

KVANTÁLT ELEKTROMÁGNESES TÉRREL KELTETT FELHARMONIKUSOK

Gombkötő Ákos,¹ Varró Sándor,^{2,3} Mati Péter,³ Földi Péter^{1,3}

¹Szegedi Tudományegyetem, ²Wigner Fizikai Kutatóközpont, ³ELI-ALPS

A magas rendű felharmonikusok keltése (high-order harmonic generation: HHG) az optikában azt jelenti, hogy valamilyen céltárgyra erős (lézer)fény esik be, és az anyagi válasz nemlinearitása miatt a keletkező másodlagos sugárzás spektruma tartalmazza a gerjesztő frekvencia egész számú többszöröseit, azaz a felharmonikusokat is. Elegendően nagy intenzitás mellett itt már nem kis egész számokról beszélünk, infravörös gerjesztés esetén például detektálhatók a már az extrém ultrabolya tartományba (néhányszor 10 nm hullámhossz környékére) eső felharmonikusok is. A jelenség alapos vizsgálata a nagyintenzitású fény-anyag kölcsönhatás fizikai hátterének megértéséhez járul hozzá, ugyanakkor lézertechnológiai szempontból is fontos, mivel elegendően sok, megfelelő fázisban lévő felharmonikus a szuperpozíció révén nagyon rövid impulzussá állhat össze [1–3]. (A közeli vagy közép infravörös tartományba eső gerjesztés esetén ez attosekundumos időskálát jelent.) Magas rendű felharmonikusok keletkezését először gáz-mintákban tapasztalták [4, 5], de azóta már plazmákban [6] és széles tiltott sávú szilárdtestekben [7, 8] keltett harmonikusokat is detektáltak.

Készült a 30. Magyar Fizikus Vándorgyűlésen (Sopron, 2019. augusztus 21–24.) elhangzott előadás alapján.

Az eredmények eléréséhez nagyban hozzájárultak a *Benedict Mihállyal* és *Paraskevas Tzallasszal* való megbeszélések.

A munkát az EFOP-3.6.2-16-2017-00005, a TUDFO/47138-1/2019-ITM FIKP és a GINOP-2.3.2-15-2016-00036 számú pályázatok támogatták. Az ELI-ALPS projektet (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió és az Európai Regionális Fejlesztési Alap támogatja.



Gombkötő Ákos Zalaegerszezen született, a Szegedi Tudományegyetemen szerzett fizikus diplomát. 2016 óta PhD hallgató, kutatási területe a nagyintenzitású fény-anyag kölcsönhatás kvantumos modellezése.



Varró Sándor fizikus (JATE TTK) 1979-től a KFKI-ban, tudományos tanácsadó a Wigner FK SZFI-ben. Humboldt-ösztöndíjas (1988–89), az MTA doktora (1999), az SZTE magántanára (2005). Az ELI-HU Elméleti és Szimulációs csoport vezetője (2014). Kutatási területei: intenzív lézerterek sokfotonos folyamatainak kvantum-elektrodinamikája, attosekundumos impulzusok elmélete, mértékinvariáns Wigner-függvények, feketetest-sugárzás digitális véletlenszerűsége, extrém sugárzási terek kvantumoptikája.



Mati Péter a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetemen szerzett mérnökfizikusi oklevelet, majd ugyanitt doktorált. Kutatói és oktatói munkát végzett a Debreceni Egyetemen. Vendégkutatóként dolgozott a Sussexi Egyetemen. 2015 és 2019 között az ELI-ALPS munkatársa, kutatási területe a kvantumtérelméletek, egzakttá renormálási csoport és egyéb nemperturbatív módszerek. 2019 vége óta gépi tanulásra specializálódott mérnökként dolgozik az önvezetőautó-iparban.



Földi Péter a József Attila Tudományegyetemen (később SZTE) szerzett fizikus és fizikatanár diplomát, majd PhD fokozatot. 2004 óta az SZTE Elméleti Fizikai Tanszéken dolgozik adjunktusként, majd habilitálva (2011.) docensként. Hosszabb ideig volt vendégkutató az Antwerpeni Egyetemen és a Garching melletti Max Planck Kvantumoptikai Intézetben. 2015 óta az ELI-ALPS rész munkaidős munkatársa. Kutatási területe a fény-anyag kölcsönhatás és a transzportfolyamatok kvantumos leírása.

ka komplementere: korábban [11] a felharmonikus-módusokat, most pedig a gerjesztő teret [17] tekintjük kvantálnak. (A teljesen kvantumos leírás kidolgozása jelenleg még folyamatban van.)

Az elméletet tekintve, szabad töltött részecskék kvantált térrel való kölcsönhatásának a leírása mind relativisztikus [15], mind pedig nemrelativisztikus [16] esetben ismert. A [15] munka a HHG első nemperturbatív tárgyalása nemlineáris Compton-szórás esetén. A kísérleti cikkek [13, 14] maguk is tartalmazznak egy-fajta elméleti indoklást, ugyanakkor korántsem állíthatjuk, hogy mostanra már a teljes folyamat minden részletét értjük. Ezért ésszerű, ha a lehető legegyszerűbb modellt tekintve próbáljuk meg felfedni a folyamatért felelős fizikai mechanizmusokat. Ezt tettük a [17] munkában, amelynek fő eredményeit a következőkben fogjuk összefoglalni.

Modell

A továbbiakban egy jól ismert, klasszikusnak tekinthető kvantumoptikai modell azon határesetét vizsgáljuk, amikor a gerjesztő tér annyira erős, hogy képes felharmonikusokat kelteni. A Jaynes–Cummings–Paul (JCP) modellben egyetlen elektromágnes módot tekintünk, amely egyetlen atommal áll kölcsönhatásban, és az egyszerűség kedvéért az atomot is összesen két kvantumállapottal vesszük figyelembe. A rendszert leíró Hamilton-operátor a következő:

$$H = H_a + H_m + H_{am} = \frac{\hbar}{2} \omega_0 \sigma_z + \hbar \omega a^\dagger a + \hbar \Omega \sigma_x (a + a^\dagger), \quad (1)$$

ahol az első tag az atomi rendszert, a második a mezőt, H_{am} pedig a kölcsönhatásukat írja le. Az egyenletben a kétszeres Pauli-mátrixok (σ_x és σ_z), illetve a módus keltő (a^\dagger) és eltüntető (a) operátorai jelennek meg. A két atomi állapot közötti energiakülönbség $\hbar\omega_0$, és ω jelöli a gerjesztő módus frekvenciáját. A kölcsönhatási operátor lényegében dipólmomentum \times térerősség alakú, mivel a dipólmomentum-operátor σ_x -szel, a térerősség pedig $(a^\dagger + a)$ -val arányos. A ZnO mintában, 800 nm központi hullámhosszú gerjesztéssel keltett felharmonikusok esetének [14] megfelelően $\omega_0/\omega = 2,2$, ami a ZnO tiltott sávjának és a $\hbar\omega$ fotonenergiának az aránya. A kölcsönhatás erősségét meghatározó Ω Rabi-frekvencia nagyságrendekkel kisebb, mint akár ω vagy ω_0 . Technikai megjegyzésként érdemes felhívni a figyelmet arra, hogy ilyen erős elhangolás mellett semmiképpen nem lenne reális a rezonanciához ($\omega \approx \omega_0$) közeli esetben (a JCP-modell eredeti megfogalmazása) érvényes forgóhullámú közelítés, amely az (1) egyenlettől a kölcsönhatási tag alakjában különbözik. Emellett könnyen megmutatható, hogy a forgóhullám-közelítés egyáltalán nem vezet HHG-hez, azaz az (1) egyenlet által adott modell – ha a felharmonikusok keltésének elemzése a célunk – praktikusán tovább már nem egyszerűsíthető.

A rendszer dinamikájának számításához szükség van egy kezdőállapotra, ami az atomi rendszer esetén az alacsonyabb energiához tartozó (alap)állapot, míg mező esetében egy $|\alpha_0\rangle$ -al jelölt koherens állapotot tételezünk fel. A koherens állapotok a mező leginkább klasszikusnak tekinthető állapotai, ahol a maximális térerősség a komplex értékű α_0 paraméter abszolút értékével arányos. Ez azt jelenti, hogy az erős gerjesztés esete nagy $|\alpha_0|$ -hoz tartozik.

Eredmények

A koherens állapotok időfejlődése kölcsönhatás nélkül a tankönyvekből ismert. Az

$$i\hbar \frac{\partial |\phi\rangle}{\partial t} = H_a |\phi\rangle$$

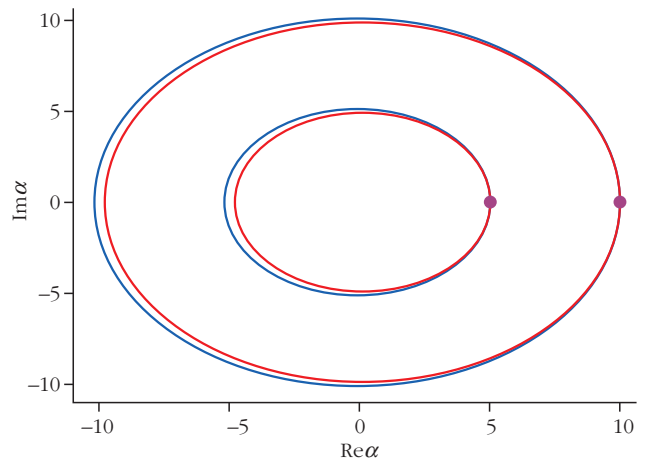
időfüggő Schrödinger-egyenlet megoldása, ha $t = 0$ -ban $|\phi\rangle = |\alpha_0\rangle$, akkor

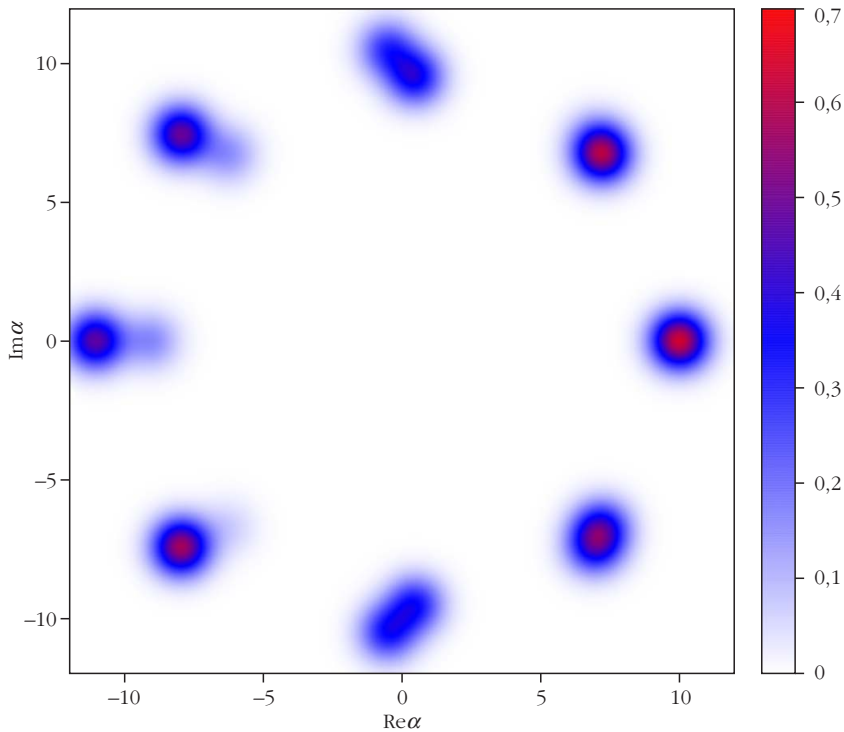
$$|\phi\rangle(t) = |\alpha_0 \exp(-i\omega t)\rangle,$$

azaz a koherens állapot az idő múlásával is koherens marad, mindössze az indexe változik. Ez a változás a módus fázisterével azonosítható α komplex síkon egy α_0 sugarú körnek felel meg, amelyen a periódusidő alatt halad körbe az állapotot reprezentáló pont. (Mivel a térerősség várható értéke α valós részével arányos, annak időfüggése – nem meglepő módon – $\cos\omega t$ -vel fog oszcillálni.)

Ez a jól ismert időfejlődés természetesen megváltozik, ha figyelembe vesszük az anyaggal való kölcsönhatást. Általános esetben az (1) Hamilton-operátor által generált dinamika megoldása nem ismert, ugyanakkor esetünkben – mivel intenzív gerjesztést feltételezünk – értelmes az „erőstér-közelítés”, amikor az atomi Hamilton-operátor hatását elhanyagoljuk. Ekkor még analitikusan fel tudjuk írni az időfüggő Schrödinger-egyenlet megoldását [17]. Az előző fejezet végén

1. ábra. A kezdetben alapállapotban lévő atom és koherens állapotban lévő mező időfejlődésének szemléltetése a fázistéren két koherens állapot esetére, azaz „erőstér-közelítésben”, azaz H_a elhanyagolásával.





2. ábra. A gerjesztő módus Wigner-függvénye abban az esetben, ha a teljes, közelítések nélküli dinamikát tekintjük. A nyolc, jól elkülöníthető rész különböző időpillanatokhoz tartozik az első optikai ciklusban: $t = 0, 1/8T, 2/8T, \dots, 7/8T$. A paramétereket ($\alpha_0 = 10, \omega/\Omega = 0,5$) úgy választottuk meg, hogy jól szemléltessék a jelenséget. Realisztikus esetben ennél sokkal erősebb a lokalizáció.

megadott kezdeti feltételek esetén azt kapjuk, hogy a dinamika során a kezdeti egyetlen $|\alpha_0\rangle$ állapot két koherens állapotra esik szét, amelyekhez különböző atomi állapotok tartoznak. Az alapállapotot példának tekintve, az úgy is felírható, mint σ_x két sajátállapotának azonos súlyú szuperpozíciója, és a két σ_x sajátállapothoz egymástól eltérő időfüggésű koherens állapot tartozik. Ezt a dinamikát az 1. ábra szemlélteti, ahol a két különböző koherens állapotot piros és kék szín reprezentálja. Kezdetben ($t = 0$) ezek megegyeznek (lila pont), az optikai ciklus során eltávolodnak egymástól (ennek mértéke Ω/ω -val arányos), majd ismét egybeesnek a $t = T = 2\pi/\omega$ időpillanatban. Szokásos módon a másodlagos sugárzás és így a magasrendű harmonikusok forrásának az atomi dipólmomentumot (pontosabban annak megváltozását) tekintjük. Ezt figyelembe véve fontos megjegyezni, hogy az erőstérközelítést alkalmazó megoldás még nem elegendő a felharmonikusok megjelenésének megmagyarázására, mert a dipólmomentum várható értéke (lényegében $\langle \sigma_x \rangle$) ebben az esetben konstans zéró.

Ezt azt is jelenti, hogy az atomi Hamilton-operátor jelenléte elengedhetetlenül szükséges a felharmonikusok megjelenéséhez, H_a az, ami átmeneteket indukál a dipólmomentum különböző sajátállapotai között. Ha a dinamika számításánál a teljes (1) Hamilton-operátort szeretnénk figyelembe venni, akkor numerikusan kell dolgoznunk, és a szokásos módszerekkel így is nehézségekbe ütközünk, aminek fő oka a nagy gerjesztő intenzitás. (A fotonok számát tekintve érdemes megjegyezni, hogy egy $|\alpha\rangle$ koherens

állapotban az átlagos fotonszámot $|\alpha|^2$ adja. A [13] kísérleti munkában impulzusonként 10^{15} foton becslések, ami érezhető módon megoldhatatlan problémát jelent, ha a fotonszámok bázisán fejtjük ki a Schrödinger-egyenletet.) Ezt a nehézséget nagyon elegáns módon orvosolja az a bázis, amit Neumann János vezetett be 1932-ben [18]. Ez a von Neumann-rácsnak nevezett bázis koherens állapotokból áll, amelyek α indexei a komplex síkon négyzetrácsot alkotnak (a legközelebbi szomszédok távolsága $\sqrt{\pi}$ [19]). Az általunk vizsgált esetben azt tapasztalhatjuk, hogy ha a kezdő koherens állapot α_0 indexe környékén tekintjük a von Neumann-rács egy alkalmasan nagy részét, és ezt a rácsot az 1. ábrán látható kör mentén az origó körül elforgatjuk, akkor a magasfelharmonikus-keltés időskáláján ez a rács folyamatosan a számítások megfelelő pontosságát biztosító bázist szolgáltat. Ez abból fakad, hogy ezen az időskálán (néhány vagy néhányszor tíz optikai ciklus) a fázistéren a dinamika lokalizált: ahogy az 1. ábra mutatja, H_a elhanyagolása esetén valóban pusztán két, egymáshoz közeli koherens állapot mozgásáról van szó, és mivel most az atomi Hamilton-operátor tekinthető perturbációnak $H_m + H_{am}$ -hez képest, néhány ciklus alatt az egzakt dinamika sem „keni szét” számottevően a koherens állapotokat a fázistéren. Így tehát egy fizikailag is érthető okokból hatékony módszert kapunk az időfejlődés kiszámítására, ami lehetővé teszi, hogy tetszőleges nagy kezdeti $|\alpha_0|$ esetén megoldjuk a problémát.

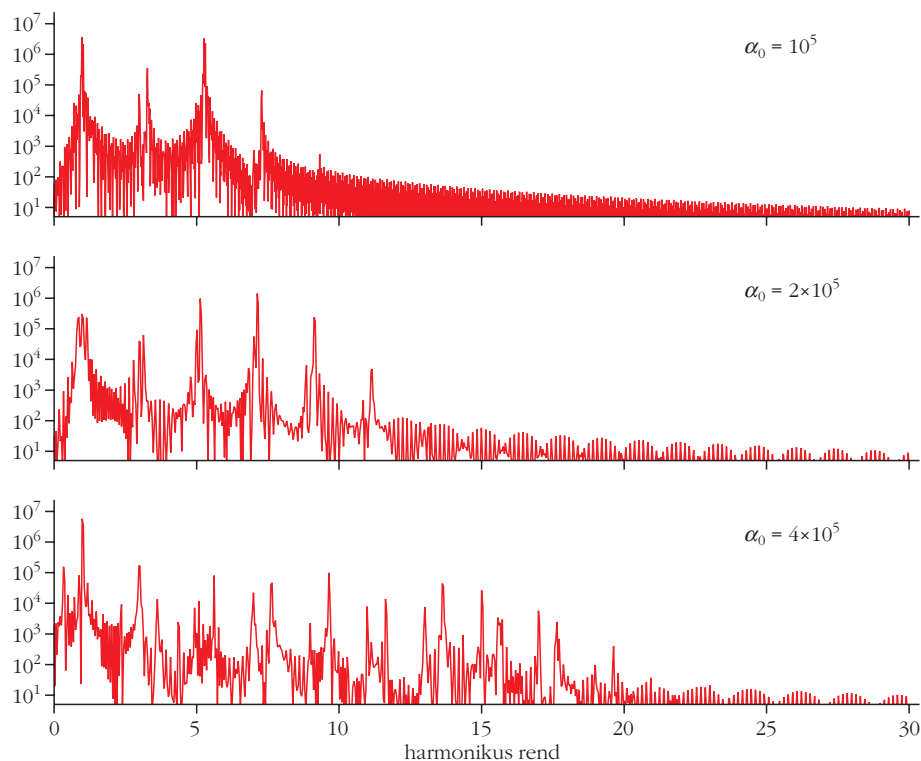
Szemléltetésként a 2. ábra a képalírásban szereplő paraméterek esetére mutatja Wigner-függvény felhasználásával a dinamikát. A $W(\alpha)$ Wigner-függvény a fázistéren értelmezett (kvázi)valószínűségi sűrűségfüggvény, ahol a zárójeles előtag arra utal, hogy W a matematikai valószínűségszámítás kétváltozós ($\text{Re}\alpha, \text{Im}\alpha$) valószínűségi sűrűségfüggvényeinek majdnem minden tulajdonságával rendelkezik. (Az egyetlen, a kvantummechanika sajátosságaiból adódó kivétel a nemnegativitás.) Ez szemléletesen azt jelenti, hogy a 2. ábrán látható esetben, amikor $W(\alpha) \geq 0$ lényegében mindenütt, azt mondhatjuk, hogy a rendszer a fázistérben nagy valószínűséggel azokat a tartományokat foglalja el, amelyeken $W(\alpha)$ nagy értékeket vesz fel. Ilyen szemmel vizsgálva az ábrát, a dinamika fentebb említett fázistérbeli lokalizáltsága jól látható.

A kölcsönhatásban résztvevő atomi rendszer és az elektromágneses módus közül eddig főként az utóbira koncentráltunk, bár természetesen a két rendszer dinamikája nem független egymástól. (Ez az összefo-

nódottság például abban is megnyilvánul, hogy az 1. ábrán látható két különböző „fázisrajtörít” követő koherens állapothoz különböző atomi állapotok tartoznak.) Az atomi rendszer dinamikája azért is érdekes, mert ez az, ami forrásként szolgál a harmonikusokat is tartalmazó másodlagos sugárzás számára. A HHG elméletében gyakran alkalmazott gyakorlat az, hogy ha valamilyen módon ki tudjuk számítani egy rendszer dipólmomentumának a $d(t)$ időfüggését, akkor első közelítésben $d(t)$ Fourier-transzformáltját, $\tilde{d}(\nu)$ -t tekintjük a (nem normált) magasfelharmonikus spektrumnak. (Ábrázolni főként $|\tilde{d}|^2(\nu)$ -t szokás, annak ellenére, hogy a fázisok szerepe is jelentős lehet.) Ez a módszer sok elhanyagolással él, a terjedési effektusok figyelembe vétele például teljes mértékben hiányzik, ugyanakkor az atomi

folyamatok szerepét tisztán mutatja. Modellünkben a dipólmomentum szerepét – konstanstól eltekintve – a σ_x operátor játssza, és ahogy már említettük, ahhoz, hogy ennek várható értéke megváltozzon, az (1) egyenlettel adott összes tag szükséges. Ha azonban minden tagot figyelembe veszünk és az időfüggő Schrödinger-egyenlet megoldását a von Neumann-rács segítségével számítjuk, akkor $d(t)$ -nek $\langle \sigma_x \rangle(t)$ -t feleltetve meg, a HHG spektrumok kiszámíthatók. Ezekre mutat példát a 3. ábra, ahol különböző $|\alpha_0\rangle$ kezdőállapotok esetén számítottuk ki $|\tilde{d}|^2(\nu)$ függvényét. Az ábra vízszintes tengelyén a „harmonikus rend” azt jelenti, hogy az adott körfrekvencia hány-szorosa a gerjesztéshez tartozó ω -nak. Ezen eredmények rendelkeznek a magasfelharmonikus spektrumok szokásos tulajdonságaival: ω -nál található egy erős csúcs, azután lényegében ω páratlan számú többszöröseinek környékén látunk csúcsokat (a párosak szimmetriaokokból hiányoznak), amelyek magassága egy tartományon belül nagyjából állandó. Ezt a platót a jel erőteljes csökkenése követi, amit levágásnak vagy letörésnek hívnak. Ahogyan az ábrán is látszik, a számolt spektrumok azt a kísérleti tapasztalatot is követik, hogy erősödő gerjesztő tér esetén a levágási frekvencia is nő.

Az egyes csúcsok belső struktúrája részben a gerjesztett atomi rendszertől, részben pedig a gerjesztés jellegétől függ. A [11, 12] munkákban a gerjesztő teret klasszikusan kezeltük, és abban az esetben erősebben látszott a maximumok – a kétnívós modellatomhoz köthető – ikercsúcs jellege. Emellett kvantált gerjesz-



3. ábra. Magasfelharmonikus spektrumok (önkényes egységekben) különböző erősségű gerjesztések esetén. Az α_0 paraméter a kölcsönhatásban résztvevő mező koherens állapotának indexe, aminek nagysága az elektromos térerősség amplitúdójával arányos. A vízszintes tengelyen az ω (gerjesztő frekvencia) az egység. A függőleges tengely skálája logaritmikus.

tés esetén a páros felharmonikusokhoz tartozó csúcsok sokkal kevésbé láthatók, mint klasszikus tér esetén. Ennek alapos vizsgálata – amit a közeljövőben tervezünk – újabb részleteit fedheti fel, hogy milyen, esetlegesen mérhető különbségek vannak a kétféleképpen leírt folyamatban. A spektrumok minden részletre kiterjedő, összehasonlító analízise akkor lesz maradéktalanul végrehajtható, ha a teljesen kvantált (mind a gerjesztést, mind pedig a felharmonikusokat megfelelő módon figyelembe vevő) modell is a rendelkezésünkre áll.

Összefoglalás

Cikkünkben azt a – részben kísérleti motivációjú – kérdést jártuk körül, hogy milyen fizikai képet szolgáltat, ha a magasrendű felharmonikusok keltése során a gerjesztő, erős teret kvantumosan tekintjük. Egy könnyen átlátható, egyetlen kétnívós atom és egy módus kölcsönhatását leíró modell alapján rámutattunk, hogy a Hamilton-operátorban szereplő minden (az atomot, a módust és a kölcsönhatást leíró) tagra szükség van ahhoz, hogy felharmonikusok jelenjenek meg. A módus fázissterén a folyamat azt jelenti, hogy a kezdeti koherens állapot kettéválk aszerint, hogy a kölcsönhatási operátor melyik sajátállapotában van a rendszer, és ezen két állapot között hoz létre átmeneteket az atomi Hamilton-operátor. Ezen átmeneteknek köszönhetően az atomi dipólmomentum nem lesz megmaradó meny-

nyiség, és oszcillációja olyan magasfelharmonikus spektrumokat hoz létre, amelyek jellegükben meg-egyeznek a kísérleti eredményekkel. Megítélésünk szerint az ismertett modell általánosítható össze-tettebb atomi rendszer, vagy többmódusú mező ese-tére is.

Irodalom

1. G. Farkas, C. Tóth, *Phys. Lett. A* 168 (1992) 447.
2. M. Mentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, *Nature* 414 (2001).
3. P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, P. Agostini, *Science* 292 (2001) 1689.
4. A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. Mc-Intyre, K. Boyer, C. K. Rhodes, *J. Opt. Soc. Am. B* 4 (1987) 595.
5. M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, C. Manus, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 21 (1988) L31.
6. U. Teubner, P. Gibbon, *Rev. Mod. Phys.* 81 (2009) 445.
7. S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMau-ro, D. A. Reis, *Nat. Phys.* 7 (2011) 138.
8. S. Ghimire, D. A. Reis, *Nat. Phys.* 15 (2019) 10.
9. P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993) 1994.
10. M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, P. B. Cor-kum, *Phys. Rev. A* 49 (1994) 2117.
11. A. Gombkötő, A. Czirják, S. Varró, P. Földi, *Phys. Rev. A* 94 (2016) 013853.
12. Földi P., *Fizikai Szemle* 67 (2017) 345.
13. N. Tsatrafyllis, I. K. Kominis, I. A. Gonoskov, P. Tzallas, *Nat. Comm.* 8 (2017).
14. N. Tsatrafyllis, S. Kühn, M. Dumergue, P. Földi, S. Kahaly, E. Cormier, I. Gonoskov, B. Kiss, K. Varjú, S. Varró, P. Tzallas, *Phys. Rev. Lett.* 122 (2019) 193602.
15. J. Bergou, S. Varró, *J. Phys. A: Math. Gen.* 14 (1981) 2281.
16. J. Bergou, S. Varró, *J. Phys. A: Math. Gen.* 14 (1981) 1469.
17. A. Gombkötő, S. Varró, P. Mati, P. Földi, *Phys. Rev. A* 101 (2020) 013418.
18. J. Neumann: *Mathematische Grundlagen der Quantenmecha-nik.* Springer, Berlin, 1932.
19. T. Toyoda, K. Wildermuth, *Phys. Rev. D* 22 (1980) 2391.