

Ultragyors nanoplazmonikus fotoemisszió infravörös lézerekkel

Ligeti Gábor Mihály

Anyagtudomány MSc I. félév

TDK dolgozat

Témavezetők:

dr. Kiss Gellért Zsolt, Dr. Dombi Péter

Wigner Fizikai Kutatóközpont, Ultragyors Nanooptikai Kutatócsoport



Eötvös Loránd Tudományegyetem

2022

Kivonat

A felületi plazmonok a fémfelületi töltéssűrűség kollektív oszcillációi, melyeket egy külső elektromágneses tér (lézertér) rezonánsan is kelthet megfelelő méretű nanorészecskéken. A plazmonikus közeletér egy érdekes tulajdonsága, hogy a felület közelében a lokális elektromos térerősség akár 100-szorosa is lehet a gerjesztő térerősségnek. Ezt hívjuk térnövekménynek, mely a plazmonikus terek egyedi tulajdonsága. A felületi plazmonoknak az alap- és alkalmazott kutatásokban jónéhány alkalmazása is megjelent. Akár a felületerősített Raman spektroszkópiában a jelszintek nagyságrenddel való növelésében, vagy az ultragyors időfelbontásos pásztázó elektronmikroszkópok fotoemitterének fejlesztésében meghatározó szerepük van. A felületi plazmonokat ultrarövid, femtoszekundumos lézerimpulzusokkal is lehet gerjeszteni, az intenzív lézertér hatására pedig fotoelektron-emisszió is bekövetkezik.

A Wigner Fizikai Kutatóközpont Ultragyors Nanooptika Kutatócsoportja megmutatta, hogy a fotoelektronok segítségével képesek meghatározni a nanoplazmonikus térnövekményt [1]. További érdekes effektusok tanulmányozhatók akkor, ha a plazmonoszillációkat közép-infravörös lézertér kelti, az elektronok energiája ugyanis a hullámhossz négyzetével skálázódik. Az ilyen fotoemissziós kísérleti eredmények pontos értelmezéséhez az elméleti/szimulációs háttér kialakítása is elengedhetetlen [2].

A dolgozatomban a lézeres potenciálra és lézeres gerjesztése implementáltam az egy dimenziós (1D) időfüggő Schrödinger-egyenletet a Thomas-algoritmus segítségével és különböző szimulációkat végeztem nanoplazmonikus terekre. Dolgozatom első részében az elméleti háttérét mutatom be a Crank-Nicolson módszernek és a Thomas-algoritmusnak, majd a következő részekben megmutatom, hogy mind 800 illetve 2000 nm-es középponti hullámhosszra, egy illetve több optikai ciklusú impulzusok esetén is visszkapjuk a $10U_p$ skálázást a fotoelektronspektrumok levágási energiájából.

A csoport eddigi kísérletei azt mutatták, hogy a közeli infravörös tartomány nagyobb hullámhosszaira, tipikusan 2000 nm-es hullámhossz felett már nem a $10U_p$ skála érvényesül a fotoemissziós spektrumok levágási energiájára, ugyanis a levágási pont a vizsgált cél-nanotérnyak esetén elmozdul a $7U_p$ érték irányába. A dolgozatban ennek a jelenségnek is bemutatom az elméleti háttérét. A dolgozat harmadik szakaszában ezen kísérleti munkákhoz szorosan kapcsolódó szimulációs eredményeket fogok bemutatni.

Tartalomjegyzék

1. Bevezető	4
2. Fotoemisszió elméleti leírása és modellezése	6
2.1. Fotoemissziós mechanizmusok	6
2.2. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet (TDSE)	8
2.3. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet diszkretizációja	10
2.4. Thomas-algoritmus	11
3. Fém nanoszerkezetek fotoemissziójának szimulációja	13
3.1. Potenciálok és külső terek alakja	13
3.2. Konvergencia-tesztek infravörös impulzusokra	15
3.3. Szimulációs részletek	17
4. Számolt fotoemissziós spektrumok infravörös impulzusokra	18
4.1. Fotoemissziós spektrumok - 800 nm-es lézerimpulzusokra	19
4.2. Fotoemissziós spektrumok - 2000 nm-es lézerimpulzusokra	22
5. Plazmonikus fotoemisszió: homogén és inhomogén térnövekmények	24
5.1. Nanotéglára számolt spektrumok	25
5.2. A fotoelektronok levágási energiájának (<i>cutoff</i>) vizsgálata	28
6. Következtetések, kitekintés	32

1. Bevezető

Az elmúlt évtizedek ugrásszerű fejlődése a lézerfizika és a nanotechnológia területén új távlatokat nyitott meg az ultragyors fény-anyag kölcsönhatási folyamatok természetének nanométeres tartományú megértésében, és ezek az új tudományos eredmények közvetlenül felhasználhatóak az alap és alkalmazott kutatásokban. Korábbi munkák alapján azt is tudjuk, hogy fém nanostruktúrák környékén külső elektromágneses tér hatására rezonánsan kelthetők úgynevezett felületi plazmonok, melyek közelében kialakult lokális térerősség (térnövekmény) akár 100-szorosa is lehet a gerjesztő térerősségnek [3] [4].

A felületi plazmonoknak számos alkalmazása jelen van az alap-és alkalmazott kutatásokban. Ilyen például a plazmonikus bioszenzorok [5], fotovoltaiika [6], vagy ultragyors nanoméretű elektronforrások [7] [8].

Az utóbbi években ezért egyre nagyobb kutatási érdeklődést váltott ki különböző plazmonikus nanostruktúrák ultragyors fotoemissziós tulajdonságainak vizsgálata is. Az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont Ultragyors Nanooptika Kutatócsoport megmutatta, hogy fotoelektronok segítségével képesek meghatározni a nanoplazmonikus térnövekményt [1]. A Kutatócsoport további munkáiban pedig már olyan egyedi viselkedést is kimutatott, mint a nemadiabatikus alagútazás [9] [4].

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.

Az ultragyors nanoplazmonikus fotoemisszió mélyebb megértéséhez elengedhetetlen a kellően pontos elméleti numerikus módszerek fejlesztése [2][10], amelyek amelyek szuperszámítógépek nélkül is megvalósíthatóak. Bizonyos közelítések mellett, ezen plazmonikus fotoemissziós folyamatok modellezése az időfüggő Schrödinger-egyenlet numerikus megoldásán alapul. Az ilyen típusú számolások jellemzően, időigényesek emiatt a különböző numerikus lehetőségek kritikus összehasonlítása és azok számításiigényének figyelembevétele különösen fontos.

Viszonylag nagy térerősségek esetén a fotoemissziós elektronok dinamikáját az elektromágneses térben elsősorban az elektron úgynevezett *quiver* (oszillációs) mozgása és a plazmonikus tér lecsengési hossza határozza meg. Az elektronok levágási energiája pedig az úgynevezett ponderomotoros energiával skálázódik: $U_p[\text{eV}] = 9.33I_0[10^{14}\text{W}/\text{cm}^2]\lambda_0[\mu\text{m}]^2$.

Korábban már bebizonyosott, hogy nanométeres skálán homogénnek tekinthető tér esetére, hogy az atomok fotoionizációjánál levezetett $10U_p$ skálázási törvény érvényesül a fotoemisszió esetében is [13]. Ugyanakkor, bizonyos extrém körülmények közt, például intenzív nagy hullámhosszú lézerimpulzusok és az általa plazmonikus objektumokon indukált nem homogén térnövekményekre ez a skálázási törvény már módosulni látszik [3][19]. Ennek egyik igen érdekes következménye, hogy adott lokális intenzitás mellett a hullámhossz növelésével az elektronok maximális kinetikus energia értéke telítődik cite10.

A dolgozatomban bemutatott elméleti kutatásom egyik fő pontja, hogy elméleti számolásokkal megmutassam, hogy a lézertér egy másik paraméterét, a beeső csúcsintenzitását változtatva, a fotoelektronok levágási energiája lecsengő plazmonikus terek esetén milyen törvény szerint módosul, és milyen mértékben tér el a homogén térnövekmények esetétől ($10U_p$). Céloom továbbá, hogy a korábbi cikkhez képest a levágási energiák vagy másnéven *cutoff*-ok nemlineáris viselkedésének vizsgálatát kiterjesszem sokfotonos és alagútaozási tartományra.

Mivel kísérletileg a hullámhosszal szemben a beeső intenzitás jobban hangolható így különösen fontosak ezek a számolások a jelenlegi és későbbi intenzitásfüggő mérések értelmezésében.

A kutatómunkát a Wigner Fizikai Kutatóközpontban végeztem dr. Kiss Gellért Zsolt és Dr. Dombi Péter témavezetésével. Dolgozatom céljai közé tartozott, hogy egy egyszerűsített modell keretén belül elméleti igazolást nyújthassak a főként kísérletis csoport mérési eredményeihez, valamint a saját fejlesztésű numerikus kód bemutatását követően további elméleti vizsgálódásokat folytassak az elektronspektrumok viselkedésére vonatkozóan.

Kiemelném, hogy az általam, az időfüggő Schrödinger-egyenlet (TDSE) megoldására alkalmazott algoritmusok lehetővé tették, hogy a csoport által már korábban implementált módszerek [2] számolási gyorsaságát meghaladja. Ennek értelmében valós időben alkalmazható olyan jelenségek vizsgálatára mely korábban rendkívül időigényes számolást jelentett (főként a nagy hullámhosszú infravörös impulzusok esetében).

A dolgozatom szerkezete a következő. A jelen bevezető rész követő második fejezetben a fotoemissziós folyamat alapjairól és lehetséges mechanizmusait tárgyalom. Majd ezt követően az elméleti számolásokhoz használt elméleti modelleket és numerikus módszereket mutatom be. A következő 3. fejezetben a fém-nanoszerkezetekhez szükséges potenciálok alakját és numerikus számolásokhoz szükséges konvergencia paraméterek meghatározását tárgyaltam. A 4. fejezetben 800 és 2000 nm-es lézerimpulzusokra végeztem számolásokat különböző intenzitásokra és optikai ciklusokra. A dolgozat 5. fejezetében csoport által végzett kísérletekhez kapcsolódóan kiterjesztettem az eddigi számolásaimat lecsengő plazmonikus terekre. Ebben a részben mutatom be a fotoelektronok levágási energia skálájának intenzitásfüggő módosulását infravörös (2000 nm)-es lézerimpulzusra.

2. Fotoemisszió elméleti leírása és modellezése

Ebben a fejezetben az ultrarövid és nagyintenzitású lézerimpulzusok fém-nanoszerkezetek kölcsönhatásából származó fotoemissziós folyamatok elméleti alapjait tárgyalom. Az első részben bemutatom az erőstér lézerfizikában széleskörben használt Keldis-formalizmust, és ennek segítségével áttekintem az egyes fotoelektron-emissziós mechanizmusokat. A fejezet második felében a fotoemisszió leírására szolgáló időfüggő Schrödinger-egyenletet, és a megoldásához használt numerikus módszereket úgy, mint a Crank-Nicolson vagy a Thomas-algoritmust részletezem.

2.1. Fotoemissziós mechanizmusok

Erőstér-fizikáról ("strong-field physics") akkor beszélünk, amikor a fény elektromos tere által a kötött elektronokra kifejtett erő összemérhető az anyagon belül az elektronokra ható kötési erővel [11]. Ekkor már nem tekinthetjük a lézerteret gyenge perturbációnak, és (erősen) nemlineáris effektusok figyelhetők meg. Ilyen nemlineáris folyamatok lehetnek például a többfotonos, vagy a fényindukált alagút fotoemisszió.

1964-ben Leonid V. Keldis úttörő munkájának köszönhetően sikeresen megmagyarázta a fényindukált alagútionizáció jelenségét atomi rendszerekre [12]. A későbbiekben az is kiderült, hogy elméleti megközelítése kapcsolatot teremt a különböző ionizációs folyamatok között. Az elmélet alapvetően atom és molekula rendszerek ionizációját magyarázza, ugyanakkor az elmélet fémek fotoemissziójára is triviális kiterjeszthető, ilyenkor a leggyengébben kötött elektron kötési energiájának helyére a fémfelület kilépési munkája lép [13]. A dolgozatom középpontjában a fém-nanoszerkezetek fotoemissziós tulajdonságainak elméleti vizsgálata szerepel, így a következőkben a fotoemisszió kifejezést használom.

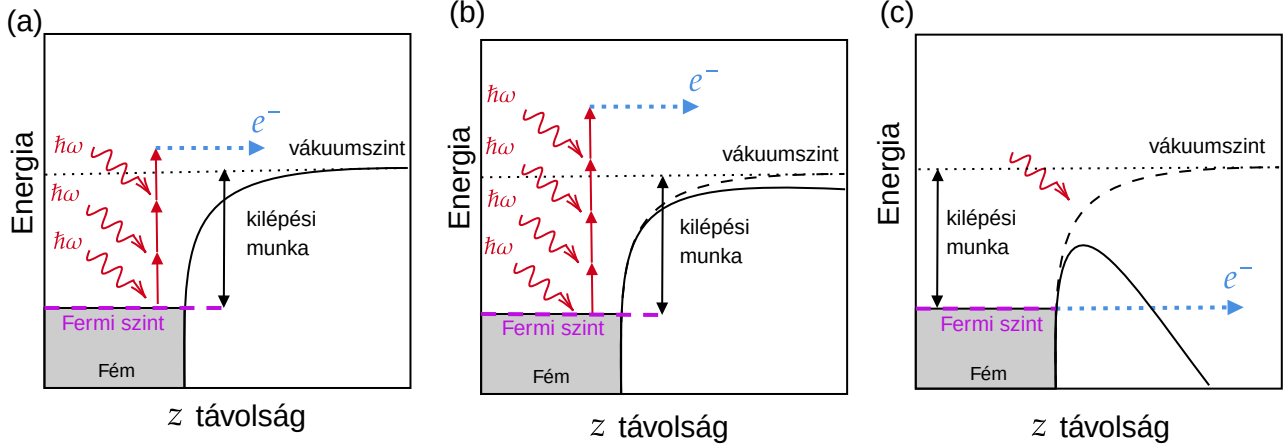
Keldis elméleti leírásában definiált egy karakterisztikus paramétert γ [13] amely feltételt ad, hogy milyen körülmények között valósulhat meg sokfotonos emisszió vagy alagutazás:

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

A fenti (1)-es egyenletben W az adott anyagra vonatkozó kilépési munka, U_p pedig az úgynevezett ponderomotoros energia. A ponderomotoros energia az erős-tér lézerfizikában, egy adott térerősségű EM (elektromágneses) térben egy szabad elektron egy ciklusra átlagolt, oszcillációs mozgási azaz *quiver* energiáját jelenti. A ponderomotoros energia a következő összefüggéssel adható meg:

$$U_p = \frac{e^2 \mathcal{E}^2}{4m_e \omega_0^2}, \quad (2)$$

e az elektron töltése, $\mathcal{E}$ a lineárisan polarizált elektromos tér amplitúdója, és ω_0 az elektromágneses tér körfrekvenciája. A fenti összefüggés a ponderomotoros energiára a lézer csúcshintenzitásával is kifejezhető ($I_0 = c\varepsilon_0\mathcal{E}^2/2$), és a következő alakban írható fel: $U_p \sim I_0\lambda_0^2$.



1. ábra. Fotoelektron-emissziós mechanizmusok különböző lézerintenzitásokra: (a) Sokfotonos fotoemisszió, (b) Küszöbfeletti fotoemisszió, (c) Alagút fotoemisszió

A fenti (1)-es ábrán az egyes fotoemissziós folyamatok láthatóak:

- (a) **Sokfotonos fotoemisszió:** Sokfotonos emisszióról akkor beszélünk amikor a $\gamma < 1$. Ebben az esetben a potenciál csak kis mértékben perturbált a külső EM tér hatására, illetve egy foton energiája sem elegendő ahhoz, hogy a szükséges kilépési munkát elérje az elektron. Ilyenkor egyidejűleg több foton abszorpciójával éri el az elektron a kilépési munkát (A kilépési munkához szükséges minimális foton-számot szokták multifoton emissziós rendjének is hívni: $n_{\min}$). A sokfotonos fotoemisszió esetében a külső lézertér egy gyenge perturbációt jelent, amelyet az időfüggő perturbációs elméleten belül lehet leírni.
- (b) **Küszöbfeletti fotoemisszió:** Küszöbfeletti fotoemisszió olyankor valósul meg, amikor egyre nagyobb intenzitásokkal egyre kisebb γ értékek felé haladunk. Ilyenkor a minimális multifoton rendnél magasabb renddel valósul meg a fotoemisszió $n > n_{\min}$. Ez azt jelenti, hogy több fotonot abszorbeál az elektron mint amennyi szükséges az ionizáláshoz. Ezt az emissziós folyamatot először 1979-ben sikerült megfigyelni [14], majd később fémekre is 1989-ben [15].
- (c) **Alagút fotoemisszió:** Alagút fotoemissziós akkor figyelhető meg, amikor a Keldis-paraméter értéke jóval kisebb mint egy: $\gamma \ll 1$. Ellentétben a többfotonos ionizációval az alagút effektus csak nagy elektromos térerősség és/vagy alacsony frekvenciák mellett következik be. Ilyenkor az

elektromos tér olyan nagy, hogy letöri a potenciált, létrehozva egy potenciálgátat, amelyen az elektron a Fermi szintől nem nulla valószínűséggel alagútazhat át folytonos kontinuum állapotba.

Mindkét utóbbi ionizációs folyamat alapvetően kvantumos képpel érthető meg, így szükségszerű kvantummechanikai modellt használni a fotoemisszió pontos megértéséhez. A fémfelületről kilépő és vizsgált elektron dinamikájáról jó leírást adhat az időfüggő Schrödinger-egyenlet (az egy aktív elektron közelítésben).

A fotoemissziós folyamat elméleti leírásához elengedhetetlen szempont, hogy a plazmonikus tér milyen hatással van az elektron dinamikájára. Korábbi munkák alapján különböző geometriájú nanoszerkezetekre azt is el lehet mondani, hogy a gerjesztett plazmonoscillációkból származó térnövekmény a legkisebb görbületi sugarú részeknél a legnagyobb. Ultrarövid lézerimpulzussal való kölcsönhatás során a plazmonikus tér által lokálisan erősített teret érzik az elektronok a felületi potenciálban. A lokálisan erősített teret a lézerimpulzus elektromos tere $E(t)$ és a térnövekmény $Q(z) > 1$ szorzata adja $E_{\text{loc}} = Q(z)E(t)$. Ahol a $Q(z)$ térnövekmény exponenciálisan csökken a felülettől vett távolsággal.

Mivel a plazmonikus térnövekmény a nanostruktúrák éleinél a legnagyobbak, így ezek környezetében a legérdekesebb a plazmonikus hatás a fotoemisszióra. Ha a bejövő elektromágneses tér polarizációja a z tengely mentén mutat, illetve ebben az irányban a nanoszerkezetnek a legkisebb a görbületi sugara (jól lokalizált nanocsúc) akkor jó közelítést adhat egy egydimenziós modell is. A közelítés miatt már az 1D időfüggő Schrödinger-egyenlet is megbízható megoldásokat szolgáltat, melyben a potenciál mellett, ami esetünkben a fém felületi potenciálja az időfüggő perturbációt a lokális elektromágneses tér potenciálja $V_{\text{perturb}}(z; t) = zE_{\text{loc}}(z; t)$ adja.

A következő alfejezetben bemutatom a diszkretizált időfüggő Schrödinger-egyenletet, és ismertetem a szükséges numerikus eszközök elméleti hátterét.

2.2. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet (TDSE)

A kvantummechanika időfüggő perturbációs elmélete érvényét veszíti az ultrarövid és intenzív lézerterekkel való kölcsönhatás esetén. Ez azt jelenti, hogy az időfüggő perturbációs elmélet nem elég, hogy megfelelő pontossággal leírjuk egy rendszer időfejlődését. Tehát közvetlenül az időfüggő Schrödinger-egyenlet megoldására van szükségünk, ami megfelelő fémfelületi potenciál megválasztásával kellő pontossággal le tudja írni a lézertér hatására bekövetkező fotoemissziót. Az elméleti számolások során mindvégig atomi egységeket ($m_e = e = \hbar = 1/(4\pi\epsilon_0) = 1$) használva az időfüggő Schrödinger-egyenlet legáltalánosabb alakja a következő:

$$\hat{H}\psi = i\frac{\partial}{\partial t}\psi, \quad (3)$$

ahol $\hat{H}$ a rendszer Hamilton operátorát, ψ pedig a komplex hullamfuggvenyet jelöli. Több módszer

is van az időfüggő Schrödinger-egyenlet ("Time-dependent Schrödinger equation", TDSE) megoldására. A dolgozatban a Crank-Nicolson [16] módszert fogom ismertetni, ami az egyik legelterjedtebb módszer TDSE számolására. Az első lépés, hogy megtaláljuk a legáltalánosabb alakját a hullámfüggvény időfejlődési operátorának propagátornak, amit már lehet diszkretizálni egy véges rácson. Ha van egy kezdeti állapotunk tér koordináta reprezentációban, amit egy hullámfüggvénnyel, $\psi(t=0)$, írhatunk le, akkor Δt (infinitezimális $\Delta t \rightarrow \delta t$ -re igaz) idő múlva a következő lesz a hullámfüggvény alakja:

$$\psi(\Delta t) = e^{-i\hat{H}(\Delta t)\Delta t}\psi(0). \quad (4)$$

Ezt általánosítva a propagátor alakja ebből tetszőleges t és δt -re: $\hat{U}(t+\Delta t, t) = \exp\{(-i\Delta t\hat{H}(t))\}$. Taylor-polinom sorfejtéssel a propagátor alakja: $\hat{U}(t+\Delta t, t) = \sum_{n=0}^{n_{max}} (-i\Delta t\hat{H})^n/n!$. A legnagyobb hátránya a levezetett propagátornak, hogy csak nagy n_{max} értékre lesz a hullámfüggvény időfejlődése stabil (besugárzó lézerterek esetén n_{max} függvénye a beeső csúcsintenzitások mértékének). Minél nagyobb n_{max} -t választunk, annál több mátrix hatványozási műveletet kell elvégezni. A propagátor Taylor-sorba fejtett alakja amiatt sem használható hiszen nem unitér, így a hullámfüggvény normáját ($\text{norm} = \sqrt{\int d\vec{r}\psi^*\psi}$), ami a teljes időfejlődés alatt állandó kell hogy maradjon ($\text{norm} = 1$), nem tartja meg.

A Crank-Nicolson módszer feloldja ezt a problémát, és unitér mátrixokkal kifejezhető a propagátor. A Crank-Nicolson propagátor ugyanúgy az exponenciális propagátor alakját veszi alapul, ellenben ezt felbontja két szimmetrikus részre: végez:

$$\psi(t+\Delta t) = e^{-i\frac{\Delta t}{2}\hat{H}(t+\Delta t)}e^{-i\frac{\Delta t}{2}\hat{H}(t+\Delta t)}\psi(t) \quad (5)$$

,

majd elsőrendű Taylor sorfejtést végezve azu egyik exponenciálissal átszorozva:

$$\left(\mathbb{I} + i\frac{\Delta t}{2}\hat{H}(t+\Delta t) + \mathcal{O}(\Delta t^2) + \dots\right)\psi(t+\Delta t) = \left(\mathbb{I} - i\frac{\Delta t}{2}\hat{H}(t+\Delta t) + \mathcal{O}(\Delta t^2) + \dots\right)\psi(t) \quad (6)$$

,

Mivel $\Delta t \ll 1$ ezért elegendő csak az elsőrendű tagokat megtartani:

$$\left(\mathbb{I} + i\frac{\Delta t}{2}\hat{H}(t+\Delta t)\right)\psi(t+\Delta t) = \left(\mathbb{I} - i\frac{\Delta t}{2}\hat{H}(t+\Delta t)\right)\psi(t) \quad (7)$$

,

Ha a Hamilton-operátor mátrix reprezentációban áll elő, akkor a Crank-Nicolson propagátor a következőképpen írható fel:

$$\psi(t + \Delta t) = \left(\mathbb{I} + i \frac{\Delta t}{2} \hat{H}(t + \Delta t) \right)^{-1} \left(\mathbb{I} - i \frac{\Delta t}{2} \hat{H}(t + \Delta t) \right) \psi(t) \quad (8)$$

Ahol $U_1 = \left(\mathbb{I} + i \frac{\Delta t}{2} \hat{H}(t + \Delta t) \right)$ és $U_2 = \left(\mathbb{I} - i \frac{\Delta t}{2} \hat{H}(t + \Delta t) \right)$ jelölést szokás használni az operátorokra. Ezekről az operátorokról belátható, hogy együttes hatásuk, azaz szorzatuk ($U_1^{-1}U_2$) unitér operátort eredményez: azaz a teljes időpropagálás során a hullámfüggvény normája megmarad.

A fenti (8)-as egyenletet minden időléptetésre megoldva előáll az időfejlődése a teljes hullámfüggvénynek. Legyenek $t_n = t_0 + n\Delta t$ időlépéseink, ahol Δt tetszőlegesen megválasztott időléptetés, és $n \in \{0, 1, 2, \dots, N-1\}$ ami azt jelenti, hogy N -szer iterálunk végig a (8)-as egyenleten. A következő alrészben bemutatom az 1D-s Schrödinger-egyenlet Hamilton-operátorának diszkretizált mátrix alakját.

2.3. Az időfüggő Schrödinger-egyenlet diszkretizációja

Legyen adott egy 1D-os terünk, amire szeretnénk megkonstruálni a Hamilton-operátort. Az időfüggő Schrödinger-egyenletet 1 dimenzióban valamilyen időfüggő potenciállal, legáltalánosabban, a következő egyenlettel lehet megadni:

$$i \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \hat{H} \Psi(z, t) = \left[\hat{T} + \hat{V}(z, t) \right] \Psi(z, t), \quad (9)$$

ahol $\hat{T} = -\frac{\partial^2}{\partial z^2}$ az impulzus operátor. Bontsuk fel J darab pontra az 1D-os terünket dz lépésközöket alkalmazva $z_j = z_0 + j\Delta z$, ahol $\{j \in 0, 1, 2, \dots, J\}$. Illetve előre definiált Δt időlépést választva $t_n = t_0 + n\Delta t$ időpontunk van, ahol $n \in \{0, 1, 2, \dots, N\}$.

$$i \frac{\Psi_j^{n+1} - \Psi_j^n}{\Delta t} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\Psi_{j+1}^n - 2\Psi_j^n + \Psi_{j-1}^n}{2(\Delta z)^2} + \frac{\Psi_{j+1}^{n+1} - 2\Psi_j^{n+1} + \Psi_{j-1}^{n+1}}{2(\Delta z)^2} \right) + \left(\frac{V_j^n \Psi_j^n}{2} + \frac{V_j^{n+1} \Psi_j^{n+1}}{2} \right) \quad (10)$$

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

$$\begin{aligned} -\frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \Psi_{j+1}^{n+1} + \left[1 + \left(\frac{1}{(\Delta z)^2} + V_j^{n+1} \right) \frac{i\Delta t}{2} \right] \Psi_j^{n+1} - \frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \Psi_{j-1}^{n+1} = \\ -\frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \Psi_{j+1}^n + \left[1 - \left(\frac{1}{(\Delta z)^2} + V_j^n \right) \frac{i\Delta t}{2} \right] \Psi_j^n - \frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \Psi_{j-1}^n \end{aligned} \quad (11)$$

Mátrix reprezentációban a (11)-es egyenlet a következőképpen írható fel:

$$\begin{bmatrix} 1 + \beta_0^{n+1} & \alpha & & & 0 \\ & \alpha & 1 + \beta_1^{n+1} & & \\ & & \alpha & 1 + \beta_2^{n+1} & \ddots \\ & & & \ddots & \ddots & \alpha \\ 0 & & & & \alpha & 1 + \beta_J^{n+1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Psi_0^{n+1} \\ \Psi_1^{n+1} \\ \Psi_2^{n+1} \\ \vdots \\ \Psi_J^{n+1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 - \beta_0^n & \alpha & & & 0 \\ & \alpha & 1 - \beta_1^n & & \\ & & \alpha & 1 - \beta_2^n & \ddots \\ & & & \ddots & \ddots & \alpha \\ 0 & & & & \alpha & 1 - \beta_J^n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Psi_0^n \\ \Psi_1^n \\ \Psi_2^n \\ \vdots \\ \Psi_J^n \end{bmatrix} \quad (12)$$

Ahol az α és β változókat a következőképpen definiáljuk:

$$\alpha = -\frac{i\Delta t}{4(\Delta z)^2} \quad \text{és} \quad \beta_j^n = \left(\frac{1}{(\Delta z)^2} + V_j^n \right) \frac{i\Delta t}{2}. \quad (13)$$

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

$$\hat{H}(t_n) = \begin{bmatrix} \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_0(t_n) & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & 0 & 0 & \cdots \\ -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_1(t_n) & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_1(t_n) & \ddots & 0 \\ 0 & 0 & \ddots & \ddots & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} \\ \cdots & 0 & 0 & -\frac{1}{2(\Delta z)^2} & \frac{1}{(\Delta z)^2} + V_{J-1}(t_n) \end{bmatrix} \quad (14)$$

,

ahol a potenciál felbontható egy időben állandó, és egy időben változó perturbatív tagra: $V_j(t_n) = V_{\text{felület}}(z_j) + V_{\text{lézer}}(z_j, t_n)$. A numerikus lépésközök és intervalumok beállításával, illetve a potenciálok alakjának megadásával a probléma jól definiált és megoldható a Crank-Nicolson módszerrel. A következő részben egy hatékony numerikus módszert mutatok be a Crank-Nicolson egyenlet megoldására.

2.4. Thomas-algoritmus

A lineáris algebra numerikus módszeréből jól ismert tridiagonális mátrix algoritmus ami, Thomas-algoritmusként is ismert a Gauss-eliminációnak egy speciális változata tridiagonális egyenletrendszerek megoldására [17]. Általánosan a következőképpen írhatunk fel egy tridiagonális egyenletrendszert ahol $n \in \{1, 2, \dots, N\}$:

$$a_i x_{i-1} + b_i x_i + c_i x_{i+1} = d_i \quad (15)$$

$$\begin{bmatrix} b_1 & c_1 & & & 0 \\ a_2 & b_2 & c_2 & & \\ & a_3 & b_3 & \ddots & \\ & & \ddots & \ddots & c_{n-1} \\ 0 & & & a_n & b_n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_1 \\ x_2 \\ x_3 \\ \vdots \\ x_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_1 \\ d_2 \\ d_3 \\ \vdots \\ d_n \end{bmatrix} \quad (16)$$

A legnagyobb előnye ennek a módszernek más numerikus módszerekkel szemben, hogy a szükséges műveletek száma $\mathcal{O}(n)$ -el skálázódik míg a Gauss-elimináció $\mathcal{O}(n^3)$, vagy az LU-dekompozíció $\mathcal{O}(n^2)$. Általános értelemben véve a Thomas-algoritmus nem stabil módszer tetszőleges tridiagonális egyenletrendszerekre. Ellenben vannak olyan speciális mátrix típusok melyekre feltétel nélkül teljesül a stabilitás. Ilyenek például a diagonál domináns mátrixok, vagy a szimmetrikus pozitív definit mátrixok.

A Thomas-algoritmus numerikus megvalósítása a következő. Az első lépés az új együtthatók meghatározása.

$$c'_i = \begin{cases} \frac{c_i}{b_i} & i = 1 \\ \frac{c_i}{b_i - a_i c'_{i-1}} & i = 2, 3, \dots, n \end{cases} \quad (17)$$

$$d'_i = \begin{cases} \frac{d_i}{b_i} & i = 1 \\ \frac{d_i - a_i d'_{i-1}}{b_i - a_i c'_{i-1}} & i = 2, 3, \dots, n \end{cases} \quad (18)$$

A kiszámolt új együtthatókat visszahelyettesítve a (8)-as egyenletbe kapjuk a megoldást:

$$x_n = d'_n \quad (19)$$

$$x_i = d'_i - c'_i x_{i+1}, i = n-1, n-2, \dots, 1 \quad (20)$$

A Thomas-algoritmus legnagyobb előnye, hogy a diszkretizációból megkonstruált tridiagonális mátrix nem nulla diagonális részeit használja csak fel az egyes iterációkban. A számolások során tehát elegendő minden időlépésben csak $3J - 2$ elemet felhasználni, míg egy teljes Gauss-elimináció esetén J^2 elemet kell tárolnunk minden iterációban. Az egyetlen hátránya, hogy ez 1D-s problémákra specifikus így 2D-és 3D-os szimulációkra nehezebb ennek a módszernek az átültetése. Ellenben 2D és 3D problémákra is hasonlóan ritka mátrixokat kapunk melyek főátlója dominál, és több mellékátlója pedig nem nulla elemet tartalmaz. Ezekre hasonlóan a Gauss-elimináció egyszerűsíthető így magasabb dimenziós problémák is tárgyalhatóak.

3. Fém nanoszerkezetek fotoemissziójának szimulációja

Ebben a fejezetben a saját fejlesztésű TDSE numerikus kódom segítségével, végzett szimulációk eredményeit tárgyalom. A fejezet első részében homogén külső térre végzek számolásokat különböző intenzitásokra, hullámhosszokra és optikai ciklusokra, melynek célja, hogy igazoljam az általam fejlesztett numerikus szimuláció helyességét a számolt fotoemissziós spektrumok elméletből ismert paramétereire.

3.1. Potenciálok és külső terek alakja

A numerikus szimulációk elvégzéséhez először a Hamilton-operátort kell megkonstruálnunk. Az 1D időfüggő Schrödinger-egyenletben a potenciált két részre oszthatjuk. Fém nanoszerkezetek esetében lesz egy statikus felületi potenciálunk, illetve egy külső perturbatív tér, ami maga az ultrarövid impulzus alakja lesz:

$$i\partial_t\Psi(z,t) = \hat{H}(t)\Psi(z,t) = \left[\hat{T} + \hat{V}(z) + \hat{V}_{\text{lézer}}(z,t)\right]\Psi(z,t), \quad (21)$$

ahol $\partial_t = \partial/\partial t$. Fémen belül kvázi szabad elektronból gázt feltételezünk, ahol a fém fizikai kiterjedése szabja meg a potenciál szélességét. Egy aktív elektron közelítésben a következő potenciál alakot használhatjuk[2]:

$$V(z) = -\frac{\exp\{-\beta(z + |z|)\}}{2(z + |z|) + 1/(E_F + W)}, \quad (22)$$

Az E_F a Fermi-energia és W pedig a fémmre érvényes kilépési munka. A mi esetünkben aranyra $W_{\text{Au}} \approx 5.1$ eV. A potenciálban szereplő β parametrizálja a potenciált melynek értéke az irodalom alapján $\beta = 0.6$ [18]. A tapasztalat alapján ilyen β érték mellett a legjobb az egyezés a kísérleti eredmények és numerikus számolások között.

A külső elektromos tér komponensét Gauss alakú lézertérrel vesszük figyelembe. Ennek alakja a következő:

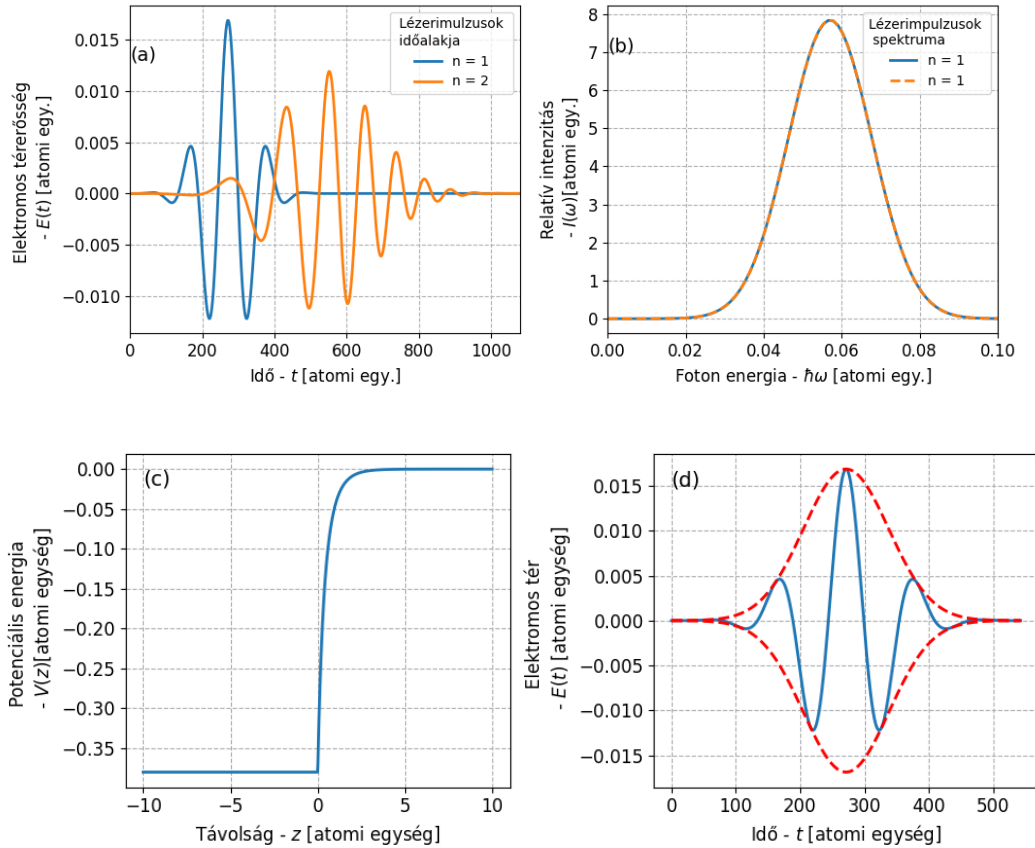
$$E(t) = E_0 \exp\left\{-2 \ln 2 (t/\tau_p)^2\right\} \cos(\omega_0 t), \quad (23)$$

ahol $\tau_p = t_{\text{FWHM}}$ (a félértékszélesség az intenzitás maximum felénél) az impulzushossz, $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ a középponti körfrekvenciája a lézernek. Mivel általában a kísérleti laborokban adott lézerimpulzusokat chirpölés módszerével szoktak időben 'megnyújtani' (hosszát, optikai ciklusainak számát növelni), ezért

első esetben mi is ezt az elvet követve növeltük meg a kezdeti lézerimpulzusunk optikai ciklusainak a számát. Ennek értelmében, ha feltételezzük, hogy a (23)-as egyenlet egy 1 optikai ciklusú teret ír le, azaz $\tau_p = 1 \cdot T_0 = \lambda_0/c$, ezen tér spektrális chirp-öléssel több ciklusú ($n > 1$) térre "nyújtható": $\tau_{p,n} = n\tau_p$, melynek a spektrális alakja (fotonok energiaeioszlása) azonos a kezdeti terünkkel. Az időben "megnyújtott" tér a következő alakban adható meg:

$$E^{1 \rightarrow n}(t) = \frac{E_0}{\sqrt{n}} \exp \left\{ \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{n\tau_p} \right)^2 \right] \right\} \cos \left(\omega_0 t + \tilde{\gamma} 2 \ln 2 \left(\frac{t}{n\tau_p} \right)^2 - \frac{\tan^{-1} \tilde{\gamma}}{2} \right) \quad (24)$$

ahol n az optikai ciklusok számát jelenti és $\tilde{\gamma} = \sqrt{n^2 - 1}$. Numerikus szimulációkban általában 1 optikai ciklusokból indulva végeztem szimulációkat majd ezeket csörpölve kaptam nagyobb ciklusszámú impulzusokat. A második esetben pedig a (23)-as egyenletet használva a $\tau_p = nT_0$ összefüggéssel kaptam hosszabb szamu impulzust, melynek azonban foton energiaeioszlásai nem egyeztek meg az $n = 1$ esettel.



3. ábra. (a) 1 és 2 optikai ciklusú impulzusok a (24)-es egyenletre számolva (800 nm, 40 TW/cm²). (b) Fotonszám energia spektruma 1 és 2 optikai ciklusra ($\lambda_0 = 800\text{nm}$). (c) Fém felületi potenciál alakja (22-es egyenlet). (d) 800 nm-es 40 TW/cm² intenzitású 1 optikai ciklusú impulzus elektromos tere.

A Hamilton-operátorban a lézertér potenciálja az elektromos tér ismeretében a következőképpen írható fel hossz mértéket (length gauge) használva: $V_{\text{lézer}} = zE(t)$.

A következő alrészben előre megadott potenciál paraméterekkel konvergencia tesztet végzek, és ennek megfelelően a következő szimulációkhoz szükséges Δz és Δt paraméterek optimális értékét határozom meg.

3.2. Konvergencia-tesztek infravörös impulzusokra

Ebben a részben a dolgozat további szimulációihoz szükséges paramétereket határozom meg konvergencia-teszt segítségével. A Crank-Nicolson módszer egy feltétel nélküli stabil megoldást ad. Ellenben a teljes propagáció alatt a külső elektromos tér változása limitálja Δz illetve Δt paraméterek értékét.

Potenciál paraméterek	
Fermi-energia (E_F)	5.53 eV
Kilépési munka (W)	5.1 eV
Lézerimpulzus	
Középponti hullámhossz (λ_0)	800 nm
Csúcs intenzitás (I_0)	40 TW/cm ²

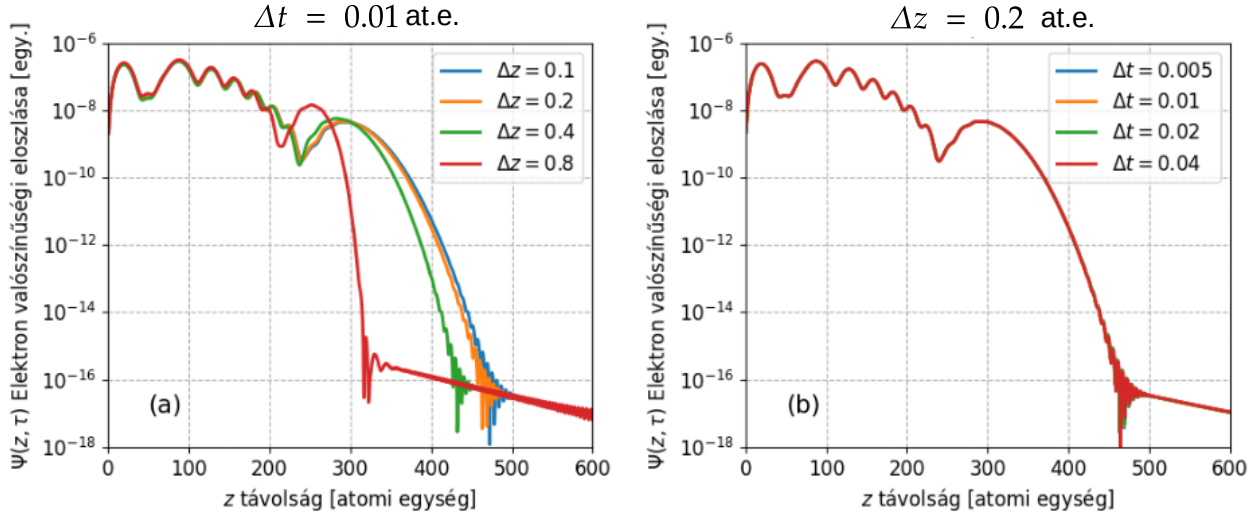
1. táblázat. Fém felületi potenciál és lézerimpulzus adatai a konvergencia tesztekhez.

Először az 1. táblázat paraméterei és (22) képlet alapján különböző Δz és Δt -re megoldottam az időfüggetlen Schrödinger-egyenletet, a lézertér nélküli Hamilton-operátort $\hat{H}_0 = \hat{T} + V(z)$ diagonalizálva. A legalacsonyabb energia állapot $-(E_F + W)$ -hoz tartozik. Ezután az $-E_F$ energiasajátértékhez legközelebbi energiájú állapotot használtam fel kezdeti állapotként $\Psi_0(z) = \Psi(z, t = 0)$.

A időfüggetlen Schrödinger-egyenletet viszonylag nagy $[-2000, 2000]$ atomi egységű szimulációs térben oldottam meg. Először tetszőlegesen választottam $\Delta t = 0.01$ időlépést majd $\Delta z_i \in \{0.8, 0.2, 0.4, 0.1\}$ lépésközökre számoltam ki a kezdeti állapotot.

Az 1. táblázatból és a (23)-(24) egyenletek alapján az elektromos tér komponenssel a teljes időfejlődés is kiszámolható. Δz -re a konvergenciát a végső propagációs időben a fémen kívüli hullámfüggvényre vizsgáltam.

A 4(a) ábrán látható, hogy Δz csökkentésével $\Delta z \approx 0.2$ körül már konvergens eredményhez jutunk. Így az időlépésre való konvergenciát rögzített $\Delta z = 0.2$ at. (atomi egység) paraméterrel lehet vizsgálni a $\Delta t_i \in \{0.04, 0.02, 0.01, 0.005\}$ értékekre: lásd 4(b).ábra.



4. ábra. (a) Konvergencia vizsgálata Δz és Δt paraméterekre. Δz konvergenciájának vizsgálata rögzített $\Delta t = 0.01$ időlépéssel. (b) Δt konvergenciájának vizsgálata rögzített $\Delta z = 0.2$ lépésközzel.

Definiálhatók úgynevezett konvergencia paraméterek, melyekkel kvallitativan meghatározható az optimális Δt és Δz értékek:

$$\text{Konvergencia paraméterek} \begin{cases} d_{\text{conv}}(\Delta z_i) = \frac{\|\Psi_\tau(\Delta z_i) - \Psi_\tau(\Delta z_{i-1})\|}{\|\Psi_\tau(\Delta z_{i-1})\|} \leq \varepsilon(\Delta z); \\ d_{\text{conv}}(\Delta t_i) = \frac{\|\Psi_\tau(\Delta t_i) - \Psi_\tau(\Delta t_{i-1})\|}{\|\Psi_\tau(\Delta t_{i-1})\|} \leq \varepsilon(\Delta t). \end{cases} \quad (25)$$

Ezek a konvergencia paraméterek egy adott $t = \tau$ időpillanatbeli hullámfüggvényre vonatkoznak, ahol τ index a végállapotra vonatkozik, illetve ε pedig a konvergencia feltételt adja meg. A $\varepsilon(\Delta z) < 10^{-4}$ és $\varepsilon(\Delta t) < 10^{-4}$ feltételeknek eleget tesz $\Delta z = 0.2$ és $\Delta t = 0.01$ paraméter értékek. A következőkben ezeket a diszkretizációs számokat használjuk a szimulációkhoz úgy a 800nm-es esetekre, mind a 2000 nm-es középhullámhosszú terekre. Az utóbbi esetben a vizsgált fotoeketron a rögzített Δt idő alatt kisebb külső elektromos térváltozást érzékel mint a rövidebb hullámhosszú (800 nm) tér esetén, azaz minden bizonnyal a 800 nm-re érvényes konvergens Δt időbeli felbontásunk konvergens eredményt szolgáltat a nagyobb hullámhosszú terekre is.

A teljes időbeni propagálás számolásában emellett használtam még egy komplex elnyelési potenciált (*complex absorbing potential*, CAP) 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 VCAP 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 [2]:

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

ahol z_{cut} az első pont ahol az elnyelés bekövetkezik. A z_{cut} értékét az irodalom értelmében[cikk] 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[2].

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

3.3. Szimulációs részletek

Ebben az alrészben röviden ismertetem a numerikus számítások implementálásához és futtatásához használt programozási környezetet és platformot. A numerikus módszereket *Python 3.9*-es programozási nyelvben implementáltam és ehhez Pycharm IDE (Integrated Development Environment) programozási környezetet használtam. A Thomas-algoritmust pythonon belül önállóan saját függvénnyel megírva használtam a numerikus szimulációkban. A numerikus számításokat AMD ryzen-5 5600H (6 magos) processzoron végeztem aminek maximális órajele 4800 MHz.

4. Számolt fotoemissziós spektrumok infravörös impulzusokra

Ebben a részben a korábban konvergencia-tesztekkel meghatározott diszkretizációs paraméterekkel különböző intenzitású, optikai ciklusú és hullámhosszú impulzusokra végzek számításokat. A fejezet célja, hogy alagútazási tartományra ($\gamma < 1$) vizsgáljuk az atomi potenciálokra levezetett $10U_p$ -s elektronenergia levágási törvényt.

Az összefüggés értelmében az elektron spektrum levágási vagy *cutoff* energia, a következőképpen adható meg:

$$E_{cutoff} = 10U_p + 0.537W, \quad (\gamma < 1) \quad (27)$$

ahol korábban definiáltuk a ponderomotoros energiát U_p illetve a W kilépési munkát a fémre. Eredetileg a (26)-os összefüggést atomi rendszerekre vezették le homogén külső térre de megmutatható, hogy fém potenciálokra is hasonlóan alkalmazható [9]. Ezzel a képlettel homogén külső térre és $\gamma \ll 1$ megbecsülhető a spektrumok levágási energiája.

A következőekben különböző szimulációk eredményeit mutatom be 800 és 2000 nm-es infravörös lézerrimpulzusokra alagútazási tartományban. A szimulációk célja, hogy megmutassam, hogy az általam fejlesztett TDSE számolás jól használható fém-nanoszerkezetek fotoemissziójának leírására.

A szimulációkhoz $\Delta t = 0.01$ illetve $\Delta x = 0.2$ atomi egységű felbontást használtam. A szimulációs teret úgy választottam meg, hogy a (28)-as összefüggés és a 1. táblázat kilépési munkáját felhasználva kiszámoltam mekkora a becsült *cutoff* energia a legnagyobb intenzításra. Az optimális szimulációs tér [-2500,2500]-nak adódott.

A numerikus számolásomban a teljes hullámfüggvényt propagálja így a fémen belüli részt is megkapjuk. Mivel a lézertér hatását elhanyagoljuk a fémen belül ezért $z > 0$ tér részben lesz számunkra fontos a hullámfüggvény alakja. A külső tér által perturbált hullámfüggvényt a $z > 0$ tartományban, a Gram-Schmidt ortogonalizációs módszerrel kivontam a számolt hullámfüggvényből a kezdeti hullámfüggvény $(|\Psi_0\rangle e^{-iE_0\tau})$ hozzájárulását:

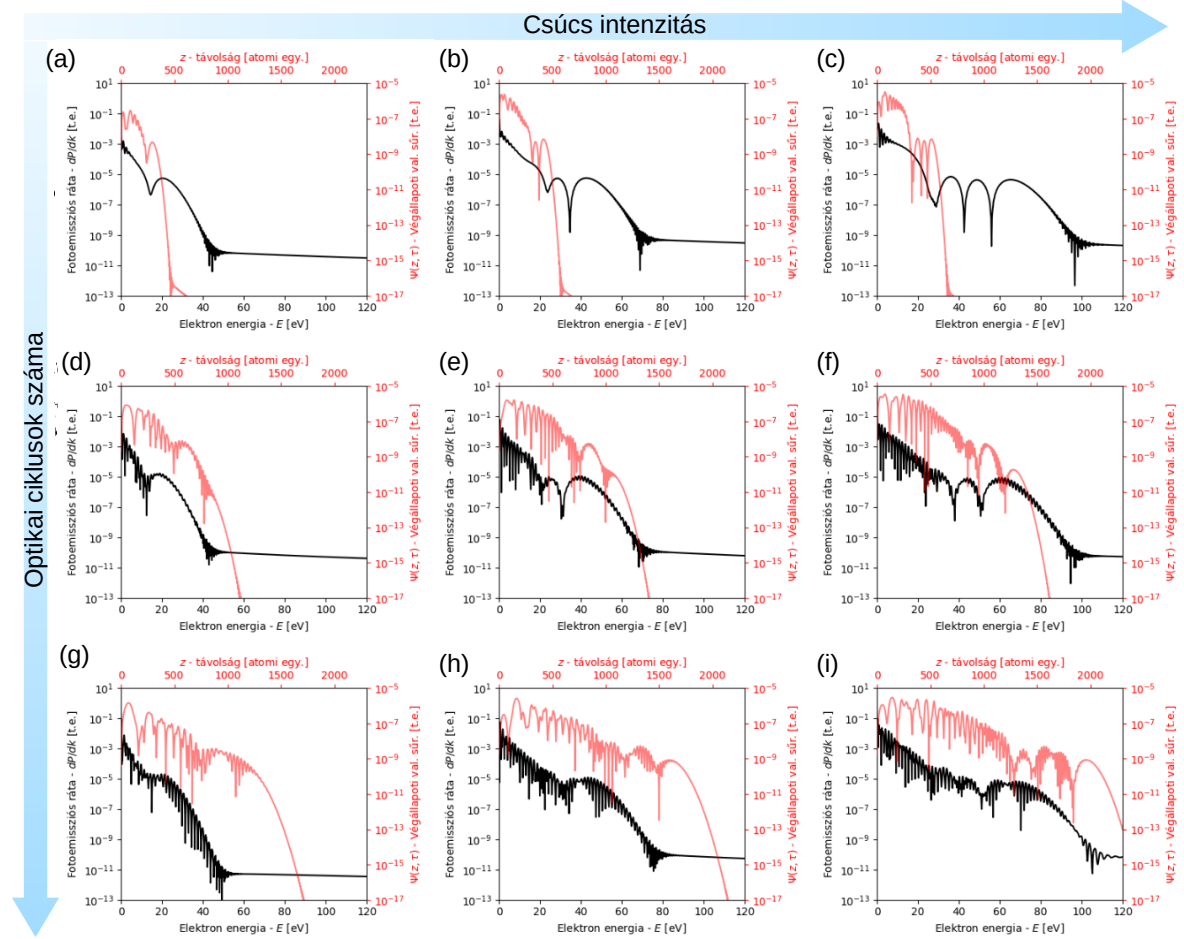
$$|\Psi_{\text{perturb.}}(\tau)\rangle = |\Psi(\tau)\rangle - \frac{\langle\Psi(\tau)|\Psi_0(\tau)\rangle}{\langle\Psi_0(\tau)|\Psi_0(\tau)\rangle} |\Psi_0(\tau)\rangle \quad (28)$$

ahol perturbált hullámfüggvény síkhullámokra való vetítéséből pedig a fotoemissziós spektrum határozható meg (ahol $E = k^2/2$):

$$\frac{dP}{dE} = \left\langle e^{-ikz} / \sqrt{2\pi k} \middle| \Psi_{\text{perturb.}}(\tau) \right\rangle, \quad (z > 0) \text{ részre,} \quad (29)$$

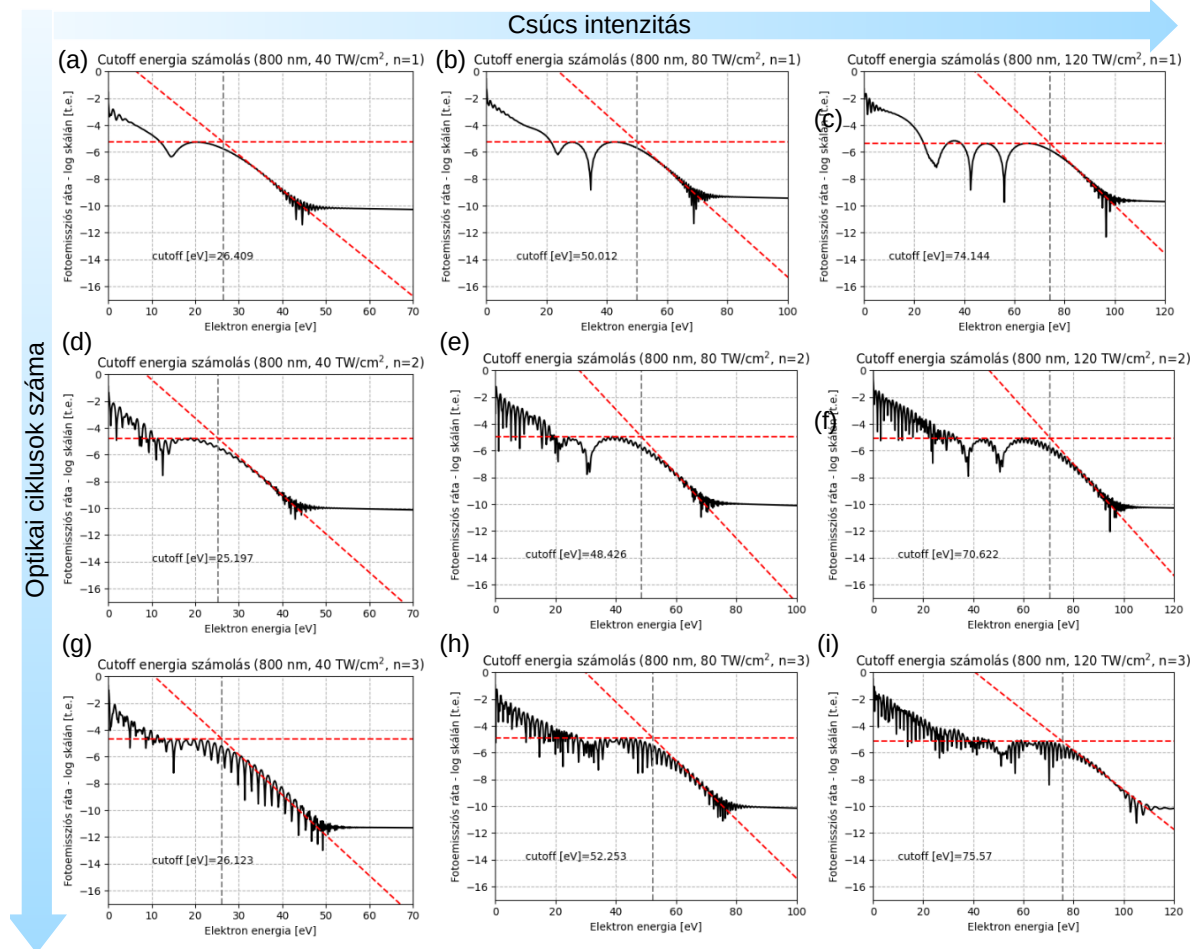
4.1. Fotoemissziós spektrumok - 800 nm-es lézerimpulzusokra

Ebben az alrészben 800 nm-es hullámhossz mellett végeztem különböző intenzitás értékekre és optikai ciklusokra számolásokat. A számolásaim célja, hogy megmutassam, hogy a (27)-es összefüggés érvényesül a szimulációs eredményeimből kapott elektron energia levágásokra.

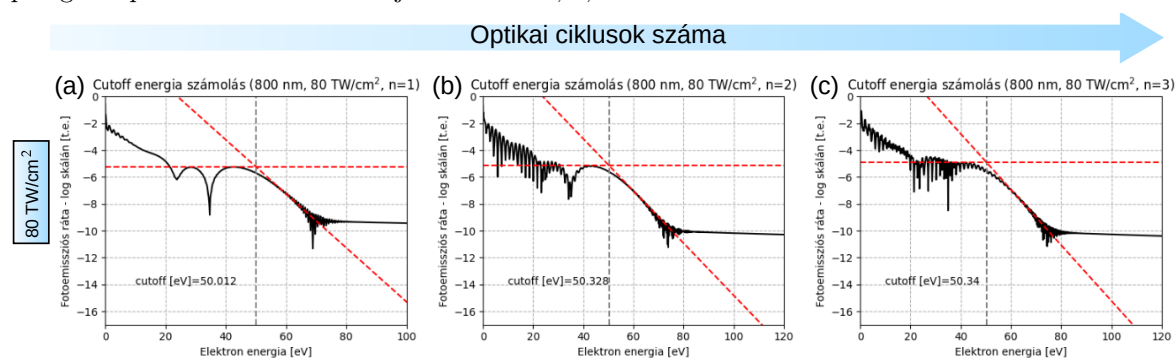


5. ábra. 800 nm-es középonti hullámhosszra számolt fotoemissziós spektrumok és végállapoti hullámfüggvények láthatók. Az oszlopok a csúcshintenzitást jelölik rendre 40, 80, 120 TW/cm², az egyes sorok pedig az optikai ciklusok számát jelöli rendre 1, 2, 3.

A számolt fotoemissziós spektrumok esetében a spektrum levágási energiájának meghatározását úgy végeztem, hogy a spektrum úgynevezet plató részére illetve a levágási szakaszra illesztettem egy lineárist és az egyenesek metszési pontja adja a levágási energia értékeket. Az alábbi 2. táblázatban a 800 nm-es lézerimpulzusra számolt fotoemissziós görbékre illesztett levágási energia értékek láthatóak.



6. ábra. 800 nm-es középponti hullámhosszra számolt fotoemissziós spektrumok és a levágási energia illesztések láthatóak. Az oszlopok a csúcshintenzitást jelölik rendre 40, 80, 120 TW/cm², az egyes sorok pedig az optikai ciklusok számát jelöli rendre 1, 2, 3.



7. ábra. 800 nm-es középponti hullámhosszra számolt fotoemissziós spektrumok és a levágási energia illesztések láthatók különböző (nem csörpölt) optikai ciklusokra.

A fenti 6. ábra alapján láthatjuk, hogy adott hullámhossz és csúcs intenzitás mellett különböző optikai ciklusokra a levágási energia értéke kvalitatíve nem változik. A 2. táblázatban összegyűjtöttem az elméleti és *cutoff* energiákat. Látható, hogy az elméleti értékeket jól vissza adják a számolt *cutoff* energiák illetve különböző optikai ciklusra is hibahatáron belül megegyeznek ezek.

80 TW/cm²-re külön végeztem számításokat nem csörpölt impulzusokkal $n = 1, 2, 3$ optikai ciklusokra. Ezeknek illesztési eredményei a 7. ábrán láthatóak (lásd előző oldal). A 3. táblázatba összegyűjtöttem az illesztett *cutoff* energiákat amelyek nagyon jó közelítéssel visszaadják az elméleti eredményeket és ezzel megállapítottam, hogy a csörpölés nem befolyásolja az elektron levágási energia értékeket.

Intenzitás [TW/cm ²]	Keldis γ	<i>cutoff</i> energia [eV] (n = 1)	<i>cutoff</i> energia [eV] (n = 2)	<i>cutoff</i> energia [eV] (n = 3)	Elméleti <i>cutoff</i> energia [eV]
40	1.01	26.41	25.20	26.12	26.48
80	0.71	50.01	48.43	52.25	50.33
120	0.58	74.14	70.62	75.57	74.19

2. táblázat. Az illesztéssel meghatározott *cutoff* energiák különböző intenzitásokra és optikai ciklusokra. Az utolsó oszlopban pedig a (27)-es összefüggés és az 1. táblázatban feltüntetett értékek felhasználásával kiszámolt elméleti energiák.

Intenzitás [TW/cm ²]	Keldis γ	<i>cutoff</i> energia [eV] (n = 1)	<i>cutoff</i> energia [eV] (n = 2)	<i>cutoff</i> energia [eV] (n = 3)	Elméleti <i>cutoff</i> energia [eV]
80	0.71	50.01	50.33	50.34	50.33

3. táblázat. Az illesztéssel meghatározott *cutoff* energiák 800 nm és 80 TW/cm² csúcshintenzitású tér mellett különböző optikai ciklusokra. Az utolsó oszlopban pedig a (27)-es összefüggés és az 1. táblázatban feltüntetett értékek felhasználásával kiszámolt elméleti energiák.

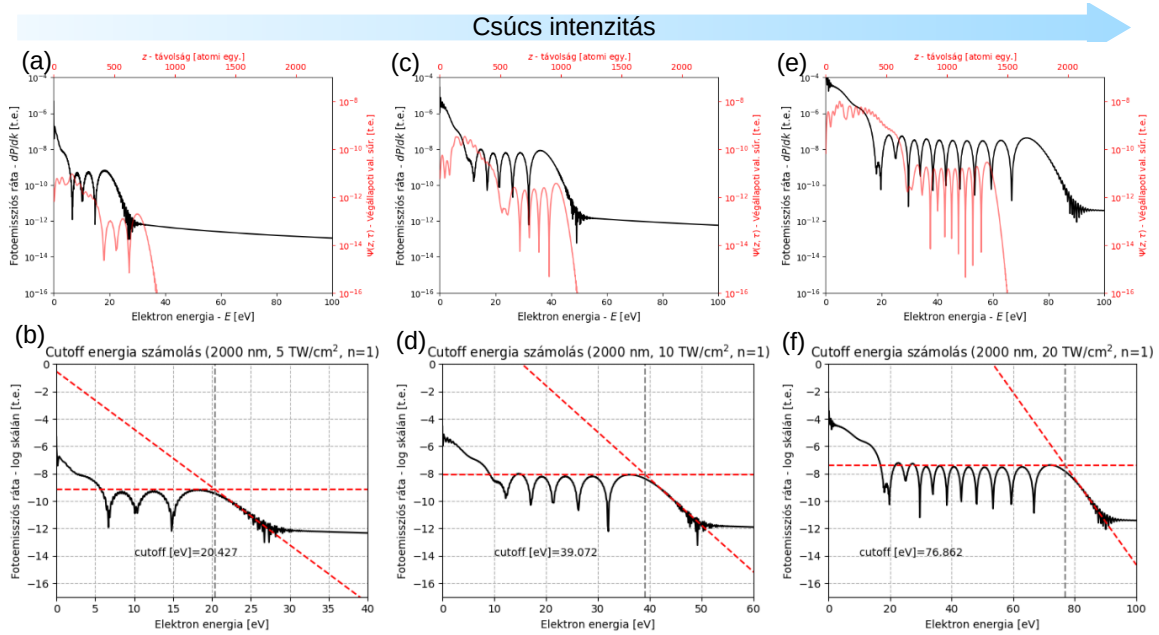
Az illesztett *cutoff* energiákat összevetve a (27)-es összefüggésből számolt értékekkel azt találtam, hogy a számolásaim kellően pontosan visszaadják az elmélet által becsült értékeket. Így adott hullámhossz mellett különböző beeső intenzitásokra és optikai ciklusokra megmutattam, hogy a numerikus megoldásom helyes.

A következő alrészben azt vizsgálom, hogy nagyobb hullámhossz mellett különböző intenzitásokra is visszkapjuk a *cutoff* energiákra vonatkozó (27)-es összefüggést.

4.2. Fotoemissziós spektrumok - 2000 nm-es lézerimpulzusokra

A következő alrészben 2000 nm-es hullámhosszakra végzett szimulációs eredményeket mutatok be. Mivel dolgozatom fő részében lecsengő plazmonikus terekre is végzek számolásokat ilyen hullámhossz mellett így különösen fontos annak bizonyítása, hogy ebben az esetben is az elmélet által becsült *cutoff* energia értékeket kapjuk meg.

A számolásokat 2000 nm-es hullámhossz mellett különböző $I_0 = 5, 10, 20 \text{ TW/cm}^2$ beeső intenzitásokra végeztem el. A 8(a)-(b) alábbiakon látható a szimulációból kapott végállapotú hullámfüggvény és a számolt fotoemissziós spektrumok. A 8()



8. ábra. Első sorban a 2000 nm-es hullámhosszú 1 optikai ciklusú impulzusra számolt végállapotú hullámfüggvények (piros görbék), és a hozzájuk tartozó fotoemissziós spektrumok (fekete görbék) három különböző intenzitásértékre. Második sorban maguknak a spektrumoknak a cutoff illesztéseik láthatóak. A beeső intenzitás értékek rendre a következőképpen változnak: (a)-(b) 5 TW/cm^2 , (c)-(d) 10 TW/cm^2 , (e)-(f) 20 TW/cm^2

A következő táblázatban a 2000 nm-es 1 optikai ciklusú lézerimpulzusra számolt spektrumok *cutoff* energiái láthatóak:

Intenzitás [TW/cm ²]	Keldis γ	<i>cutoff</i> energia [eV] (n = 1)	Elméleti <i>cutoff</i> energia [ev]
5	1.15	20.427	21.26
10	0.81	39.072	39.9
20	0.57	76.862	77.17

4. táblázat. Az illesztéssel meghatározott *cutoff* energiák (2000 nm-es lézerimpulzusra) különböző intenzitásokra. Az utolsó oszlopban az elméleti $10U_p$ összefüggés által becsült *cutoff* energiák.

Ebben a fejezetben fenti számolásaimmal a cutoff energiák meghatározásán és elméletel való összevetésén keresztül megmutattam, hogy az általam használt numerikus módszer alkalmazható fém-nanoszerkezetek fotoemissziójának egyszerű modellezésére. A következő fejezetben speciális nano-plazmonikus terekre végzet szimulációs eredményeimet mutatom.

5. Plazmonikus fotoemisszió: homogén és inhomogén térnövekmények

A korábbi számolások során megmutattam, hogy erős-tér tartományban ($\gamma \approx 1$; $\gamma < 1$) különböző beeső lézerintenzitások, optikai ciklusok és hullámhosszak mellett, hogyan változik a fotoelektronokra számolt energia-spektrum levágásának pozíciója (*cutoff*). Az illesztett levágási energiákat (E_{cutoff}) összevetettem a (27)-es analitikus formulával, jó egyezést találtam.

Fém-nanorészecskék esetén nem csak a céltárgy felületi potenciálja, és a lézerimpulzus tulajdonságai határozzák meg a az elektronemissziót. A fém-nanoszerkezet és a lézerimpulzus kölcsönhatásában figyelembe kell még vennünk a lokális, erősített plazmonikus tér hatását is. A plazmonikus tereket alapvetően két paraméterrel szoktuk jellemezni. Az egyik ilyen a plazmonikus térből származó térnövekmény, amit a modellünkben a potenciál $z = 0$ pontjában adunk meg: $Q(z = 0)$. A másik pedig a plazmonikus tér lecsengése, melyet egy $-dz$ exponenciális függvénnyel lehet megközelíteni. d paraméterrel kifejezhető a lokálisan erősített tér lecsengési hossza $l_f = 1/d$. A plazmontér fotoemissziójának kvantitív jellemzésére beszokás vezetni még az úgynevezett $\delta = l_f/l_q$ ($l_q = q_e Q E_0 / m_e \omega_0^2$) mennyiséget, mely a plazmontér lecsengési hosszának és a fotoelektron oszcillációs *quiver* amplitúdónak arányát adja meg. Míg korábban a γ Kledis-paraméter a fotoemissziós folyamatokat jellemző dimenzió nélküli számot jelölte addig a δ paraméter a nanolokalizált térben az elektronok dinamikáját kifejező arányszám. A δ paraméter függvényében vizsgálható, hogy az elektron milyen gyorsítási mechanizmussal gyorsul a plazmonikus térben.

Homogén térnövekményű terekre a levágási (*cutoff*) energia nagyon jó közelítéssel a következőképpen adható meg:

$$E_{cutoff} = 10U_p + 0.537W = 10 \frac{e^2}{4m_e \epsilon_0 c \omega_0^2} Q^2 I_0 + 0.537W, \quad (30)$$

ahol $Q = Q(z = 0)$ a fémfelületén levő térnövekmény értékét, valamint I_0 a beeső csúcsintenzitást jelöli. Lecsengő terek, illetve extrém körülmények (erős térerősségű és/vagy nagy hullámhosszú infravörös terek) esetén a fenti (30)-as már nem lesz ebben a formában igaz (módosulni fog).

A kibocsájtott fotoelektronok dinamikáját a $\delta = l_f/l_q$ arány, míg a *cutoff* energiáját a ponderomotoros energia határozza meg. A ponderomotoros energia, ahogy korábban láttuk (lásd 2.1 alfejezet) egyrésztől lineárisan skálázódik a lokális intenzitással és négyzetesen a hullámhosszal. Minnél nagyobb hullámhosszakra vizsgálódunk, annál nagyobb lesz az elektron *quiver* amplitúdója ami ahhoz vezet, hogy csillapítottabb lesz az elektron oszcillációja az elektromágneses térben [19][3].

Hosszabb hullámhosszakra így az elektron-hullámcsomag több ideig tud gyorsulni a fém felülete fölötti térrészben, ezáltal pedig hosszabb utakat (nagyobb távolságokat) képes bejárni. Plazmonikusan lecsengő terek esetén kiterjedtebb hullámcsomagokra már nem csak a fém felületéhez közel érvényes

térnövekmény határozza meg a dinamikát hanem a távolabbi lecsengési karakterisztika és befolyásolja azt.

Jelentek már meg olyan elméleti és kísérleti munkák, mint például Ropers és mtsa. [19], melyek egy szűkebb lokális Keldis tartományban (*deep tunneling*: $\gamma_{loc} \ll 1$) vizsgálták a levágási energiák $10U_p$ -s összefüggéstől való eltérését a beeső lézertér hullámhosszát változtatva.

Mivel a hullámhossz pontos hangolása kísérletileg körülményesebb mint egy adott központi hullámhossz mellett magának a csúcsintenzitásának a növelése, így adódik a lehetőség, hogy $10U_p$ skálázást a lokális intenzitás függvényében is érdemes lehetne vizsgálni, rögzített, nagyobb (tipikusan > 800 nm-nél) hullámhosszra: amikor is az oszcilációs amplitudó (l_q) közel összemérhető a plazmonikus tér lecsengési hosszával (l_f).

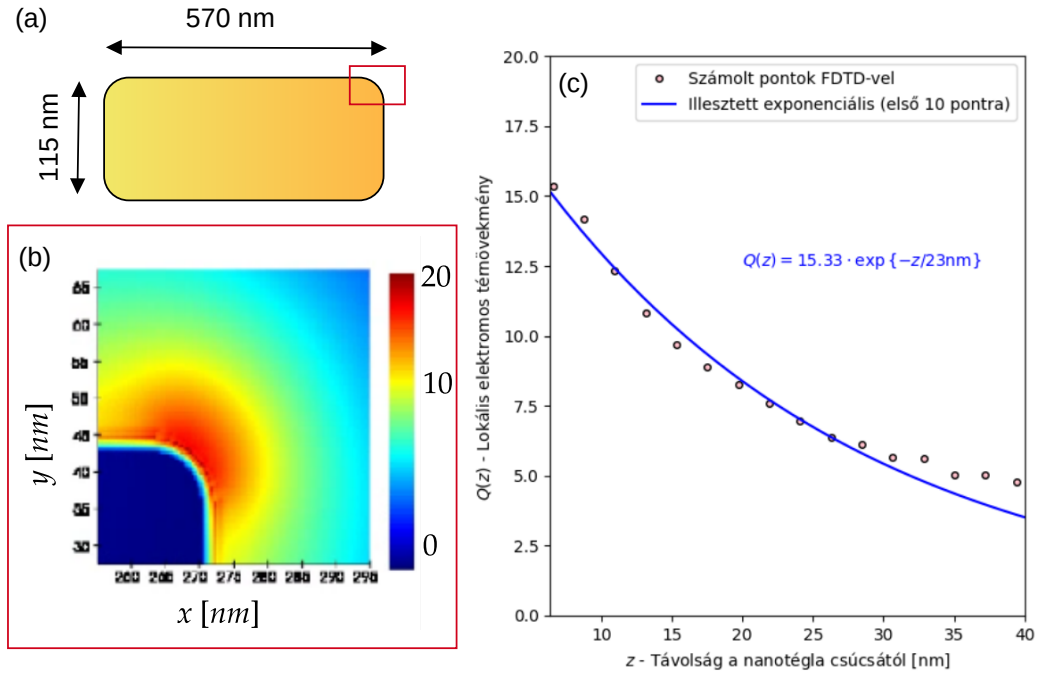
Mivel a kutatócsoportban már rendelkezésre álltak 2000 nm-es infravörös térrel nanotéglakon elvégzett ígéretes kísérleti eredmények, ezért dolgozatomban utolsó szakaszában ezen hullámhossz értékkel végeztem számolásokat. Ennek keretén belül bemutatom, hogy 2000 nm-es infravörös lézerimpulzusok hogyan hatnak kölcsön plazmonikus nanoszerkezetek 1D modell potenciáljával. Továbbá, vizsgálatom részét képezi a homogén és inhomogén (lecsengő térnövekményű) plazmonikus terek fotoemissziós tulajdonságainak a leírása. Fő célom, hogy inhomogén lecsengő térre *cutoff*-összefüggés változását és a $10U_p$ skálázástól való eltérés mértékét meghatározzam relatív széles ($1.41 < \gamma_{loc} < 0.43$) tartományon belül. Melyre korábban még nem ismerünk példát.

5.1. Nanotéglára számolt spektrumok

Dolgozatomban ezen második szakaszában modellezési munkámat kiterjesztettem arany nanotéglák és infravörös lézerek közötti kölcsönhatás tanulmányozására. A vizsgált nanotégla méretei $570 \text{ nm} \times 115 \text{ nm}$ (szélesség $\times$ hosszúság), magasságuk néhány tíz nanométer (9(a).ábra).

Mivel a nanotéglakon plazmonikus térerősítés következik be a besugárzó oszcilláló terek hatására, ezért a beeső csúcsintenzitáshoz tartozó elektromos tér amplitudóját szoroztam egy térben exponenciálisan lecsengő tér-erősítési faktorról, így a lokális tér alakja: $E_{loc}(z; t) = Q(z) \cdot E_{inc}(t)$ (9.(a).ábra). A $Q(z)$ értékeket úgy határoztam meg, hogy a Lumerical szoftverrel (Finite-difference time-domain (FDTD) szimuláció, dr. Pápa Zsuzsanna) a nanotégla csúcsától z_i távolságokra kapott térnövekmény értékekre (500 atomi egységnyi távolságok figyelembe véve) illesztettem egy exponenciálisan lecsengő görbét: $Q(z) = Q(z=0) \exp(-d \cdot z)$, ahol $d = 1/l_f$, és l_f pedig a tér lecsengési hossza (*decay-length*): 23 nm (lásd 9(b)-(c).ábra). Ahhoz, hogy az elektronenergia cutoff-ok pozíciójára beazonosíthassuk a lecsengő tér hatását, az adott beeső intenzitásokra egy-egy homogén térerősítéssel szimulációt is elvégeztem, ahol a $Q(z)$ értékét rögzítettem: $Q_{homogén}(z) = Q(z=0) = Q_{max} = 15.337$ (lásd köv. alfejezet).

A Wigner FK Ultragyors Nanooptikai Kutatocsoportban már sikerült korábban ezen méretű nanotéglákra mérések során elektronspektrumokat rögzíteni, amikor is különböző beeső csúcsintenzitásokkal, $I_{0,inc} \in [0.6 \times 10^9 - 2.6 \times 10^9]$ 70 fs hosszúságú (10 optikai ciklusú) impulzusokkal végeztek kísérletet (Bánhegyi Balázs doktorandusz kísérleti eredményei lásd 10 (a). ábra).

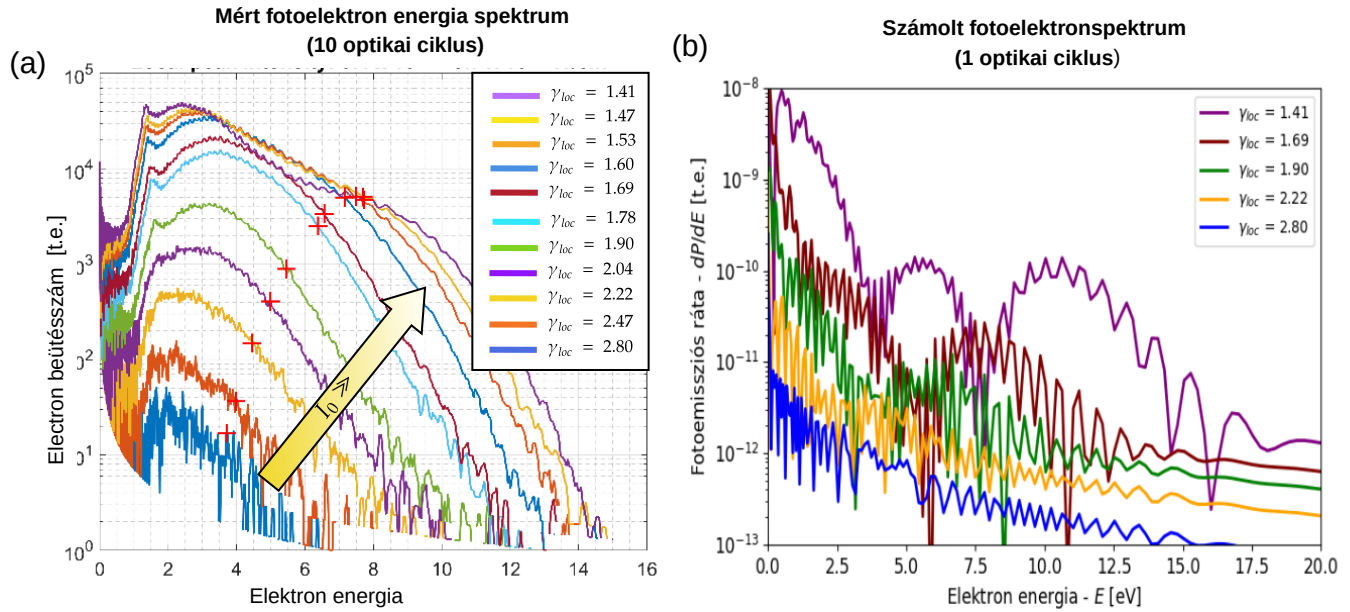


9. ábra. Nanotégla sematikus rajza és a számolt plazmonikus tér a nanotégla forró pontja ("hot spot") közelében (FDTD szimuláció dr. Pápa Zsuzsanna) (a-b). A plazmontér lecsengése a nanotégla csúcsától (c).

A 10(a). ábrán látható, hogy a mért spektrumokban egy adott beeső beeső intenzitási küszöb érték fölött ($I_{0,inc} > 1.3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$) kezdenek plato-szerű képződmények megjelenni (a sokfotonos tartományból az erőstér tartományba történő). Számolásaim során, ezért kezdeti intenzitásnak ezt az értéket választottam. 10.(b) ábrán látható néhány γ_{loc} -ra számolt spektrum alakja 1 optikai ciklusú lézerimpulzusra.

Mivel korábban már sikerült bizonyítanunk (lásd előző fejezet), hogy az optikai ciklusszámtól független a levágások pozíciója, és ez a *cutoff* pozícióját a legnagyobb mértékben befolyásoló tényező egy adott hullámhossz mellett a csúcsintenzitás értéke, a gyorsabb szimulációs idő végett $noc=1$ re rögzítettem.

A számolt spektrumok alakja csak kvalitatívan vethető össze a mérési eredményekkel, ugyanis



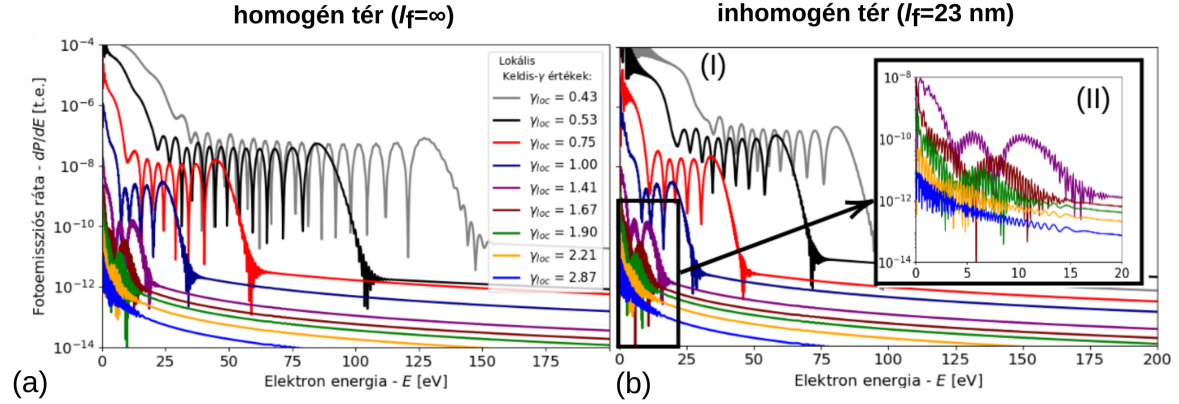
10. ábra. Bánhegyi Balázs doktorandusz kísérleti eredményei $I_{0,inc} \in [0.6 \times 10^9 - 2.6 \times 10^9]$ 70 fs hosszúságú (~ 10 optikai ciklusú) impulzusokkal.

a mérési eredmények értelmezése során a levágási energiák pontos beazonosítása nem egyértelműen kivitelezhető, ugyanakkor egyéb a mérésekből származó bizonytalanságok is befolyásolhatják ezt (a vizsgált nanotégla valós alakja, görbületi sugara, a téglacsúcsba érkező csúcshintenzitás pontos értéke). Az egyik ilyen összehasonlítási pont lehet a levágási (*cutoff*) energiák pozíciója adott lokális γ -paraméter mellett. Látható, hogy már $\gamma > 1$, pontosabban γ 1 és 2 közötti értékek esetén is már megfigyelhetők platók a mért spektrumokban. A platók kialakulása a γ 2 körül kezdődik mind a mért mint a számolt esetben ($\gamma_{loc} = 22$ -nél már platószerű képződmény a 2.5 és 4 eV közötti energia-tartományban). Mindez arra enged következtetni, hogy a γ 2 érték körül a lézertér már kezdi kifejteni erőstér hatását, és alagutazó elektronok jelennek meg a fotoáramban. Láthatjuk, ugyanakkor hogy a platók kialakulása a $\gamma_{loc} \in [1.41, 2.22]$ tartományban mindkét esetben hasonlóan megy végbe. A beeső intenzitást növelve (γ_{loc} -ot csökkentve) az alagutazott és potenciál feletti elektronok súlya egyre nagyobbá válik, a $\gamma_{loc} = 1.41$ értéknél már dominánsá válnak, úgy a mért, mint a számolt spektrum alakjában/karakterisztikájában. Így elmondható, hogy azt a γ tartományt sikeresen beazonosítottuk, ahol az átmenet soktfotonos emisszióból alagút/küszöb feletti emisszióba történik.

A következő alrészben bemutatom a számolási eredményeimet és azok kiértékelését homogén és inhomogén terekre a fent leírt γ_{loc} tartományon különböző intenzitásokra és plazmonikus lecsengésekre.

5.2. A fotoelektronok levágási energiájának (*cutoff*) vizsgálata

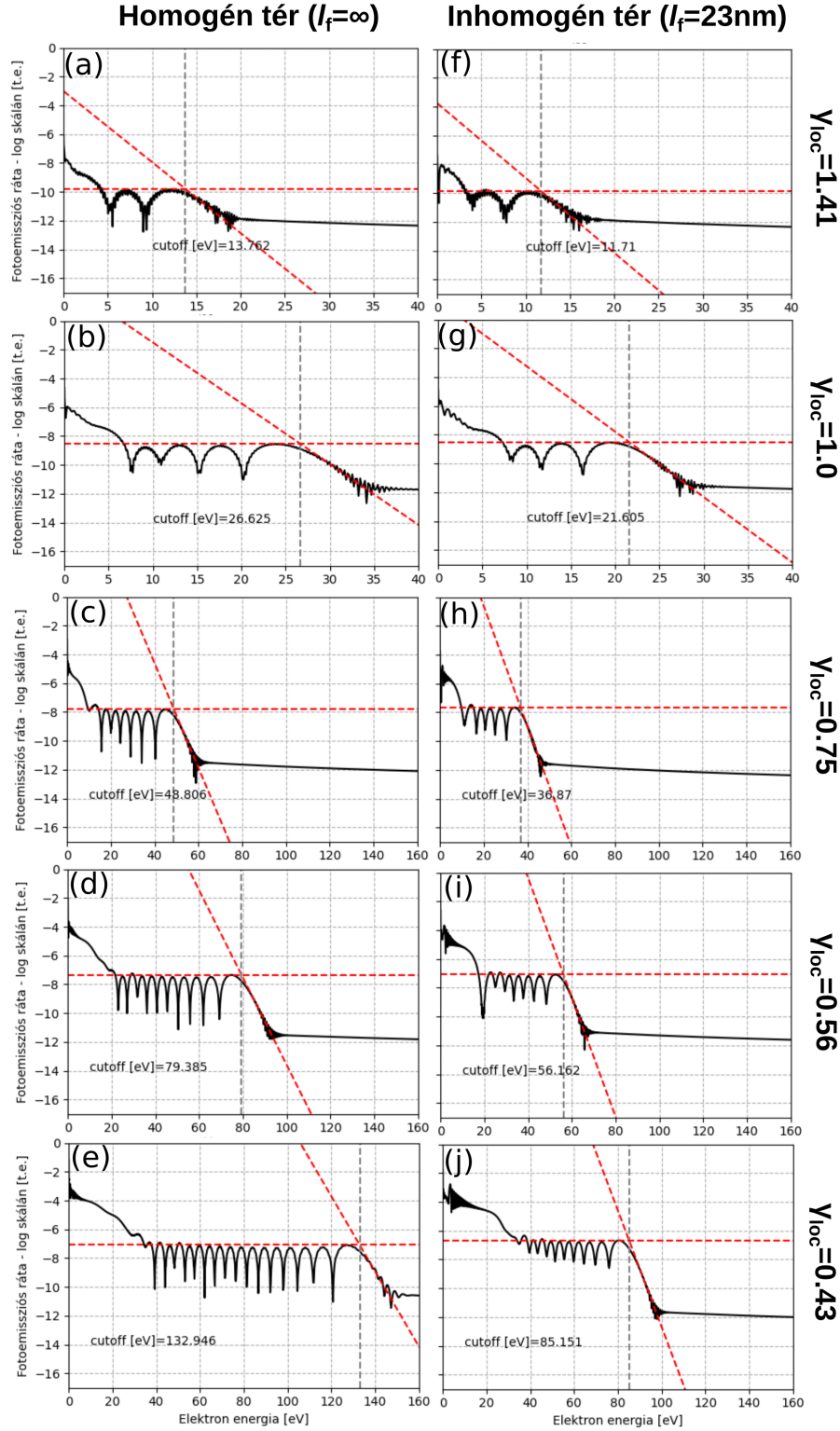
Numerikus számolásaim során 2000 nm-es 1 optikai ciklusú lézerimpulzusra végeztem intenzitásfüggő szimulációkat. $2.87 < \gamma_{loc} < 0.43$ tartományon. Az előző alrésznek megfelelően $Q(z=0) = 15.33$ -at használtam. A következő 11. ábrán láthatók a számolt fotoelektron spektrumok. 11 (a) ábrán a homogén tér $l_f \rightarrow \infty$ míg az inhomogén lecsengőtérre $l_f = 23$ nm-re 11(b) ábra mutatja az fotoelektron energia spektrumokat.



11. ábra. 2000 nm-es 1 optikai ciklusú hullámhosszra számolt fotoemissziós spektrumok különböző csúcs intenzitásokra: (a) homogén térre számolt spektrumok: $l_f \rightarrow \infty$. ;(b) inhomogén lecsengő $l_f = 23$ nm-re számolt spektrumok. A II. -es nagyított részben a kísérleti lokális terekre végzett szimulációk.

Mivel a plató megjelenése nem nem azonosítható be egyértelműen a nagyobb γ_{loc} értékekre, és a *cutoff* meghatározásához szükséges illesztés gyakorlatilag szinte kivitelezhetetlen, és kevésbé is értelmezhető (hisz a ezen tartományban már a sokfotonos mechanizmusok dominálnak), a következő számolásokban, ezért a következő számolásokban $\gamma_{loc} = \{1.41, 1.0, 0.75, 0.56, 0.43\}$ értékekre végeztem *cutoff* illesztéseket. A nagyobb intenzitásokra elvégzett számolások elméleti segítséget nyújthatnak elkövetkezendő kísérleti mérésekhez, a levágási energiák pontosabb meghatározásában.

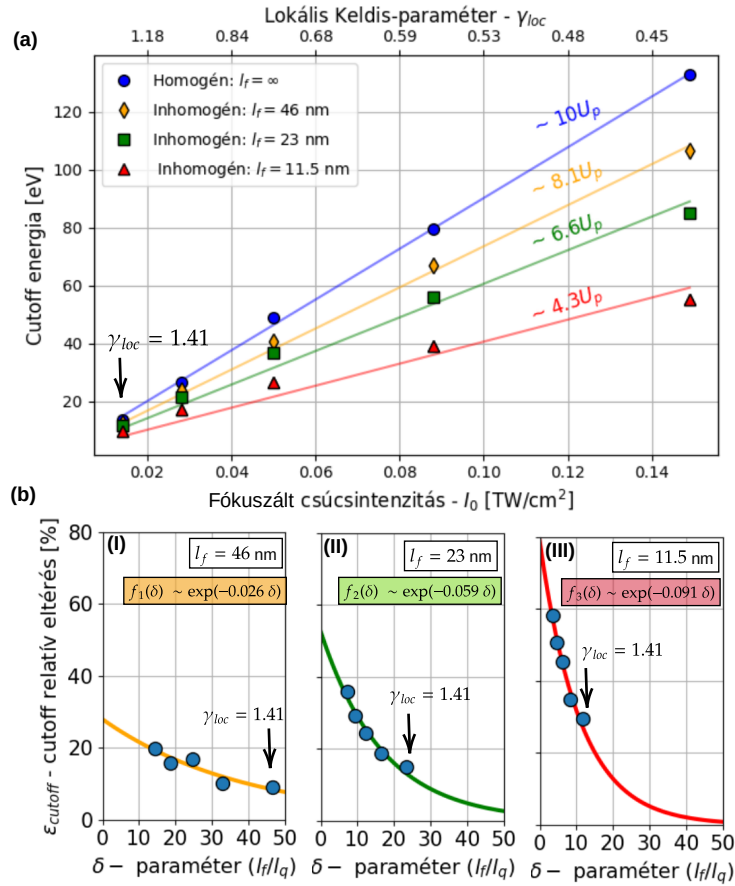
Látható a 11 (a) és (b) ábrákon, hogy a homogén térre számolt spektrumok esetében a cutoff energiák eltolódtak a nagyobb energiák irányába. Az inhomogén tér hatása egyértelmű: csökkentő hatással van a maximális elektron energi értékére nézve. Mivel, nagyobb γ_{loc} értékekre nem egyértelmű a levágási pont, ezért a korábban elmondottak alapján $\gamma_{loc} = \{1.41, 1.0, 0.75, 0.56, 0.43\}$ lokális Keldis-paraméterekre végeztem csak el a *cutoff* illesztéseket.



12. ábra. *cutoff* illesztések homogén ($l_f \rightarrow \infty$) és inhomogén lecsengő térre $l_f = 23\text{ nm}$ -re

Azért, hogy általánosabb trendet tudjak megállapítani az U_p skálázásra nem csak az intenzitás értékeit változtattam hanem a plazmonikus tér lecsengését is. $l_f = 23$ nm-es érték mellett két másik esetre $l_f/2 = 11.5$ nm és $2l_f = 46$ nm-re vizsgáltam a *cutoff* energiák eltérését.

A különböző lecsengésekre $l_f = \{\infty, 46, 23, 11.5\}$ számított *cutoff* fokot ábrázoltam a beeső intenzitás és a lokális Keldis-paraméter függvényében. Az adatpontokra külön-külön egyenes-illesztéssel meghatároztam különböző lecsengési hosszak mellett az U_p skálázást, ami a 13 (a) ábráján látható. Ezt követően különböző l_f -ekre a δ paraméter függvényében ábrázoltam a *cutoff* energiák relatív megváltozását a homogén esethez képest 13. (b) ábra (I)-(III).



13. ábra. (a) $Q = 15.33$ térnövekményre és $l_f = 46, 23, 11.5$ nm-es lecsengésre meghatározott levágási energiák különböző lokális Keldis-paraméter és beeső csúcsintenzitás függvényében. (b) A δ paraméter függvényében az egyes l_f -ekhez a *cutoff* energia relatív eltérése a homogénhez képest (I)-(III).

Látható a 13(a) ábrán, hogy a plazmontér lecsengési hosszának csökkenésével a $10U_p$ -s skálázás a kisebb energiák irányába ($4U_p$ a jelen esetben). Azt is észrevehetjük, hogy a vizsgált tartományon belül alacsony intenzitások mellett $\gamma_{loc} \in \{0.9 - 1.41\}$ tartományon az egyes lecsengésekhez tartozó *cutoff* különbségek kvázi elhanyagolhatóak. Ekkor még a fotoelektron *quiver* amplitúdója l_q viszonylag kis értéket vesz fel a lecsengési hosszhoz képest (δ értéke nagy), ami miatt az elektron a teljes optikai ciklus alatt közel homogén térnövekményű térben gyorsul. Az intenzitás változtatásával a fotoelektronok *quiver* mozgásának amplitúdója nőni fog (δ értéke egyre kisebb) ami miatt az elektron különböző lecsengésű térnövekményeket érzékel így végeredményben az elektron maximális energiája is csökkeni fog.

A 13 (b) alábráin jól láthatjuk a fent megfogalmazott tendenciát, ahol adott l_f lecsengési hossz mellett a δ paraméter függvényében a *cutoff* energia relatív eltérése látható.

$$\varepsilon_{cutoff} = \frac{|E_{cutoff}^{\{hom\}} - E_{cutoff}^{\{inhom\}}|}{E_{cutoff}^{\{hom\}}} \quad (31)$$

Jól kivehető az is, hogy minnél kisebb δ tartományon mozgunk, ami azt jelenti, hogy egyre inkább összemérhetővé válik a *quiver* amplitúdó a plazmonikus tér lecsengési hosszával, úgy annál szignifikánsabb lesz a homogén térhez képest a *cutoff* energia eltérése. Ezen három lecsengési értékre kapott relatív eltérésekre illesztett exponenciális lecsengések értelmében láthatjuk, hogy amint a lecsengés értékét, l_f -et, felezzük (növelve az inhomogenitást a kinti térrészben) az exponens értéke durva közelítéssel duplázódni fog.

A másik megfigyelhető jelenség, hogy adott intenzitás értéket figyelve, pl a $\gamma_{loc} = 1.41$ -et figyelve a relatív eltérések a homogén esethez képest duplázódnak az l_f érték felezésével. A legjobban talán ez a jelenség a legnagyobb intenzitást jelölő gamma értéknél ($\gamma_{loc} = 0.43$) figyelhető meg, ahol a relatív eltérés a kezdeti $l_{f1} = 46$ nm felezésével 20 %-ról 40 %-ra módosul. Majd az új lecsengési érték felezve 40%-ról 60%-ra. Számolásaimmal tehát megmutattam, hogy az elektronok levágási energiájára ismert $10U_p$ skálázás módosul olyan esetben amikor a *quiver* amplitúdó összemérhetővé válik a térlécsengésével.

6. Következtetések, kitekintés

A dolgozat első részében röviden tárgyaltam az ultrarövid lézerimpulzusok és fém-nanoszerkezetek kölcsönhatásából származó fotoemissziós mechanizmusok alapjait. Ezt követően bemutattam azt a hatékony numerikus módszert mellyel a későbbiekben nanoplazmonikus terek környezetében lezajló fotoemissziót modelleztem. A fotoelektronok dinamikájának modellezése az 1D időgguggó Schrödinger-egyenlet közvetlen integrálásán alapul amelyet egy 1D véges elemű rácson reprezentáltam. Az elektron hullámfüggvény propagálását Crank-Nicolson egyenlet Thomas-algoritmussal való megoldásával állítottam elő. A numerikus implementációm ezután az általunk vizsgált potenciálokhoz illeszkedő rácson implementáltam konvergencia-tesztekkel meghatározott idő és térbeli léptetést alkalmazva.

A következő fejezetben a numerikus kódommal egyszerű szimulációkat végeztem fémfelületi potenciál és lézerimpulzusok kölcsönhatásának vizsgálatára. Különböző optikai ciklusokat és intenzitásokat alkalmazva kiszámoltam a végállapoti hullámfüggvény perturbált $z > 0$ részére a fotoemissziós spektrumot. A fotoemissziós spektrumok levágási energiájátt illesztéssel meghatároztam és megmutattam, hogy az irodalomban ismert $10U_p$ összefüggést követik ami a numerikus implementációm hitelesítette.

Ezt követően kísérlet közeli szimulációkat végeztem nanoplazmonikusan lecsengő terekre infravörös hullámhossz mellett. Az eddigi FDTD szimulációkból kapott térnövekmény és lecsengési hosszon kívül elméleti modellezést folytattam más lecsengési hosszakra. A szimulált fotoemissziós spektrumokra meghatározott *cutoff* energiák $10U_p$ skálázásának módosulását vizsgáltam olyan esetre amikor intenzív nagy hullámhosszú lézerimpulzusok hatnak kölcsön inhomogén plazmonikus terekkel.

Ebben a részben a legfontosabb eredményem, hogy korábbi munkákkal szemben nem csak erősen alagutazási tartományra hanem sokfotonos tartományra is kiterjesztettem a számolásokat és meghatároztam az egyes plazmonikus lecsengési hosszakra a U_p skálázást.

A dolgozatom egyik igen fontos eredménye, hogy olyan algoritmust implementáltam a TDSE számolások elvégzéséhez melyek a csoport korábban használt numerikus algoritmusok számolási gyorsaságát körülbelül egy nagyságrenddel meghaladja.

A kutatás folytatásaként egyik fő célom az lesz, hogy a jelenlegi numerikus megoldásom teljesen optimalizáltá tegyem. A Thomas-algoritmus paralelizációjával például jelentősen megnövelhető lenne sok magos CPU-on a számolási sebesség így akár sok optikai ciklusra közeli infravörös tartomány hosszabb hullámhosszaira is lehetne vizsgálni különböző nanoplazmonikus fotoemissziós folyamatokat.

Köszönetnyilvánítás

Ebben a részben szeretném megköszönni azok munkáját akik hozzájárultak valamilyen formában a dolgozatom megírásához. Legelőször szeretném megköszönni dr. Kiss Gellért Zsolt és Dr. Dombi Péter témavezetését akiknek szakmai iránymutatásával sikeresen megírhattam a TDK dolgozatom és akiknek köszönhetően bevezetést kaptam az ultragyors nanooptika területére. Külön köszönöm dr. Kiss Gellért Zsolt témavezetését aki az ultragyors nanofizika elméleti alapjainak megértésében segített. Ezek mellett szeretném megköszönni dr. Tóth Attila szakmai útbaigazítását a szimulációs kódom javításában. Végül szeretnék köszönetet mondani a kísérleti és szimulációs adatokkal való hozzájárulását dolgozatomhoz dr. Pápa Zsuzsannának és Bánhegyi Balázsnak.

Hivatkozások

- [1] P. Rácz, Zs. Pápa, I. Márton, J. Budai, P. Wróbel, T. Stefaniuk, C. Prietl, J. R. Krenn and P. Dombi. Measurement of Nanoplasmonic Field Enhancement with Ultrafast Photoemission. *Nano Lett.*, 17, 1181–1186, 2017
- [2] Kiss, G.Z., Földi, P. Dombi, P. Ultrafast plasmonic photoemission in the single-cycle and few-cycle regimes. *Sci Rep* 12, 3932 (2022).
- [3] S. M. Teichmann, P. Rácz, M. F. Ciappina, J. A. Perez-Hernández, A. Thai, J. Fekete, A. Y. Elezzabi, L. Veisz, J. Biegert and P. Dombi, “Strong-field plasmonic photoemission in the mid-IR at $<1\text{GW}/\text{cm}^2$ intensity,” *Sci. Rep.* 5, 7584 (2015)
- [4] 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)
- [5] A. V. Kabashin, et. al. „Plasmonic nanorod materials for biosensing" *Nature Materials* 8, 676 - 871 (2009)
- [6] Atwater, H., Polman, A. Plasmonics for improved photovoltaic devices. *Nature Mater* 9, 205–213 (2010).
- [7] P. Dombi, P. Rácz „Ultrafast monoenergetic electron source by optical waveform control of surface plasmons" *Optics Express* 16, 2887 - 2893 (2008)
- [8] 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).
- [9] Lovász B, Sándor P, Kiss GZ, Bánhegyi B, Rácz P, Pápa Z, Budai J, Prietl C, Krenn JR, Dombi P. Nonadiabatic Nano-optical Tunneling of Photoelectrons in Plasmonic Near-Fields. *Nano Lett.* 2022 Mar 23;22(6):2303-2308.
- [10] Bauer, D.; Koval, P. Qprop: A Schrödinger-solver for intense laser–atom interaction. *Comput. Phys. Commun.* 174, 396–421, (2006)
- [11] Krüger M. Attosecond Physics in Strong-Field Photoemission from Metal Nanotips. *LMU München*, 9-11 (2013)
- [12] Keldis, L. V. Ionization in the field of strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307-1314 (1965).

-
- [13] Bunkin, F. V. & Federov, M.V. Cold emission of electrons from the surface of a metal in strong radiation field. *Sov. Phys. JETP* **21**, 896-899 (1965)
- [14] 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)
- [15] Luan, S., Hippler, R., Schwier, H. Lutz, H. O. Electron-emission from polycrystalline copper surfaces by multi-photon absorption. *Europhys. Lett.* **9**, 489–494 (1989).
- [16] 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)
- [17] Thomas, J. W. *Numerical Partial Differential Equations: Finite Difference Methods*. Texts in Applied Mathematics. Vol. 22. Berlin, New York: Springer-Verlag, 1995)
- [18] Yalunin, Sergey & Gulde, Max & Ropers, Claus. Strong-field photoemission from surfaces: Theoretical approaches. *Phys. Rev. B.* **84**. 10.1103/PhysRevB.84.195426. (2011)
- [19] Herink, G., Solli, D., Gulde, M. et al. Field-driven photoemission from nanostructures quenches the cutoff motion. *Nature* **483**, 190–193 (2012).