnnek ezek az úgynevezett sokfotonos csatornák. Ez a csatornabezáródás jelensége amit először atomi rendszereken tudták kimutatni [11].

Kvantumos képet használva, az AC-Stark effektussal érthető meg a csatornabezáródás (*channel closing*) jelensége. Ekkor a külső tér jelenlétében a sokfotonos kontinuum állapotok Stark-eltolódása U_p ponderomotoros energiával egyezik meg. Ebben az elméleti leírásban az alapállapot (ami fémek esetén a fermi nivó) Stark-eltolódása nullának tekinthető.



5. ábra. Az alábbi ábrán a Stark-eltolódás és a csatornabezáródás jelensége látható. A bal oldali sematikus ábrán láthatjuk, hogy az effektív kilépési munka megnő így a legalacsonyabb fotonrend megszűnik. A jobb oldali ábrán a fotoemissziós csúcsok eltolódása és "bezáródása" látszik.

Mivel az egyes fotonrendek járuléka bizonyos intenzitás értékeknél megszűnik így ezeken a helyeken a teljes fotoáram értéke lokálisan lecsökken. Ez egy karakterisztikus oszcillációt eredményez a fotoáram görbében, amely Keldis-elméletnél bemutatott általános Keldis-rátától eltérő. A teljes fotoemissziós ráta ezen viselkedését korábban már sikerült elméleti számolásokkal bizonyítani [13].

Dolgozatom középpontjában ennek az alapjelenségnek a részletes bemutatása és további újszerű elméleti számolások diszkussziója áll.

2.2. Plazmonikus tér szerepe a fotoemisszióban

2.2.1. Felületi plazmonok

Az előző fejezetben az egyes fotoemissziós mechanizmusokat tekintettük át. Ebben a részben röviden bemutatom a nanostruktúrák körül kialakuló plazmonikus tér szerepét a fotoemisszióban. Korábbi kutatások alapján tudjuk, hogy fém nanorészecskék felületén külső elektromágneses tér miatt kollektív töltéssűrűség oszcillációk alakulnak ki. Ezeket a töltéssűrűség oszcillációkat a szilárdtestfizikában plazmonoknak hívjuk. Amikor a nanorészecske mérete kisebb a külső elektromágneses tér hullámhosszánál, akkor a gerjesztett plazmonikus tereknek nanométeres lokalizációja figyelhető meg a felület környékén. Az itt kialakult térerősség többszöröse is lehet a külső térerősséghez képest, ezt nevezzük plazmonikus térnövekménynek, amit Q -val jelölünk. A plazmonikus térnövekmény nagysága a nanostruktúra geometriájától függ elsősorban. Minél kisebb a felületre vonatkozó görbületi sugár annál nagyobb lesz a térnövekmény.

Mivel ezek a terek pár 10 nanométeren lokalizálódnak nanorészecskék közelében így a felülettől távolodva a térnövekmény fokozatos csökkenése figyelhető meg, amit a térnövekmény lecsengésének nevezünk. Ezt a továbbiakban egy exponenciális lecsengéssel vesszük figyelembe. 1D-os modell keretén belül az exponenciálisan lecsengő plazmontér alakja $Q(z) = Q \cdot e^{-z/l_f}$, ahol l_f a lecsengési hossz, amely megadja azt a távolságot, amikor a térnövekmény e -ad részére csökken, Q pedig a $z = 0$ pontban a potenciál felületén a Q térnövekmény értéke. A keletkező lokális tér a plazmonikus tér és a külső elektromos térerősség szorzatával fog megegyezni $\mathcal{E}_{loc}(z, t) = Qe^{-z/l_f}\mathcal{E}(t)$.

Különböző geometriájú fémnanorészecskék esetén a kialakult plazmonikus tereket a Maxwell-egyenleteken alapuló FDTD (*Finite Difference Time Domain*) modell segítségével szimulálhatók.

2.2.2. Homogén és inhomogén plazmonikus terek

A fotoemisszió során a fotoelektronok dinamikájában meghatározó szerepe van a plazmonikus terek alakjának. Egy 2012-es Nature cikkben [25] megmutatták, hogy a Keldis-paraméterhez hasonlóan, amivel az egyes fotoemissziós folyamatok értelmezhetők, úgy a fotoelektronok dinamikájának jellemzésére is bevezethető egy skálaparaméter, amit δ -val jelölünk. A δ paramétert a következőképpen vezették be.

Klasszikus mechanika alapján levezethető, hogy egy szabad elektron külső elektromágneses tér jelenlétében *quiver* mozgást végez. Az oszcilláló mozgás amplitúdója a következőképpen adható ha van lokális térnövekmény $l_q = eQ\mathcal{E}_0/m_e\omega_0^2$. A δ -paraméter definíció szerint a lecsengési hossz és a *quiver* oszcillációs amplitúdó hányadosával adható meg.

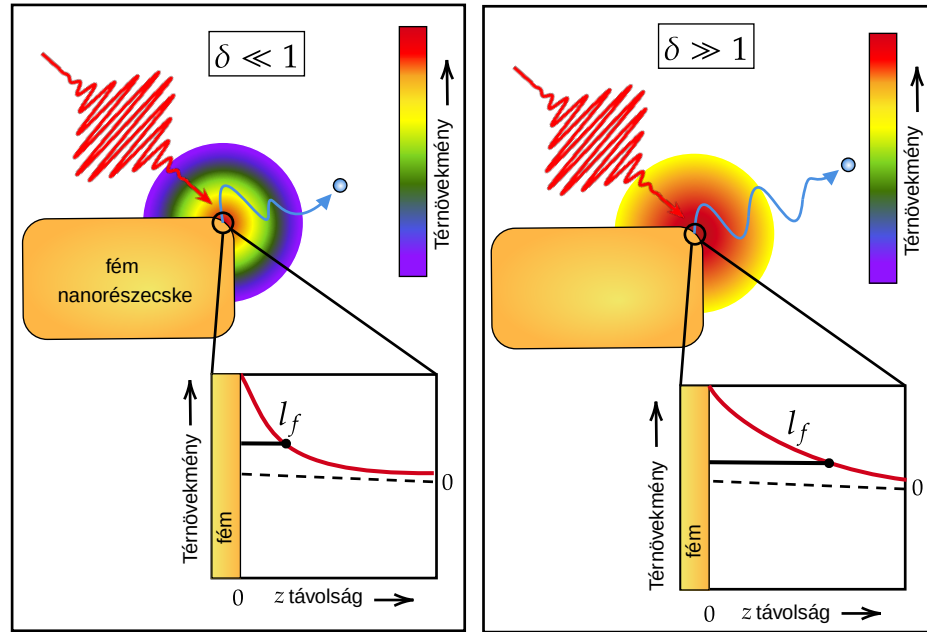
Amikor $\delta \gg 1$, tehát a tér lecsengése jóval nagyobb mint az oszcillációs amplitúdó, akkor a fotoelektronok homogén teret érzékelnek így a lehető legnagyobb energiára tudnak szert tenni. Ez klasszikus vezetés alapján a potenciálról visszaszórt elektronok maximális energiájával egyezik meg,

ami a jól ismert $10U_p$ skálát követi. Az elektronok levágási (levágási) energiája a következő zárt formulával adható meg homogén plazmontérben:

$$E_{cutoff} = 10U_p + 0.537W = 10 \frac{e^2}{4m_e \varepsilon_0 c \omega_0^2} Q^2 I_0 + 0.537W, \quad (11)$$

ahol I_0 a fókuszált csúcsintenzitást jelöli.

A másik határérték a δ -paraméterre, amikor $\delta \ll 1$ tehát a plazmonikus lecsengés jóval kisebb, mint az elektron oszcillációs amplitúdója. Ilyenkor az elektron inhomogén teret érzékel, ezáltal csillapítottabb lesz a mozgása. Ez azt eredményezi, hogy az elektronok levágására jellemző U_p prefaktor csökkenni fog.



6. ábra. Az ábrán az inhomogén és homogén plazmonterek sematikus ábrázolása látható. $\delta \ll 1$ esetben a tér gyorsan lecsengő inhomogén az elektron dinamika szempontjából, míg $\delta \gg 1$ esetben a térnövekmény lassan cseng le, így homogénnek tekinthető.

Dolgozatomban elsősorban teljesen homogén plazmonikus terekre végzek számolásokat ez azt jelenti, hogy a plazmontér lecsengési hosszát $l_f \rightarrow \infty$ -nek vettem. Ekkor a lokális tér $\mathcal{E}_{loc}(t) = Q\mathcal{E}(t)$ alakban adható meg. Így az elektronok levágási energiája egzaktul a $10U_p$ skálát követi [7].

A következő részben a fotoelektronok dinamikáját leíró egyenleteket és a numerikus módszereket mutatom be.

3. Fotoemissziós folyamatok modellezése fém nanoszerkezetekről

Ebben a fejezetben az általam felállított fotoemissziós modell számolásait mutatom be. A fejezet első részében a modell közelítéseit és numerikus alapjait mutatom be, majd ezt követően arany nanorészecskék és ultrarövid intenzív lézerimpulzusok kölcsönhatásából számolt fotoemissziós spektrumok tulajdonságait vizsgálom.

3.1. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet megoldása fotoemisszióra

Ebben a részben az általam felállított kvantummechanikai módszereken alapuló modell elméleti és numerikus hátterét tárgyalom.

3.1.1. Fém felületek fotoemissziójának modellezése

A korábbi fejezetekben bemutattam a fémek fotoemissziós alapjelenségének elméleti hátterét. Láthattuk, hogy egyes fotoemissziós mechanizmusok mélyen kvantumos természetűek, így kézenfekvő kvantummechanikán alapuló modell használata.

Mivel a kvantummechanika időfüggő perturbációs elmélete érvényét veszti az ultrarövid és extrém intenzitású lézerterekkel való kölcsönhatás esetén, a fotoelektronok dinamikája adott fémfelületi potenciál választásával az időfüggő Schrödinger-egyenleten (TDSE, *Time-dependent Schrödinger equation*) alapuló modellel vizsgálható.

Mivel intenzív lézerterek esetén bizonyos elektron-elektron kölcsönhatások elhanyagolhatók, így egy megfelelően választott pszeudopotenciállal modellezve, az egyelektronos Schrödinger-egyenlet kellő pontossággal leírja a fotoemissziós mechanizmust. Ez az úgynevezett egy-aktív elektronos közelítés (SAE, *Single Active Electron*).

SAE közelítésben az 1D TDSE alakja külső elektromos térrel a következőképpen írható fel atomi egységeket használva ($m_e = e = \hbar = 1/(4\pi\epsilon_0) = 1$):

$$i\frac{\partial\psi(z,t)}{\partial t} = H(z,t)\psi(z,t) = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{\text{fém}}(z) + V_{\text{pert}}(z,t)\right]\psi(z,t), \quad (12)$$

Ahol $\psi(z,t)$ az elektron hullámfüggvényt, $H(z,t)$ pedig a rendszer Hamilton operátorát jelenti. A jobb oldalon láthatjuk, hogy fém-nanoszerkezetek esetén a Hamilton-operátor tartalmaz egy, időben statikus fém potenciált $V_{\text{fém}}(z)$, és egy időben változó perturbatív potenciált $V_{\text{pert}}(z,t)$, ami a lézerteret és a plazmonteret tartalmazza.

Atomi és molekuláris rendszerekkel ellentétben nem egy izolált kvantummechanikai rendszert kell leírnunk, hanem egy kiterjedt fém felületet, ahol az elektronok között bizonyos kollektív kölcsönhatások már nem elhanyagolhatók. Ilyen kollektív hatás lehet a potenciál leárnnyékolása. Az általam használt modellben a fémekre jellemző felületi potenciál alakja ezeket figyelembe véve a következő [26]:

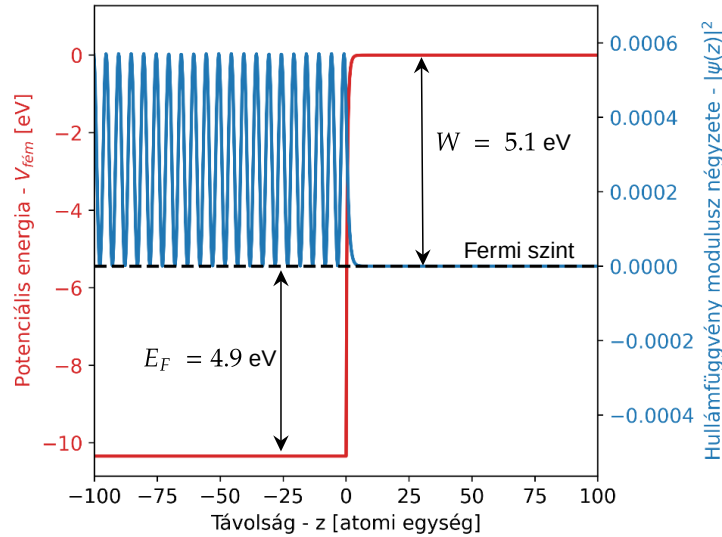
$$V_{\text{fém}}(z) = -\frac{\exp\{-\beta(z + |z|)\}}{2(z + |z|) + 1/(E_F + W)}, \quad (13)$$

ahol E_F a Fermi energia és W az adott anyagra jellemző kilépési munka. β paraméter tartalmazza az elektronok által okozott leárnnyékolást, ami kísérletekből és Sűrűség-funkcionál elméleti számolásokból arany céltárgy esetére $\beta = 0.6$ -nak adódott [13]. Továbbá arany esetén a Fermi-energia $E_F = 4.9$ eV és a kilépési munka $W = 5.1$ eV-nak vehető. A következőkben ezeket a paramétereket használok fel a numerikus szimulációkban.

A hullámfüggvény propagálásához szükséges kezdeti állapotot a térmentes Hamilton-operátor sajátérték problémájának megoldásával kaphatjuk meg:

$$H_0(z)\psi_i(z) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V_{\text{fém}}(z) \right] \psi_i(z) = E_i \psi_i(z) \quad (14)$$

A (13)-as egyenlettel definiált fém felületi potenciál $-(E_F + W)$ mélységű ezért $\psi_i(z)$ alapállapoti függvényt úgy választjuk meg, hogy a hozzá tartozó sajátenergia $E_i = -W$ -el egyezzen meg.



7. ábra. Az ábrán az általam írt időfüggetlen Schrödinger-egyenlettel megoldott fém felületi potenciálban a Fermi energia szinthez tartozó alapállapoti hullámfüggvény látható. A fém felületi potenciálban az arany Fermi energiáját és kilépési munkáját használtam. Fekete szaggatott vonallal jelöltem a Fermi szintet.

A teljes fotoemissziós modellhez az időfüggő perturbatív potenciál alakjára is szükségünk van. A potenciál a lokális térben elektronra ható erőnek gradiensével lesz arányos $-e\mathcal{E}_{loc}(z, t) = -\frac{d}{dz} V_{\text{pert}}(z, t)$. Így a potenciál általános $Q(z)$ plazmonikus térrel és $\mathcal{E}(t)$ lézer térerősségének időbeli alakjával a

következő módon írható fel [27]:

$$V_{\text{pert}}(z, t) = e\mathcal{E}(t) \int_0^z Q(z') dz' \quad (15)$$

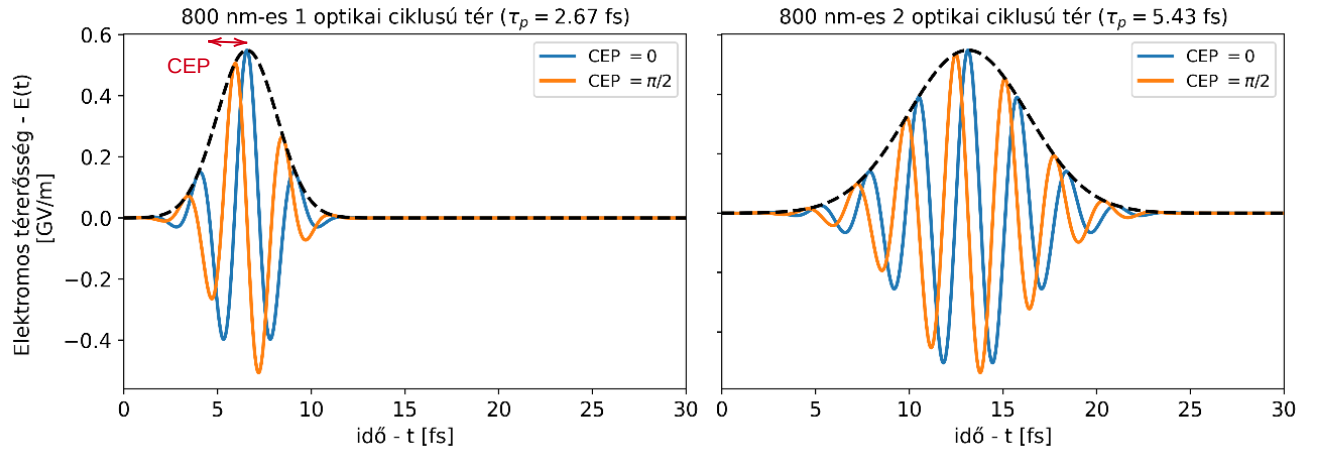
Amennyiben végtelen nagy lecsengésű teret veszünk, úgy $Q(z)$ helyére a $Q(z=0)$ felületen érvényes térnövekmény kerül. Végtelen lecsengésű homogén térben a lokális térből származó potenciál a következő:

$$V_{\text{pert}}(z, t) = ezQ\mathcal{E}(t). \quad (16)$$

Az $E(t)$ lézertérre transzformlimitált gaussi lézerimpulzust használunk, aminek az alakja a következő módon írható fel:

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 e^{-2 \ln 2 (t/\tau_p)^2} \cos(\omega_0 t + \phi_{\text{cep}}), \quad (17)$$

ahol $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_c$ a lézer körfrekvenciája, λ_c középponti hullámhossza, τ_p pedig a lézerimpulzus gaussi burkolójának a félértékszélességével egyezik meg, amit a lézer impulzushosszával is nevezünk. Ez kifejezhető az optikai ciklusok száma és a lézer körfrekvenciájával $\tau_p = 2\pi \cdot n_{\text{oc}}/\omega_0$. A ϕ_{cep} pedig a lézer tér vivő-burkoló fázisát jelenti, amit az irodalomban CEP-nek (*Carrier-Envelope Phase*) szokás rövidíteni az irodalomban.



8. ábra. A jobb és bal oldali ábrákon 800 nm-es középponti hullámhossz, és $0.04 \text{ TW}/\text{cm}^2$ intenzitás mellett láthatók az elektromos térerősségek időbeli alakjai 1 és 2 optikai ciklusra. Emellett láthatjuk, hogy a vivő-burkoló fázis CEP változtatása milyen hatással van az időalakra adott optikai ciklus esetén.

Adott lézerimpulzusra és felületi potenciálra az alapállapotú hullámfüggvény propagációja (időbeli fejlesztése) minden időpillanatban.

3.1.2. Időfüggő Schrödinger-egyenlet numerikus megoldása

A (12)-es Schrödinger-egyenlet megoldására számos közelítő módszer létezik. Az egyik ilyen megközelítés az alapállapotú hullámfüggvény és a külső tér okozta perturbált hullámfüggvény szétválasztásán alapul, ez az úgynevezett Splitting módszer [26]. Mivel azonban, ebben a megoldásban a lézertér hatása külön van választva a potenciáltól, a potenciálhoz tartozó kontinuum állapotokat nem befolyásolja. Ez azt eredményezi, hogy a Stark-effektus okozta ATP csatornák eltolódása és bezáródás nem vizsgálható.

Ezért szükséges az időfüggő Schrödinger-egyenletet közvetlenül numerikusan integrálni. Ehhez az 1D TDSE-t (12) diszkretizálni kell Δz térbeli és Δt időbeli lépésközökre. A következőkben a (12)-ben általánosan $V(z, t)$ potenciált fogunk használni $V_{\text{fém}}(z) + V_{\text{pert}}(z, t)$ helyett.

A végeskülönbség felbontáshoz először definiáljuk a térbeli és időbeli rácsainkat $z_j = z_0 + j\Delta z$ ahol $\{j \in 0, 1, 2, \dots, J-1\}$ és $t_j = t_0 + n\Delta t$ ahol $\{n \in 0, 1, 2, \dots, N-1\}$.

A diszkretizált egyenlet a következő alakban írható fel:

$$i \frac{\psi_j^{n+1} - \psi_j^n}{\Delta t} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\psi_{j+1}^n - 2\psi_j^n + \psi_{j-1}^n}{2(\Delta z)^2} + \frac{\psi_{j+1}^{n+1} - 2\psi_j^{n+1} + \psi_{j-1}^{n+1}}{2(\Delta z)^2} \right) + \left(\frac{V_j^n \psi_j^n}{2} + \frac{V_j^{n+1} \psi_j^{n+1}}{2} \right) \quad (18)$$

az $n+1$ és n időlépéshez tartozó tagokat ha külön-külön egyoldalra rendezzük:

$$\begin{aligned} -\frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \psi_{j+1}^{n+1} + \left[1 + \left(\frac{1}{(\Delta z)^2} + V_j^{n+1} \right) \frac{i\Delta t}{2} \right] \psi_j^{n+1} - \frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \psi_{j-1}^{n+1} = \\ -\frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \psi_{j+1}^n + \left[1 - \left(\frac{1}{(\Delta z)^2} + V_j^n \right) \frac{i\Delta t}{2} \right] \psi_j^n - \frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \psi_{j-1}^n \end{aligned} \quad (19)$$

Mátrix reprezentációban a (19)-es egyenlet a következőképpen írható fel:

$$\begin{bmatrix} 1 + \beta_0^{n+1} & \alpha & & & 0 \\ \alpha & 1 + \beta_1^{n+1} & \alpha & & \\ & \alpha & 1 + \beta_2^{n+1} & \ddots & \\ & & \ddots & \ddots & \alpha \\ 0 & & & \alpha & 1 + \beta_J^{n+1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi_0^{n+1} \\ \psi_1^{n+1} \\ \psi_2^{n+1} \\ \vdots \\ \psi_J^{n+1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 - \beta_0^n & \alpha & & & 0 \\ \alpha & 1 - \beta_1^n & \alpha & & \\ & \alpha & 1 - \beta_2^n & \ddots & \\ & & \ddots & \ddots & \alpha \\ 0 & & & \alpha & 1 - \beta_J^n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi_0^n \\ \psi_1^n \\ \psi_2^n \\ \vdots \\ \psi_J^n \end{bmatrix} \quad (20)$$

ahol az α és β változókat a következőképpen definiáljuk:

$$\alpha = -\frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \quad \text{és} \quad \beta_j^n = \left(\frac{1}{(\Delta z)^2} + V_j^n \right) \frac{i\Delta t}{2}. \quad (21)$$

A fent levezetett diszkretizáció alapján megmutatható, hogy a Hamilton-operátor egy tetszőleges n -edik időlépésre a következő alakot veszi fel:

$$H(t_n) = \begin{bmatrix} \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_0(t_n) & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & 0 & 0 & \dots \\ -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_1(t_n) & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_1(t_n) & \ddots & 0 \\ 0 & 0 & \ddots & \ddots & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} \\ \dots & 0 & 0 & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_{J-1}(t_n) \end{bmatrix} \quad (22)$$

A $H(t_n)$ -el kifejezve a (20)-as mátrix egyenletet a következőt kapjuk:

$$\left[\mathbb{I} + i \frac{\Delta t}{2} H(t_{n+1}) \right] \psi(t_{n+1}) = \left[\mathbb{I} - i \frac{\Delta t}{2} H(t_{n+1}) \right] \psi(t_n) \quad (23)$$

A (23)-as egyenlet ekvivalens a Crank-Nicolson egyenlettel [28]. Ezzel az egyenlettel megfelelően választott időbeli és térbeli lépésközökre tetszőleges Hamilton-operátorra megoldható a hullámfüggvény időbeli propagálása.

A Crank-Nicolson egyenlet 1D-ban egy tridiagonális mátrix egyenlethez vezet, mint ahogy az a fenti levezetésben is látható. Dolgozatomban egy rendkívül gyors numerikus megoldást, a Thomas-algoritmust használtam a Crank-Nicolson egyenlet megoldásához. A Thomas-algoritmus, vagy másnéven tridiagonális mátrix algoritmus (TDMA) a Gauss elimináció speciális változata tridiagonális egyenletrendszerek megoldására [29].

A Thomas-algoritmus nagy előnye más módszerekkel szemben, hogy ebben az esetben csak a 3 főátlót kell vektorként használnunk elkerülve a nagy számításiidőt igénylő mátrix szorzásokat. Ezáltal egy nagyságrenddel gyorsabb számolási sebesség érhető el, mint például a kutatócsoportban korábban használt módszerek esetén [26]. Így az általam definiált módszer jelentős előrelépést jelent a kutatócsoport munkájában.

3.1.3. Fotoelektron spektrumok számolása hullámfüggvényből

Megfelelően választott szimulációs paraméterekkel, potenciálokkal és a korábban tárgyalt módszerekkel az 1D TDSE numerikusan megoldható. A számolásokból kapott elektron hullámfüggvény nem egy mérhető fizikai mennyiség, ellenben a fotoemissziós spektrum a lézerimpulzus végéhez tartozó ($z > 0$) szabad térbe propagált hullámfüggvénnyel állítható elő. Ez a lézertér által perturbált hullámfüggvény amit $\psi_{\text{pert}}(z, t = \tau)$ jelölünk, ahol τ a lézerimpulzus végéhez tartozó időpillanat.

Mivel a modellemmel a teljes hullámfüggvényt számolom ki, ezért a potenciálhoz tartozó alapállapotú hullámfüggvényt és a perturbált hullámfüggvényt szétválasztottam a Gramm-Schmidt ortogonalizáció segítségével:

$$|\psi_{\text{pert}}(\tau)\rangle = |\psi_0(\tau)\rangle - \frac{\langle \psi_0(\tau) | \psi_{\text{pert}}(\tau) \rangle}{\langle \psi_0(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle} |\psi_0(\tau)\rangle. \quad (24)$$

Ezt követően, a fotoemissziós spektrum a ($z > 0$) térrészben értelmezett perturbált hullámfüggvény síkhullámokra való vetítéséből határozható meg (ahol $E_{\text{kin}} = k^2/2$):

$$\frac{dP}{dE_{\text{kin}}} \sim |\langle e^{ikz} | \psi_{\text{pert}}(z, \tau) \rangle|^2 \quad (25)$$

Mivel a fotoemissziós spektrumok segítségével megérthetők a fotoemissziós mechanizmusok, és az átmeneti tartományok, így a következőkben ezeket szimulálok és elemzem különböző lézerparaméterekre.

3.1.4. Komplex elnyelési potenciál

A teljes időbeni propagálás számolásában emellett használtam még egy komplex elnyelési potenciált (CAP, *complex absorbing potential*) mely biztosította, hogy a szimuláció során a szimulációs tér határáról elektron hullámcsomagok ne verődjenek vissza. A visszeverődő hullámcsomagok lényegesen eltorzíthatják az elektron spektrumok képét. Ellenben a V_{CAP} használatának egyik hátránya lehet, hogy bizonyos nagyenergiás elektronokat is elnyelhet a még a lézertér megszűnése előtt, így ezek az elektronok nem fognak járulékot adni a végső spektrum számolásában. A számolásokhoz emiatt kellően nagy szimulációs teret vettem, ezzel is minimalizálva a szimulációból származó hibákat az elektron energiaspektrumban. Az irodalom alapján a komplex elnyelődési potenciál alakja a következőképpen írható fel [30]:

$$V_{\text{CAP}}(z) = i\alpha_{\text{absorb}}^2 \log \left[\cos \frac{z - z_{\text{cut}}}{z_{\text{max}} - z_{\text{cut}}} \right], \text{ ha } (z > z_{\text{cut}}) \quad (26)$$

ahol z_{cut} az első pont ahol az elnyelés bekövetkezik. A z_{cut} értékét az irodalom értelmében [26] a z_{max} tól számítva 50 atomi egység hosszúságúra rögzítettem. Ha kellően nagy, nullára szimmetrikus szimulációs teret választunk, akkor a $z < 0$ tartományra nem szükséges definiálni ezt az elnyelődési potenciált, hiszen a fémen belül a lézertér hatását elhanyagoljuk. α paraméter a (26)-os összefüggésben az elnyelés erősségét jelenti, amelynek értékét $\alpha = 100$ -ra rögzítettük [26].

A komplex elnyelődési potenciált egy maszk $f_{\text{maszk}} = \exp\{-iV_{\text{CAP}}(z)\}$ függvényként alkalmazzuk a kiszámolt hullámfüggvényre minden egyes időlépésben: $\psi(t_i) = f_{\text{maszk}} \Psi(t_i) = \psi(t_i) \exp\{-iV_{\text{CAP}}(z)\}$.

3.2. Erősterű fotoemissziós folyamatok szimulációs eredményei

3.2.1. Szimulációs részletek

A következő számolásaimban arany nanorészecske felületi potenciálját használtam. Így a Fermi-energiát $E_F = 4.9$ eV-nek és a kilépési munkát $W = 5.1$ eV-nek választottam meg. Lézer középponti hullámhosszát $\lambda_c = 800$ nm-nek választottam meg mivel kísérletileg ez könnyen előállítható és arany nanorészecskéken ilyen hullámhossz mellett rezonánsan gerjeszthetők felületi plazmonok.

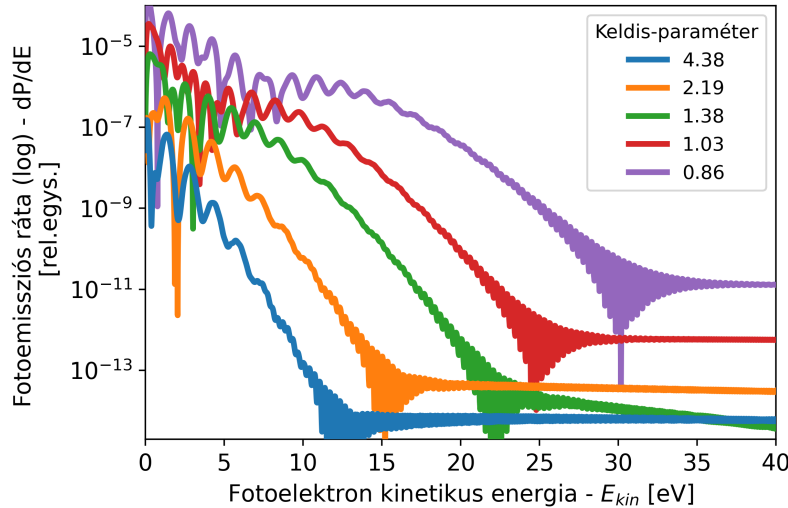
Homogén plazmonikus teret feltételezve a térnövekményt $Q = 10.35$ -nek választottam, ami szintén közel áll a kísérletekben mért értékhez[3].

A numerikus szimulációs 1D rács előállításához $\Delta z = 0.2$ lépésközt és az időbeli felbontáshoz $\Delta t = 0.01$ egyenletes lépésközöket használtam atomi egységekben megadva. Emellett kellően nagy rácsot $[-3500, 3500]$ (atom egységben) alkalmaztam, elkerülve ezzel, hogy a propagált hullámfüggvény nagyenergiás része elnyelődjön a CAP tartományban.

3.2.2. Levágási energiák számolása homogén térben

Ahogy a korábbiakban már tárgyaltam, homogén plazmonikus térben ismert, hogy az elektronok levágási energiája a ponderomotoros energia 10-szeresével skálázódik a (11) összefüggés alapján. Mivel azonos tér esetén az optikai ciklusok száma nem befolyásolja a ponderomotoros energiát így különböző impulzushosszakra is a $10U_p$ skála érvényes [3].

A spektrumok alakjának kvalitatív elemzésével a fotoelektron-dinamikáról kaphatunk információt. Erős-tér tartományban a nagyenergiás visszaszórt elektronok a fotoemissziós spektrumban egy jellegzetes, úgynevezett platót alakítanak ki. Alacsony intenzitások felé haladva, a gyenge-tér tartományban ez a plató fokozatosan megszűnik. 2 optikai ciklusra végzett számolásoknál jól látható, ahogy erős-tér tartomány felé haladva $\gamma \rightarrow 1$ ($\gamma \simeq 1$) fokozatosan megjelenik a spektrum nagyenergiás részén a plató (Lásd 9. ábra, zöld, piros és kék görbéi).

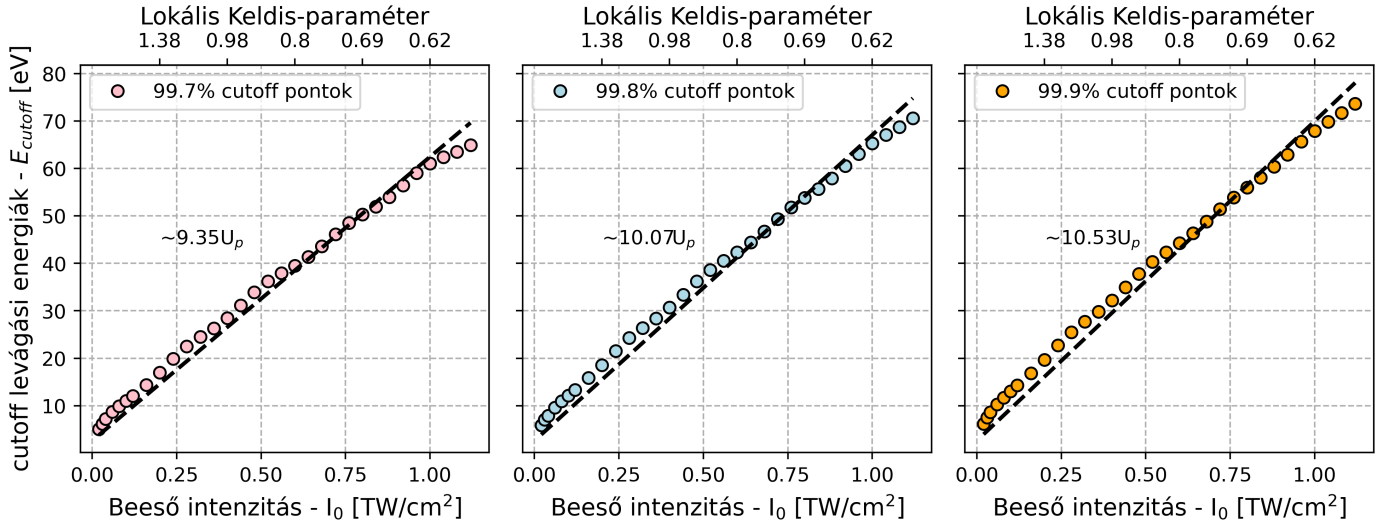


9. ábra. A képen 800 nm-es 2 optikai ciklus ($\tau_p = 5.34$ fs) lézer impulzus esetén kapott fotoemissziós spektrumok láthatók. Egyre kisebb Keldis γ értékeknél jól látható plató jelenik meg a spektrumokban, ami az erős-tér tartományra utal.

A levágási energia erős-tér tartományban a plató és a levágási-szakaszra illesztett egyenesek metszéspontjából határozható meg. Átmeneti tartományban ennek számolása kevésbé triviális a plató hiánya miatt. Ezért érdemes egy egységesebb levágási energia számolási szabályt használni, amivel mindkét tartományban meghatározható a cutoff pont. A cutoff energiát a következőképpen definiáltam:

$$100 \cdot \frac{\int_0^{E_{cutoff}} \frac{dP}{dE} dE}{\int_0^{E_{max}} \frac{dP}{dE} dE} = R[\%] \quad (27)$$

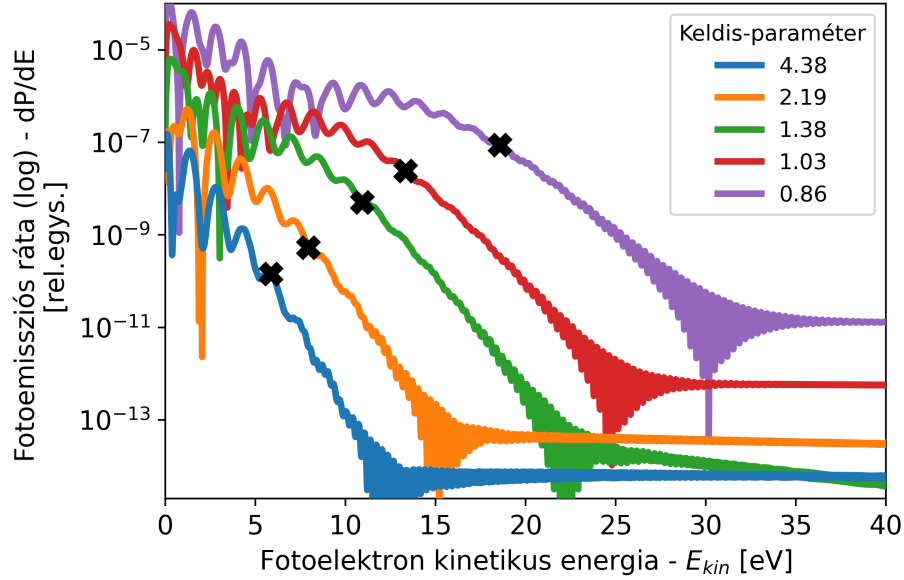
Ez az energia, ameddig integrálva a spektrumot, megkapjuk teljes fotoáram R %-át. A numerikus integrálásokat a Simpson-integrálási formulával végeztem. Mivel tudjuk, hogy a cutoff energiáknak $10U_p$ skálát kell követniük, ezért R -t úgy választjuk meg, hogy az így kapott levágási pontokra illesztett egyenes a lehető legközelebb legyen ehhez. Az R kalibrálását 3 lehetséges érték esetén vizsgáltam meg $R = \{99.7, 99.8, 99.9\}$ %. 2 optikai ciklusra kapott spektrumokra a levágási értékek, valamint az illesztés U_p skálázásai láthatók:



10. ábra. Az ábrákon az R paraméter kalibrációja látható az optimális $10U_p$ skálára. Az optimumot $R = 99.8\%$ -nál kaptam meg.

Az illesztést a (11) képlettel, az elektronok levágási energiájának összefüggése alapján végeztem. A kvantumkorrekciós tagot $0.537W$ -t konstansnak hagytam az illesztés során, így csak a ponderomotoros energia prefaktorát kellett megillesztenem. Ellenben láthatjuk, hogy ebből adódóan az illesztés hibával terhelt, de hibahatáron belül jó eredményt ad. Ennél még pontosabb illesztést akkor kaphatunk, ha R értékét a kvantumkorrekciós tagra is optimalizálnánk.

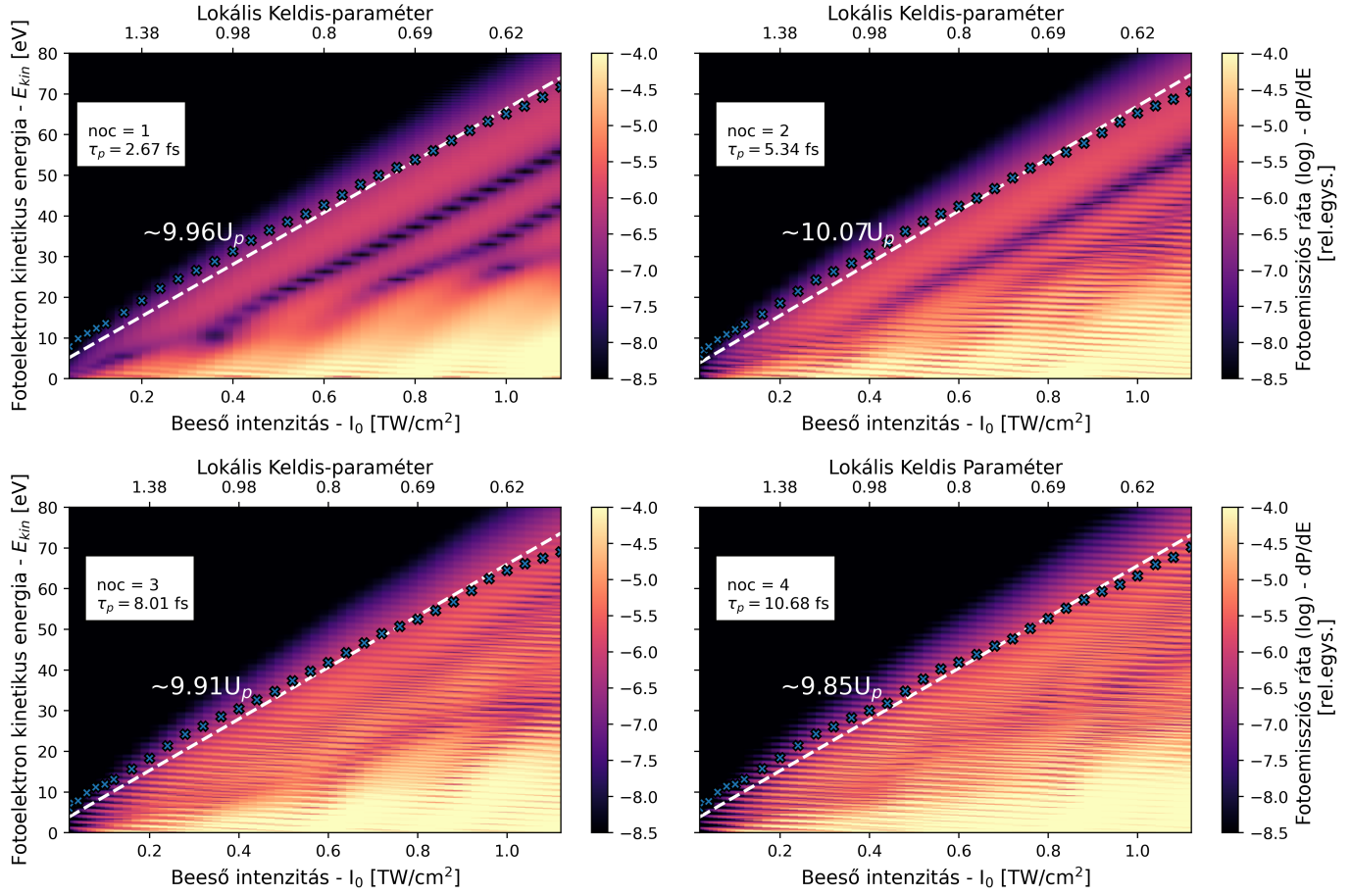
A következő 11. ábrán láthatjuk, hogy jó közelítéssel a várt energiáknál kaptuk meg az $R = 99.8\%$ szabály alapján a levágásokat átmeneti (részben sokfotonos) spektrumokra is.



11. ábra. Fotoemissziós spektrumok és $R = 99.8\%$ levágási szabály alapján számolt levágási energiákkal

A következő oldalon 12. ábrán 1-4 optikai ciklusokra számolt spektrumok fotoemissziós térképe látható a számolt levágási energiákkal. A levágási energiákra illesztett egyenes jó közelítéssel minden optikai ciklusra visszadja a $10U_p$ skálát.

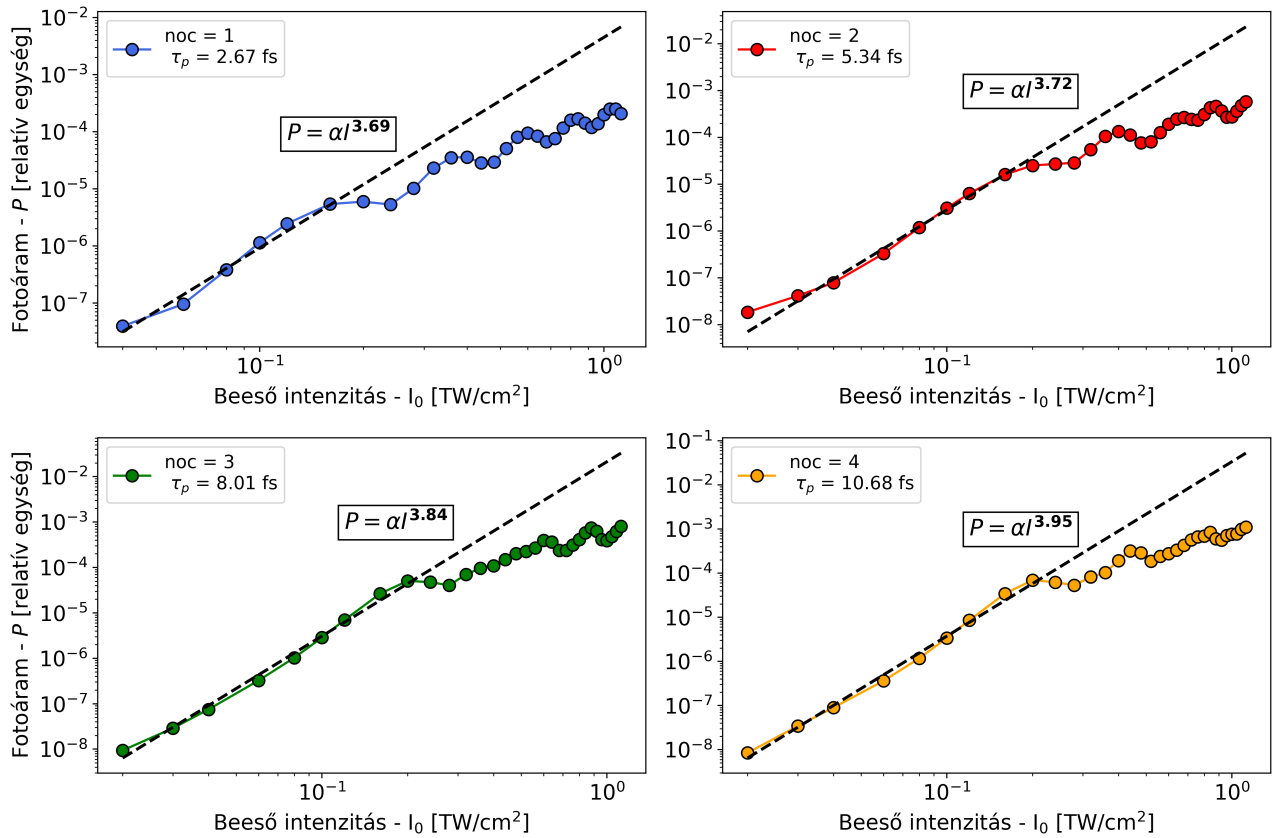
A 12. ábrán az ábrázoláshoz továbbá lineáris interpolációt használtam a jobb felbontás érdekében. A fenti számolások alapján elmondhatom, hogy egy általános levágási energia számolást állítottam fel, amely széles γ tartományon jól visszadja a levágási értékeket optikai ciklustól függetlenül. Ezzel bemutattam, hogy a modellemmel szimulált fotoemissziós spektrumok jól követik az elmélet által várt értékeket.



12. ábra. Fotoemissziós eloszlás-térképek 1-4 optikai ciklusig (0.04- 1.12) TW/cm²-ig 0.04 TW/cm² lépésközzel mintavételezett spektrumok térképe látható.

3.2.3. Elektronhozam impulzushossz függése

Ebben a részben megvizsgáltam, hogy az optikai ciklusok száma milyen hatással van a $\gamma > 1$ sokfotonos tartományú emisszióra. Ehhez 12. ábrán látható fotoemissziós térképen látható szimulált spektrumokat használtam fel. Sokfotonos emisszió esetén ismert, hogy a fotoáram -intenzitás görbe hatvány összefüggést követ $P(I) \sim I^n$, amit log-log skálán ábrázolva egy egyenest kapunk, melynek a meredeksége, n , a legalacsonyabb sokfotonos rend. A fotoáramot a kapott spektrumok numerikus integrálásával számoltam.

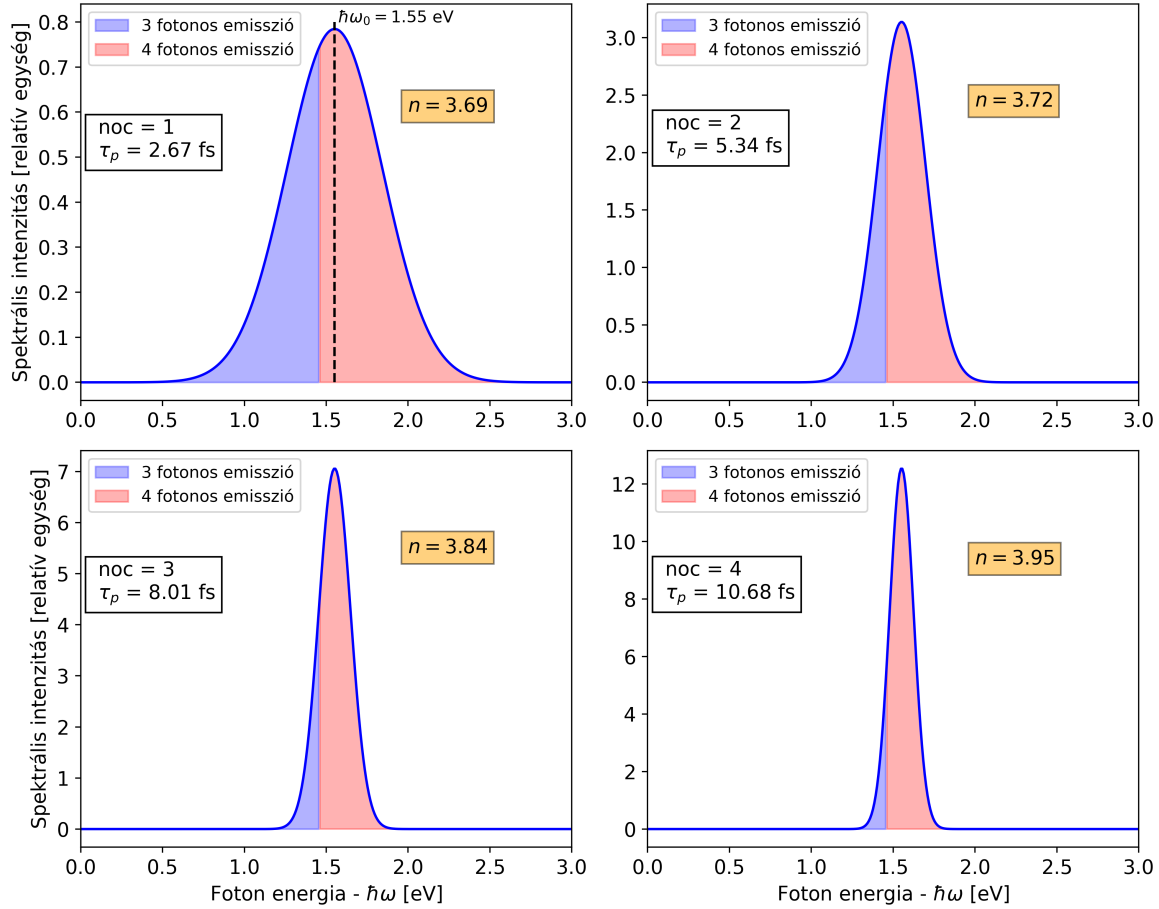


13. ábra. Log-log kálán ábrázolt fotoáram görbék különböző optikai ciklusokra. A görbék alacsony intenzitású részén jól látható a fotoáram lineáris skálázása. 800 nm és 5.1 eV kilépési munka esetén várt $W/(\hbar\omega) \approx 4$ fotonos rendet kaptam meg az illesztésekből.

A fenti számolások alapján kijelenthető, hogy megfelelő módon visszakaptam a lézer és potenciál paraméterei alapján várt 4 fotonos elnyelést különböző optikai ciklusokra. Azonban megfigyelhetjük, hogy nagyobb optikai ciklusok felé haladva egyre jobban közeledik a nemlinearitási érték egzaktul 4-hez.

Ennek az oka, hogy rövidebb lézerimpulzusok esetén a lézer spektrális sáv szélessége egyre nagyobb. Fourier-transzformációs megfontolások alapján adott impulzushosszra a spektrális sáv szélesség

(transzform-limitált gauss impulzusok esetén) $\Delta\omega \approx 0.44/\tau_p$. Ezáltal rövidebb optikai ciklusok esetén a lézer spektruma olyannyira szélessé válik, hogy olyan fotonenergiákat is tartalmazhat amivel 3 fotonos emisszió is megvalósulhat.



14. ábra. A képen az egyes optikai ciklusokra a lézer spektruma látható. Mindegyik spektrumon bejelöltem azt a tartományt, ahol 3 vagy 4 fotonos elnyelés dominál. Az átmenetet 3.5 foton elnyeléshez tartozó energiához húztam be, mivel ekkor a 3 és 4 fotonos elnyelés valószínűsége közel azonos. Az ábrán sárgával kiemelve a fotoáramból számolt fotonrend értékét is feltüntettem.

A 14. ábra alapján nagyon jól látható, hogy 1 optikai ciklus esetén a lézer spektrumának kicsit kevesebb mint fele 3 fotonos elnyelési tartományba esik, ami végül azt eredményezi, hogy a 3 fotonos emisszió is meghatározó szerepet tölt be a sokfotonos emisszióban, amit fotoáram számolások is jól igazolnak.

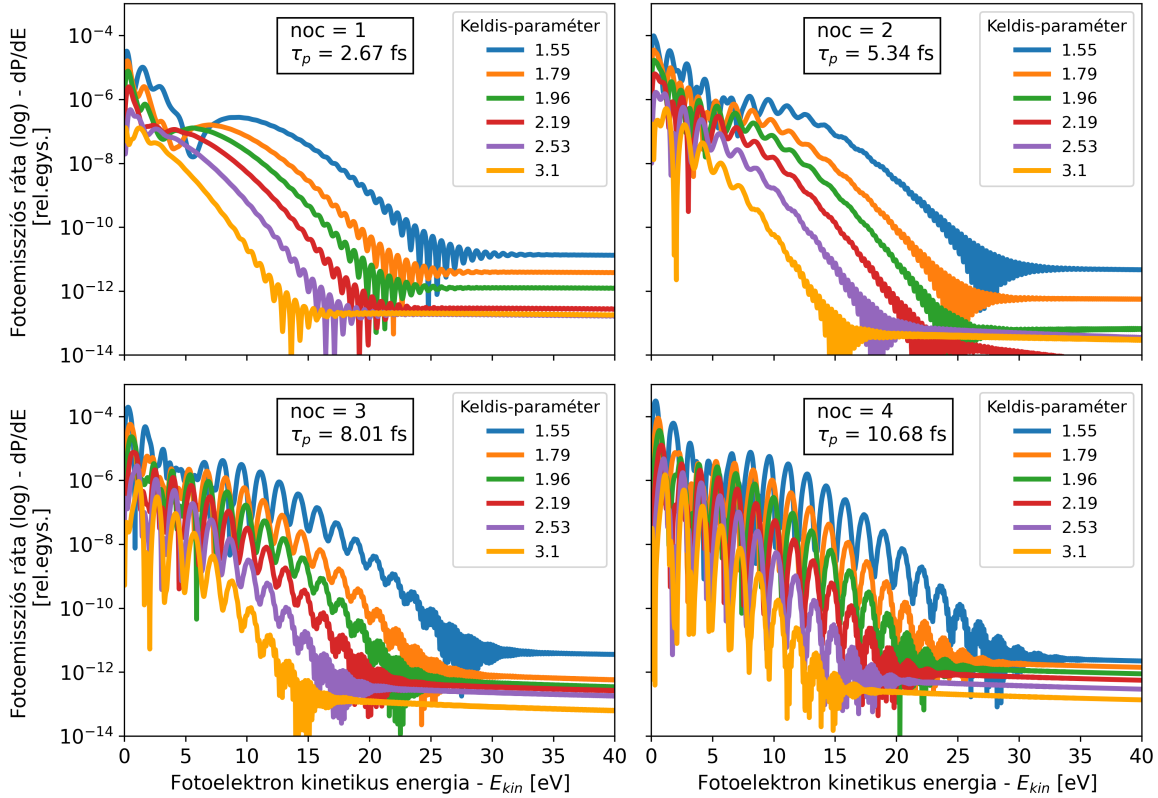
4 optikai ciklusnál pedig olyan keskenyvé válik a lézer spektrálisan, hogy túlnyomórészt 4 fotonos emisszióhoz tartozó energiák lesznek a spektrumban. Ekkor a 4 fotonos elnyelés fogja dominálni a

sokfotonos emissziót, ami szintén jól egyezik a fotoáram számolásokkal.

Ebben a részben megmutattam, hogy a lézerimpulzus hossza, hogyan befolyásolja a sokfotonos emissziót. A következő részben a 13. ábrán látható fotoáramban megfigyelhető karakterisztikus oszcillációk eredetét fogom megvizsgálni.

3.2.4. Küszöbfeletti fotoemisszió és csatornabezáródás

A sokfotonos rend mellett megjelennek még a spektrumban az úgynevezett küszöbfeletti fotoemissziós csúcsok is (ATP), de ezeknek járuléka a gyengeterű fotoemisszió során elenyésző. Azonban, az intenzitást növelve ezeknek a fotoncsatornáknak jelentős szerepük van a fotoemissziós mechanizmusban. A következő ábrán néhány spektrumot ábrázoltam a 12. ábra fotoemissziós térképe alapján:



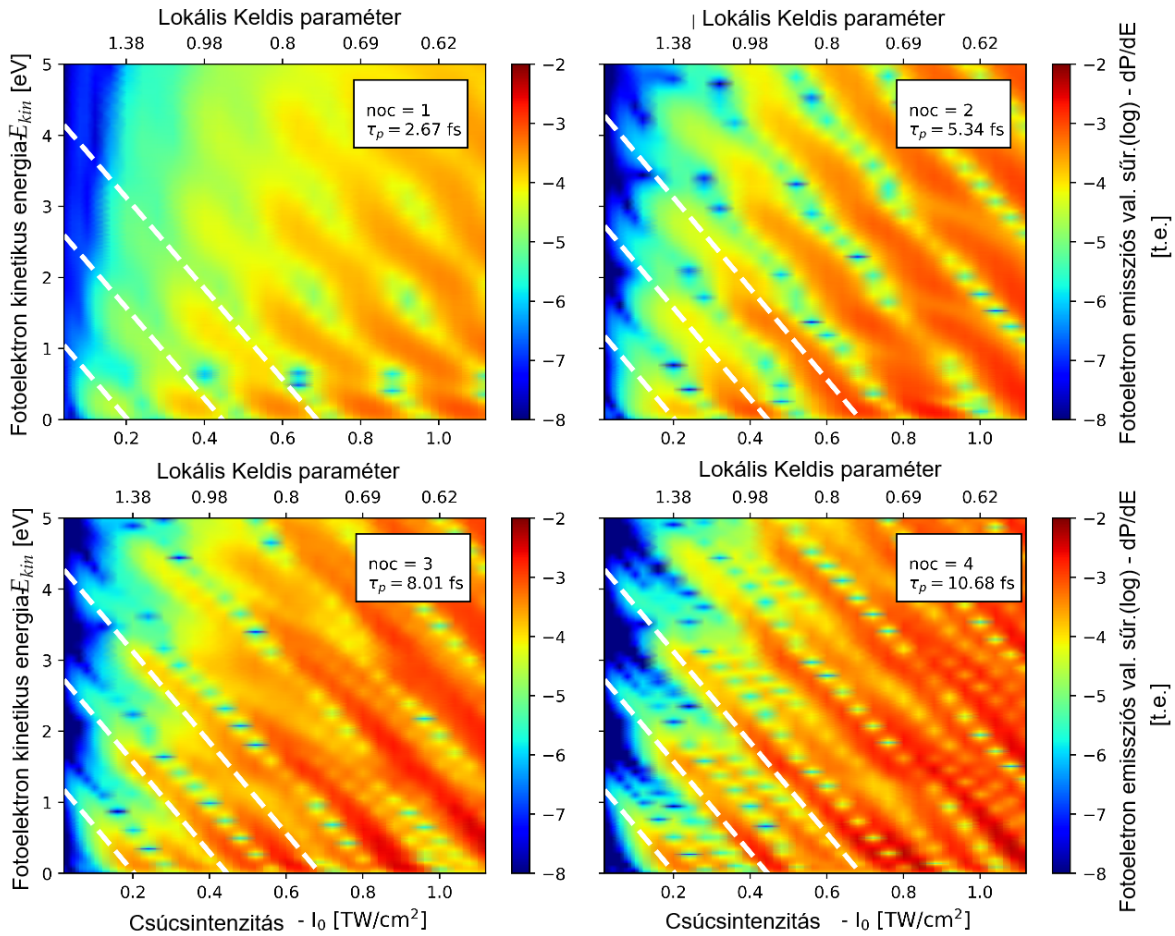
15. ábra. Fotoemissziós spektrumok különböző intenzitásokra és optikai ciklusokra.

A 15. ábrán megfigyelhetjük, hogy az optikai ciklusok számának növelésével a küszöbfeletti fotoncsúcsok fokozatosan egyre erőteljesebben jelennek meg a spektrumban. Ennek jellegzetes szerkezet kialakulásának az oka a lézer spektrumára vezethető vissza.

Mivel hosszabb lézerimpulzusokra a spektrális sáv szélesség rendkívül lecsökken, így a küszöbfeletti kontinuum állapotokat rezonánsan gerjeszti a külső tér, ami éles csúcsokat eredményez a fotoelektron

spektrumban. Az így kialakult szomszédos rezonáns csúcsok távolsága a lézer fotonenergiájával egyezik meg, ami esetünkben 1.55 eV.

Az intenzitás növelésével az elméleti részben tárgyaltak alapján a küszöbfeletti fotoncsúcsok fokozatos eltolódása és végül egy küszöb intenzitásnál ezek megszűnése figyelhető meg. A következő fotoemissziós térképen jól látható a küszöbfeletti fotoncsúcsok Stark-féle eltolódása.



16. ábra. Az egyes optikai ciklusokra ábrázolt fotoemissziós térképek láthatók. A kék "nyúlványok" a küszöbfeletti fotoemissziós csúcsokra utalnak. Az ábrákon a fehér szaggatott egyenesek a csúcspozíciók egzakt $-U_p$ eltolódását jelöli az egyes fotonrendekre (4,5,6).

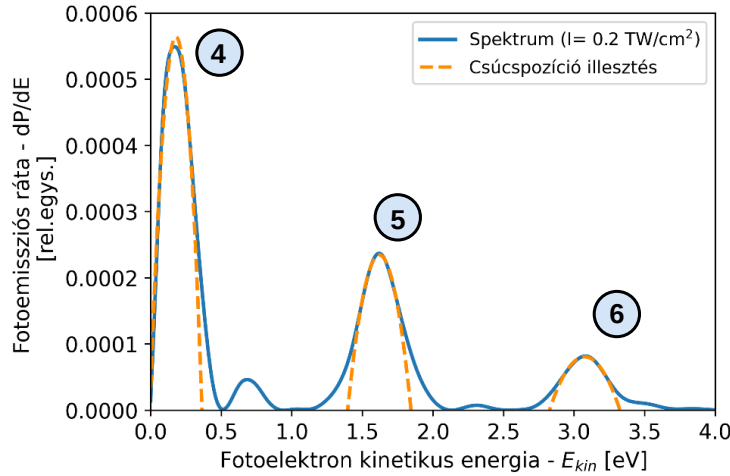
Az is megfigyelhető a 16. ábrán, hogy egy kritikus intenzitásértéknél, amikor a kinetikus energia nullává ($E_{kin} = 0$) válik, akkor megszűnik a vizsgált fotonrend. A csúcspozíciók eltolódása az $E_{kin} = n\hbar\omega - W - U_p$ összefüggés alapján változik. Ezek alapján a küszöbintenzitás az n -edik fotonrendre a következőképpen számolható ki legáltalánosabban:

$$I_{\text{küszöb}} = \frac{n\hbar\omega - W}{\frac{dU_p}{dI}}, \quad (28)$$

ahol dU_p/dI nem más, mint a ponderomotoros energia deriváltja az intenzitás szerint. Mivel az intenzitás lineárisan skálázza a ponderomotoros energiát, ezért ez minden I értékre egy konstans szám lesz. Értéke $\text{eV}/\text{TWcm}^{-2}$ egységet használva $dU_p/dI = 0.0933 \cdot \lambda[\mu\text{m}]^2$. 800 nm-rel számolva $dU_p/dI = 0.0597 \text{ eV}/\text{TWcm}^{-2}$ -nek adódik.

Az korábban tárgyalt elméletek alapján tudjuk, hogy a fotoáramban tapasztalható lokális csökkenések az egyes küszöbfeletti fotoncsatornák bezáródásával értelmezhetők [13]. Dolgozatomban fő állítása, hogy fotoáram levágásaihoz tartozó intenzitásérték a fotoncsúcsok eltolódásából számolt küszöbintenzitás értékkel megbecsülhető.

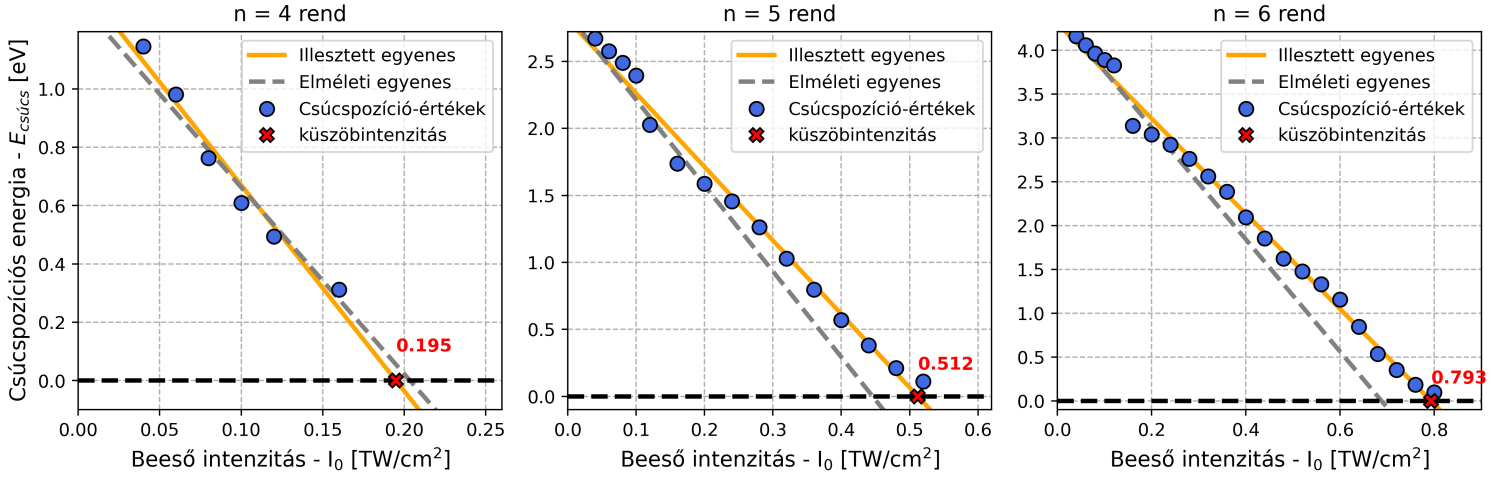
A következőkben tehát egy olyan általam fejlesztett analízist mutatok be, mely alapján a küszöbintenzitások megbecsülhetők. Első lépésként a különböző intenzitásokra mért spektrumok esetén az első 3 rend (4,5,6) csúcspozícióit határoztam meg egy másodfokú görbe $y = a(x - b)^2 + c$ illesztésével. A következő ábrán 4 optikai ciklusra számolt fotoelektron spektrumon végzet csúcspozíció becslését láthatjuk:



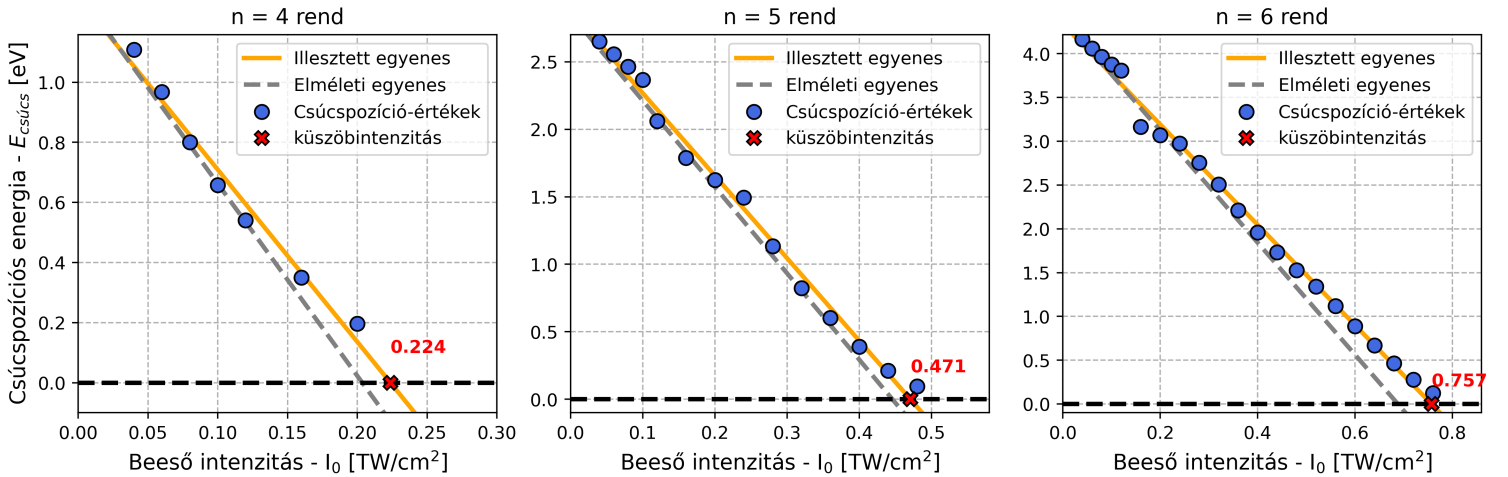
17. ábra. 4 optikai ciklusra számolt fotoemissziós spektrum csúcspozíció analízise az első 3 fotonrendre. A korábbiakkal ellentétben nem logaritmikus skálán ábrázoltam a fotoemissziós rátát.

Ezt követően az adott rendre ábrázoltam a csúcspozíciókat az intenzitás függvényében. Az adatpontokra (10) összefüggés alapján egyenest illesztve $y = mx + b$ az egyenes meredeksége $m = -dU_p/dI$ lesz, és az y eltolás pedig $b = n\hbar\omega - W$. A küszöbintenzitás az illesztési paraméterekből $I_{\text{küszöb}} = -b/m$ alapján számolható.

A csúcspozíció analízist 3 és 4 optikai ciklus esetén végeztem el, mivel ekkor a csúcsok kellően keskenyek ahhoz, hogy pontosan megállapítsuk a csúcspozíció értékét.

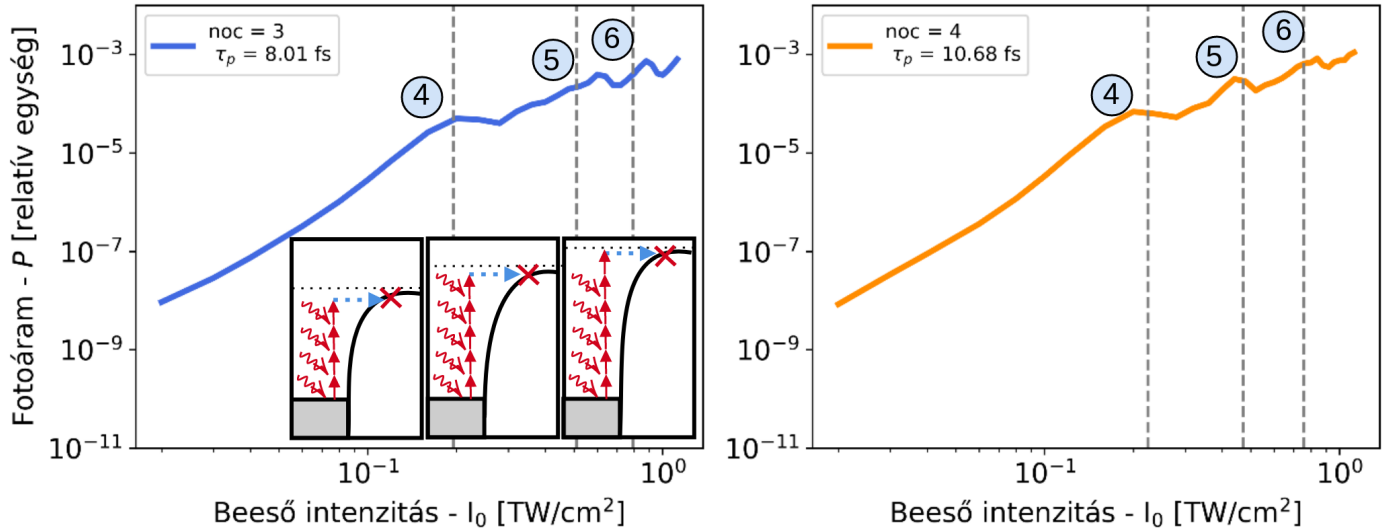


18. ábra. 3 optikai ciklus esetén az első három rend csúcspozíció eltolódásának vizsgálata látható.



19. ábra. 4 optikai ciklus esetén az első három rend csúcspozíció eltolódásának vizsgálata látható.

A 18-19 ábrákon jól láthatjuk, hogy a becsült csúcspozíciók jó egyezést mutatnak az egzakt $-U_p$ eltolódással (szürke szaggatott egyenes). Végül a 20. ábra fotoáram görbéin bejelöltem a csúcspozíciók eltolódásából becsült küszöbintenzitásokat:



20. ábra. 3 és 4 optikai ciklusra számolt fotoáram görbék láthatók a csúcspozíció analízissel becsült küszöbintenzitásokkal (szaggatott szürke vonalak). A bal oldali ábrán belül a csatornabezáródás sematikus ábrája is látható a vizsgált fotonrendekre.

A 20. ábra alapján belátható, hogy rendkívül jó egyezés van a sokfotonos rendek csúcspozíció analízisével számolt küszöbintenzitások és a fotoáram görbe levágásai között. Azonban megfigyelhetjük, hogy néhány esetben alulbecsülte a módszer a küszöbintenzitás értékét. Ennek egyik lehetséges oka, hogy a csúcspozíció meghatározásnál egy másodfokú görbét használtam, amivel a lokális maximum jól illeszthető de aszimmetrikus és kiszélesedett csúcsok esetén nem a lokális maximum, hanem a csúcshalakhoz tartozó súlypont közelíti legjobban a görbe középponti hullámhosszát. Egy másik lehetséges hibaforrás pedig a csúcspozíció-intenzitás adatpontokra való illesztésből származó hiba.

Ebben a részben a sokfotonos csúcsok Stark-eltolódásának vizsgálatával megbecsültem az egyes rendek "bezáródásához" tartozó küszöbintenzitásokat. Az így kapott intenzitások pedig jó közelítéssel megfeleltethetők a fotoáram görbében megfigyelhető levágások helyével.

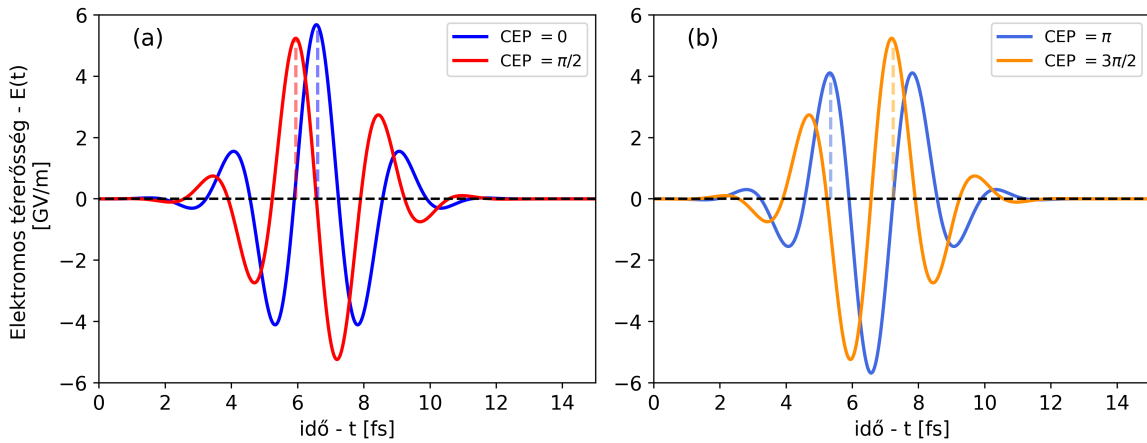
3.2.5. Küszöbfeletti fotoemisszió CEP függése

A fotoelektron dinamikában meghatározó szerepe van a lézerimpulzus vivő-burkoló fázisának (CEP), különösképpen az ultrarövid impulzusok esetén. Az elmúlt években egyre nagyobb érdeklődést váltott ki nanorészecskék fotoemissziójának CEP alapú kontrollálásának vizsgálata [31], ezért ennek elméleti vizsgálata és megértése különösen fontos.

Néhány optikai ciklusú lézerterek esetén megmutatható, hogy a CEP-től nem független a ponderomotoros energia értéke [32]. Adott optikai ciklusra az elektromos tér maximuma csökkenni fog a ϕ_{cep} fázis változtatásával. Ezáltal a ponderomotoros energia a következőképpen írható fel atomi egységet használva:

$$U_p(\phi_{\text{cep}}) = \mathcal{E}(\phi_{\text{cep}})^2/(4\omega^2), \quad (29)$$

ahol $\mathcal{E}(\phi_{\text{cep}})$ a ϕ_{cep} -hez tartozó tér maximális amplitúdója. Mivel U_p függ a ϕ_{cep} értékétől, ezért a deriváltja dU_p/dI is, ami ahogy korábban beláttuk egy konstans. A továbbiakban ezt a ϕ_{cep} -től függő derivált értéket $dU_p(\phi_{\text{cep}})/dI$ -vel jelölöm.

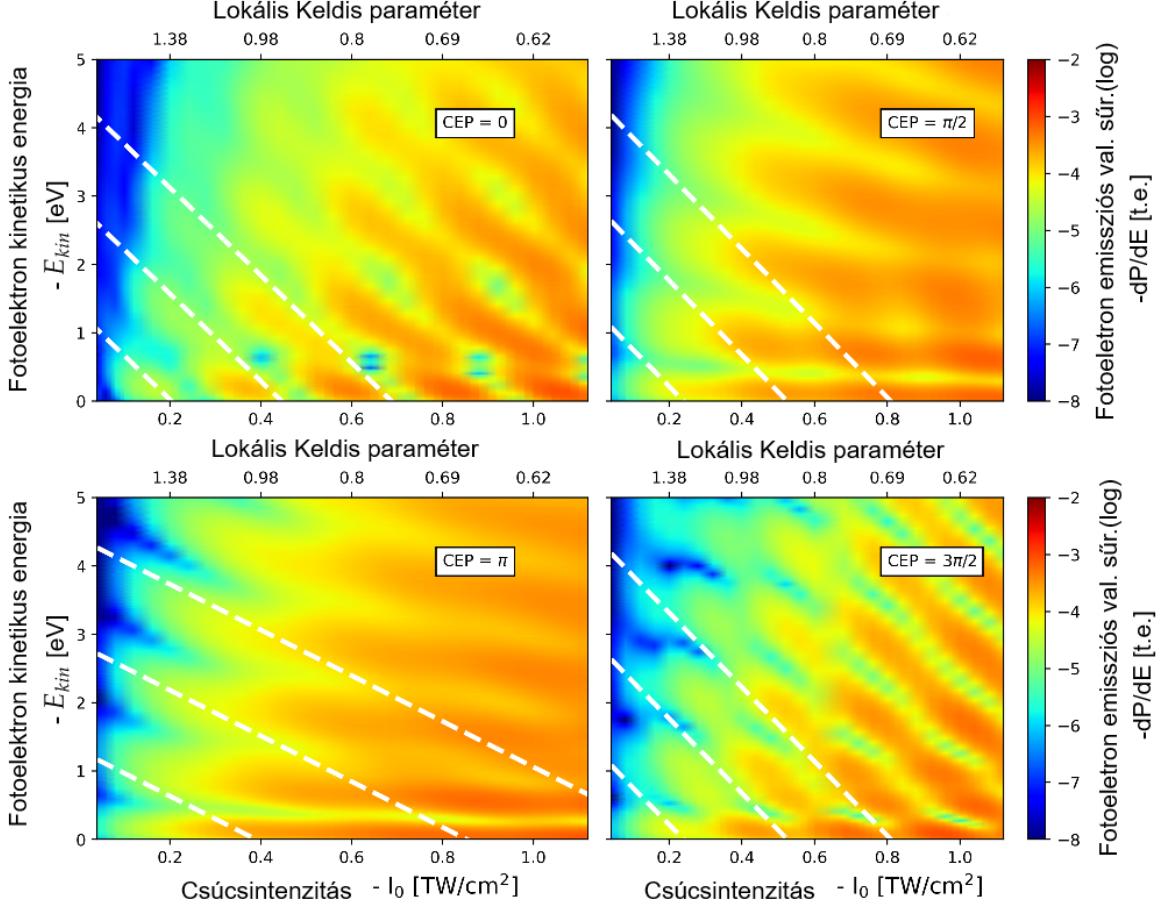


21. ábra. 1 optikai ciklusú lézertér elektromos tere látható 0 és $\pi/2$ fázisokra (a), továbbá π és $3\pi/2$ fázisokra (b). Mindkét ábrán szagatott egyenessel a tér maximális amplitúdójának az impulzuson belüli pozícióját jelöltem

A 21. ábrán jól láthatjuk, hogy a CEP módosításával a tér amplitúdója csökken. Mivel a sokfotonos csatornák Stark-eltolódását a ponderomotoros energia skálázza, ezért a CEP fázis változtatásával kontrollálható az egyes foton-csatornák bezáródása.

A következőekben tehát megvizsgáltam 1 és 2 optikai ciklusú terek esetén a vivő-burkoló fázis hatását a csatornabezáródás jelenségére. A számolásaim során (0.04-1.12) TW/cm²-ig 0.04 TW/cm² mintavételezéssel szimuláltam fotoelektron spektrumokat.

A következő oldalon ábrázoltam 1 optikai ciklusú számolásokra kapott fotoemissziós eloszlásokat $\phi_{\text{cep}} = \{0, \pi/2, \pi, 3\pi/2\}$ fázisokra.



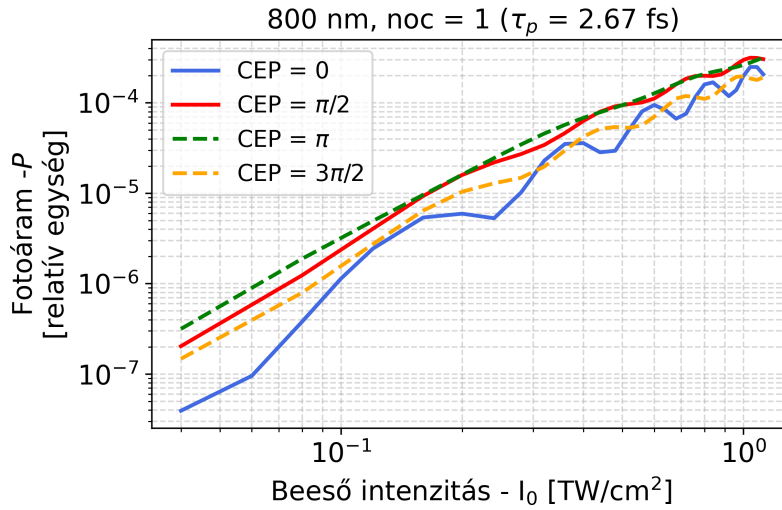
22. ábra. 1 optikai ciklusra számolt fotoemissziós térképek láthatók $\phi_{\text{cep}} = \{0, \pi/2, \pi, 3\pi/2\}$ fázisokra. A fehér szaggatott egyenesek az elmélet által várt CEP függő energia eltolódást jelölik az első 3 fotonrendre (4,5,6). A kék "nyúlványok" az egyes fotonrendekre utalnak.

A 0 és $3\pi/2$ fázisok esetén az elmélet által várt csökkenés $dU_p(0)/dI = 0.0597 \text{ eV/TWcm}^{-2}$, míg $dU_p(3\pi/2)/dI = 0.0501 \text{ eV/TWcm}^{-2}$. Láthatjuk, hogy a két esetben közelítőleg visszakaptam a küszöbfeletti fotoncsúcsok elmélet alapján várt csökkenését. Azonban a 22. ábrán észrevehetjük, hogy $\pi/2$ és π fázisok esetén közel 0 a csökkenése ezeknek a csúcsoknak, és nem követik az elmélet által várt energia eltolódást (lásd fehér szaggatott egyenesek). Emellett továbbá $\pi/2$ és $3\pi/2$ fázisok esetén az elmélet alapján $U_p(\pi/2) = U_p(3\pi/2)$ egzaktul megegyezik, így ugyanazt a csökkenést kellene látnunk, míg a számolásaimból nem ez következik.

Az ellentmondás feloldásához figyelembe kell vennünk a CEP-en kívül még az elektromos tér időbeli

alakját is (lásd 21. ábra görbét). 1 optikai ciklusú terek esetén a vivő-burkoló fázissal az elektromos tér teljes időbeli alakja jelentősen megváltozik, ennél fogva ponderomotoros energia időbeli lefutása is meghatározó lesz a fotoelektron-dinamika szempontjából.

Korábban megmutattam, hogy a csatornabezáródás és a fotoáram görbében megfigyelhető lokális csökkenések korrelálthatók egymással. A fenti 22. ábra alapján azt várhatjuk, hogy $\pi/2$ és π fázisokban megszűnnek az oszcillációk. A következő ábrán a fotoáram görbék láthatók különböző CEP értékekre.



23. ábra. 1 optikai ciklusra számolt fotoáram görbék láthatók (log-log skálán) különböző CEP értékekre.

A fenti 23. ábra alapján megfigyelhetjük, hogy $\pi/2$ és π fázis esetén valóban eltűnnek az oszcillációk a fotoáram görbéből, ami alapján megállapíthatjuk, hogy ezek a fotoncsatornák nem záródnak be, nincs effektív Stark-eltolódás. Ellenben 0 és $3\pi/2$ fázisokban továbbra is jól látható "esések" figyelhetők meg, ez alapján itt a foton-csatornák energia-eltolódása már nem nulla.

Továbbá észrevehetjük, hogy a CEP módosulásával a fotonrend jelentősen csökken, tehát 4 fotonos helyett közel 3 fotonos emisszió tapasztalható. Ez is jól mutatja, hogy jelentősen változik a fotoelektron-dinamika eltérő időalakú elektromos terek esetén.

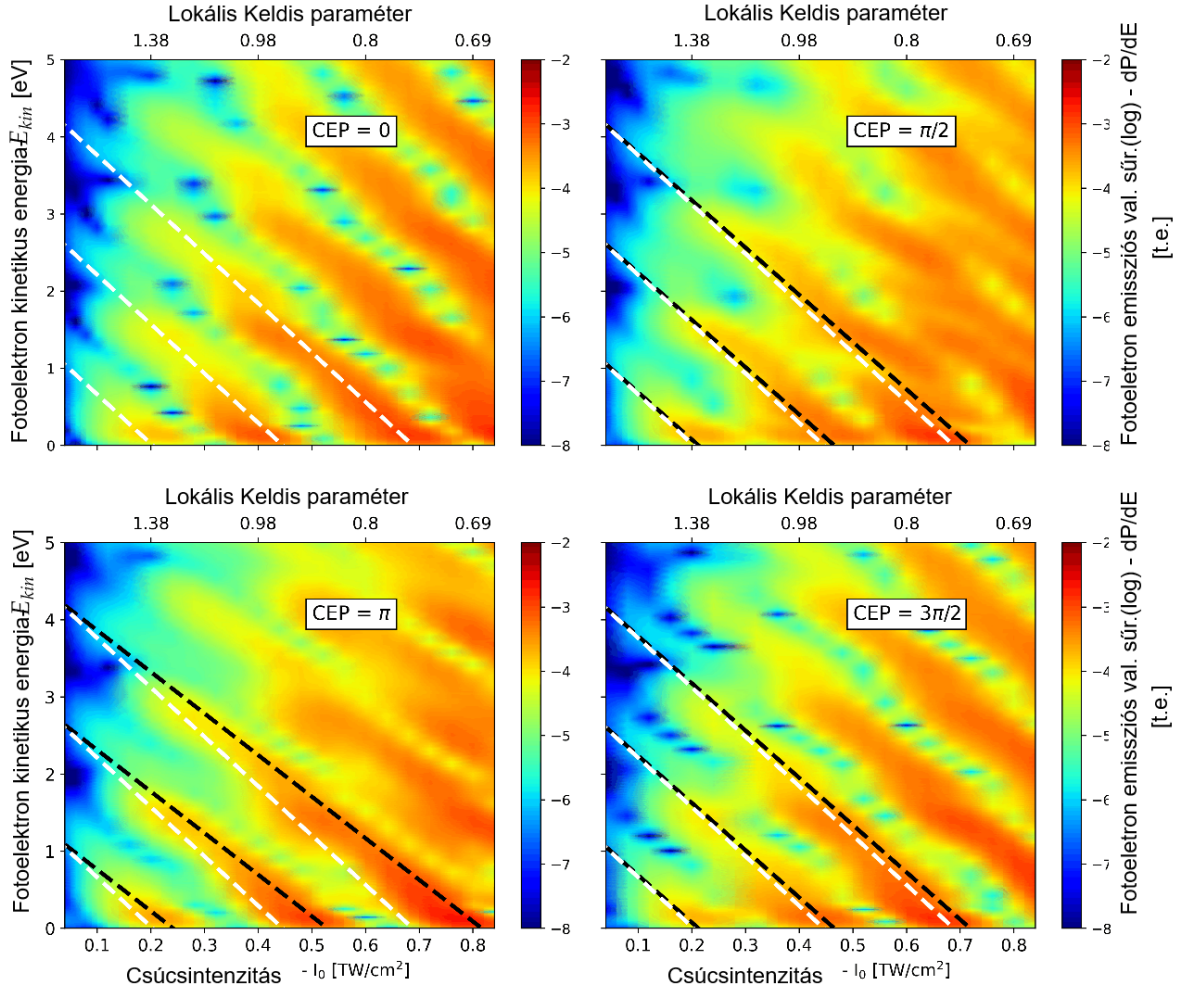
3.2.6. CEP függés vizsgálata 2 optikai ciklusú lézerpulzusra

Végül megvizsgáltam a CEP hatását 2 optikai ciklusú térre is. Ebben az esetben azt várjuk, hogy az elektromos tér időbeli alakjától nem függ a ponderomotoros energia, ellentétben 1 optikai ciklusnál. Következésképp 2 optikai ciklusnál a ponderomotoros energia változását a CEP határozza meg a (29) összefüggés alapján. A csatornabezáródáshoz tartozó küszöbintenzitások peddig ennek megfelelően

módosulnak:

$$I_{\text{küszöb}}(\phi_{\text{cep}}) = \frac{n\hbar\omega - W}{\left(\frac{dU_p(\phi_{\text{cep}})}{dI}\right)} \quad (30)$$

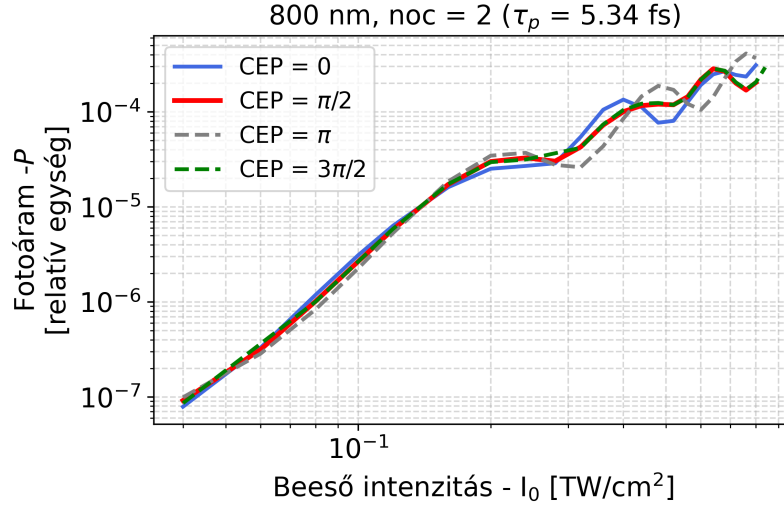
A következő ábrán 2 optikai ciklus mellett készült fotoemissziós térképek eredményeit ábrázoltam:



24. ábra. 2 optikai ciklusra számolt fotoemissziós térképek láthatók $\phi_{\text{cep}} \in \{0, \pi/2, \pi, 3\pi/2\}$ fázisokra. A fehér szaggatott egyenesek a CEP független energia-eltolódást, míg a narancsárga szaggatott egyenesek a CEP által módosított energia-eltolódást jelölik.

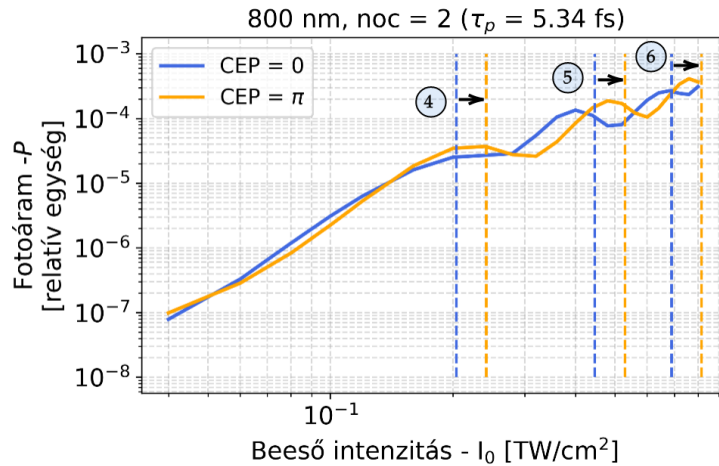
A fenti ábrákon megfigyelhetjük, hogy a (29) összefüggés alapján számolt energia-eltolódások jó egyezést mutatnak fotonrendek energia eltolódásával (lásd 24. ábra narancsárga egyenesek). Azt is észrevehetjük, hogy $\phi_{\text{cep}} = \pi/2$ és $3\pi/2$ esetén a várt eredményt kaptuk ugyanis ekkor a CEP által módosított ponderomotoros energiák megegyeznek.

A következő ábrán a 24. ábra eredményei alapján számolt fotoáram görbékét ábrázoltam:



25. ábra. 2 optikai ciklusra számolt fotoáram görbék (log-log skálán) különböző CEP értékekre.

A 25. ábrán jól kivehető, hogy $\phi_{\text{cep}} = \pi/2$ és $3\pi/2$ fázisok esetén közel ugyanazt a fotoáram görbét kaptuk, míg π fázis esetén a levágások legnagyobb eltolódása látható. Ezt követően az elmélet által becsült küszöbintenzitásokat (30) összefüggés alapján is meghatároztam π és 0 fázisokra, mivel ekkor tapasztalható a legnagyobb eltérés. Megmutatható, hogy $dU_p(0)/dI = 0.0597$ eV/TWcm² és $dU_p(\pi)/dI = 0.0503$ eV/TWcm². Az alábbi ábrán az egyes fotonrendekre becsült küszöbintenzitások láthatók a fotoáram görbékkel:



26. ábra. Az ábrán az elmélet alapján számolt küszöbintenzitások láthatók szaggatott egyenesekkel a fotoáram görbéken 0 és π fázisokban.

A 26. ábrán jól látható, hogy az elmélet alapján számolt küszöbintenzitások jó egyezést mutatnak számolt fotoáram görbék karakterisztikájával.

Ebben a részben bemutattam a vivő-burkoló (CEP) fázis hatását a küszöbfeletti fotoemisszióban. Láthattuk, hogy rövid optikai ciklusok esetén a CEP változtatásával kontrollálható a küszöbfeletti fotoemisszió (lásd 26. ábra). Eredményeim megfelelő módon visszadáták az elmélet által várt trendeket.

4. Összefoglalás, következtetések

A dolgozatom első részében röviden tárgyaltam az ultrarövid lézerimpulzusok és fém-nanoszerkezetek kölcsönhatásából származó fotoemissziós mechanizmusok alapjait. Az elméleti bevezetőben bemutatam továbbá a küszöbfeletti fotoemisszió és csatornabezáródás jelenségét is, végül pedig a lézertér által indukált plazmontér tulajdonságait és szerepét a fotoemisszióban.

A fotoemisszió elméleti alapjai után a 1D Schrödinger-egyenlet megoldásán alapuló fotoemissziós modellem közelítő módszereit mutattam be. Ebben a fejezetben részletesen tárgyaltam a szimulációkban használt lézerterek és felületi potenciálok alakját, továbbá a kísérletekben is mérhető fotoemissziós spektrum számolását hullámfüggvényből.

Dolgozatom következő részében ultrarövid nagyintenzitású lézerterek és arany nanorészecskék kölcsönhatására végeztem számolásokat. Az első alrészben egy általános módszert mutattam be az elektron energiák levágásának meghatározására homogén plazmontérben. Az általam használt módszerrel, sokfotonos, és alagút emissziós tartományban is helyes eredményt kaptam a levágási-energiákra. Továbbá erős-tér tartományban optikai ciklustól függetlenül megkaptam a levegási-energiák $\sim 10U_p$ skálázását.

A második részben a tisztán sokfotonos emisszió impulzushossz függésének számolási eredményeit ismerttettem. Itt megmutattam, hogy a legalacsonyabb fotonrend, hogyan függ a lézer spektrális kiszélesedésétől.

Ezt követően a küszöbfeletti fotoemisszió és csatornabezáródásra végeztem szimulációkat. Saját fejlesztésű analízisen keresztül megmutattam, hogy a sokfotonos csúcsok eltolódásából számolt küszöbintenzitások jól korrelálathatók a fotoáramban megfigyelhető jellegzetes oszcillációkkal, ezáltal fizikailag helyes értelmezést tudtam adni a fotoáram görbe alakjára.

Az utolsó részben a vivő-burkoló fázis (CEP) szerepét vizsgáltam meg a küszöbfeletti fotoemisszióban 1 és 2 optikai ciklusokra. 2 optikai ciklus esetén helyesen visszakaptam a várt trendeket a sokfotonos csúcspozíciók eltolódására, és a fotoáram görbékre. 2 optikai ciklusra megállapítottam, hogy sokfotonos rendek bezáródásának küszöbintenzitása a CEP fázissal szabályozható. Korábbi munkákhoz képest [13] nem csak az impulzushossz, de a vivő-burkoló fázistól való függését is megmutattam a csatornabezáródásnak.

Dolgozatomban sikeresen, fizikailag helyes magyarázatot tudtam adni saját fejlesztésű modellel keresztlül számos fotoemissziós jelenségre, nanométeres és femtoszekundumos skálán, amelyek elméleti megalapozást jelenthetnek a Wigner Fizikai Kutatóközpont Ultragyors Nanooptikai Kutatócsoportjának jövőbeli, ehhez kapcsolódó kísérleteihez.

Köszönetnyilvánítás

Ebben a részben szeretném megköszönni azok munkáját, akik hozzájárultak valamilyen formában a dolgozatom megírásához. Legelőször szeretném megköszönni témavezetőimnek Dr. Dombi Péter és dr. Kiss Gellért Zsolt hozzájárulását, akiknek szakmai iránymutatásával és támogatásával sikeresen megírhattam a TDK dolgozatom. Külön szeretném megköszönni dr. Kiss Gellért Zsolt munkáját, akinek szakmai segítségével sikeresen tudtam értelmezni eredményeimet.

Hivatkozások

- [1] The Nobel Prize in Physics 2023. NobelPrize.org. Nobel Prize Outreach AB 2023. Tue. 24 Oct 2023.
- [2] J. Vogelsang, J. Robin, B. J. Nagy, P. Dombi, D. Rosenkranz, M. Schiek, P. Gross, C. Lienau “Ultrafast electron emission from a sharp metal nanotaper driven by adiabatic nanofocusing of surface plasmons,” *Nano Lett.* 15, 4685-4691 (2015)
- [3] J. Budai, Z. Pápa, I. Márton, P. Wróbel, T. Stefaniuk, Z. Márton, P. Rácz, P. Dombi, “Plasmon-plasmon coupling probed by ultrafast, strong-field photoemission with <7 Angström sensitivity,” *Nanoscale* 10, 16261-16267 (2018)
- [4] A.V. Kabashin, P. Evans, S. Pastkovsky, W. Hendren, G.A. Wurtz, R. Atkinson, R. Pollard, V.A. Podolskiy, A. V. Zayats, "Plasmonic nanorod metamaterials for biosensing," *Nature Mater* 8(11), 867–871 (2009)
- [5] H. Atwater, A. Polman, " Plasmonics for improved photovoltaic devices," *Nature Mater* 9, 205–213 (2010).
- [6] P. Dombi, Zs. Pápa, J. Vogelsang, S. V. Yalunin, M. Siviş, Ge. Herink, Sa. Schäfer, P. Groß, C. Ropers, C. Lienau, "Strong-field nano-optics," *Rev. Mod. Phys.* 92, 025003 (2020).
- [7] P. Rácz, Zs. Pápa, I. Márton, J. Budai, P. Wróbel, T. Stefaniuk, C. Prietl, J. R. Krenn, P. Dombi, "Measurement of Nanoplasmonic Field Enhancement with Ultrafast Photoemission," *Nano Lett.* 17, 1181-1186 (2017)
- [8] B. Lovász, P. Sándor, GZ. Kiss, B. Bánhegyi , P. Rácz , Zs. Pápa, J. Budai, C. Prietl, JR. Krenn, P. Dombi, "Nonadiabatic Nano-optical Tunneling of Photoelectrons in Plasmonic Near-Fields," *Nano Lett.* 22(6) 2303-2308 (2022)
- [9] M. Schenk, M. Krüger, P. Hommelhoff, Strong-Field Above-Threshold Photoemission from Sharp-Metal Tips, *Phys. Rev. Lett.* 105, 257601 (2010)
- [10] Agostini, P., Fabre, F., Mainfray, G., Petite, G. & Rahman, N. K. Free-free transitions following 6-photon ionization of xenon atoms. *Phys. Rev. Lett.* 42, 1127–1130 (1979).
- [11] Muller, H. G., van Linden van den Heuvell, H. B., Agostini, P., Petite, G., Antonetti, A., Franco, M. Migus, A. Multiphoton ionization of xenon with 100-fs laser-pulses. *Phys. Rev. Lett.* 60, 565–568 (1988).
- [12] H. R. Reiss, Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system, *Phys. Rev. A* 22, 1786 (1980).

- [13] S. Yalunin, M. Gulde, C. Ropers, "Strong-field photoemission from surfaces: Theoretical approaches," *Phys. Rev. B.* 84, 195426 (2011)
- [14] H. Hertz, „Über den Einfluss des ultravioletten Lichtes auf die elektrische Entladung,” *Ann. Phys.* 267, 983–1000 (1887).
- [15] P. Lenard, „Über die lichtelektrische Wirkung,” *Ann. Phys.* 313, 149–198 (1902).
- [16] A. Einstein, „Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt,” *Ann. Phys.* 322, 132–148 (1905).
- [17] J. S. Voronov, N. B. Delone, „Many-photon ionization of the xenon atom by ruby laser irradiation,” *Sov. Phys. JETP* 23, 54-58 (1966)
- [18] P. Agostini, G. Barjot, J. Bonnal, G. Mainfray, C. Manus, J. Morellec, „Multiphoton ionization of hydrogen and rare gases,” *IEEE J. Quant. El.* 4, 667-669 (1968).
- [19] F. H. M. Faisal, "Theory of multiphoton processes" Plenum Press, 89-117 (1987)
- [20] L. V. Keldis, "Ionization in the field of strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307-1314 (1965).
- [21] F. V. Bunkin, M.V. Federov, "Cold emission of electrons from the surface of a metal in strong radiation field," *Sov. Phys. JETP* 21, 896-899 (1965)
- [22] A. M. Perelomov, V.S. Popov, M. V. Terent'ev, "Ionization of atoms in an alternating electrical field," *Sov. Phys. JETP* 23, 924–928 (1966).
- [23] Perelomov, A. M., Popov, V. S. & Terent'ev, M. V. Ionization of atoms in an alternating electrical field: II. *Sov. Phys. JETP* 24, 207–217 (1967).
- [24] M.V. Ammosov, N.B. Delone, V.P. Krainov, "Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field," *Sov. Phys. JETP* 64 1191 (1986)
- [25] G. Herink, D.R. Solli, M. Gulde, C. Ropers, "Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion," *Nature* 483, 190–193 (2012)
- [26] G.Zs. Kiss, P. Földi, P. Dombi, "Ultrafast plasmonic photoemission in the single-cycle and few-cycle regimes," *Sci Rep.* 12, 3932 (2022)
- [27] L.Seiffert, T. Paschen, P. Hommelhoff, Thomas Fennel "High-order above-threshold photoemission from nanotips controlled with two-color laser fields," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 51 134001 (2018)

- [28] Crank, J. Nicolson, P. "A practical method for numerical evaluation of solutions of partial differential equations of the heat conduction type," Proc. Camb. Phil. Soc. 43 (1): 50–67. (1947)
- [29] J. W. Thomas, "Numerical Partial Differential Equations: Finite Difference Methods," Texts in Applied Mathematics. Vol. 22. Berlin, New York: Springer-Verlag, (1995)
- [30] Kiss, G. Z., Borbély, S., Tóth, A. & Nagy, L. Photoelectron holography of the H molecule. Eur. Phys. J. D 74, 128 (2020).
- [31] W. Putnam, R. Hobbs, P. D. Keathley, K.K. Berggren, F.X. Kärtner, "Optical-field-controlled photoemission from plasmonic nanoparticles" Nature Phys. 13, 335–339 (2017)
- [32] D.G. Arbó, E. Persson, K.I. Dimitriou, J. Burgdörfer, "Carrier-envelope phase dependence in atomic ionization by short-laser pulses," Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 267(2), 330-333 (2009)