

FOTOELEKTRON-HOLOGRÁFIA

Nagy László, Borbély Sándor[@]

Babeş–Bolyai Tudományegyetem, Fizika Kar, Magyar Fizika Intézet, Kolozsvár, Románia

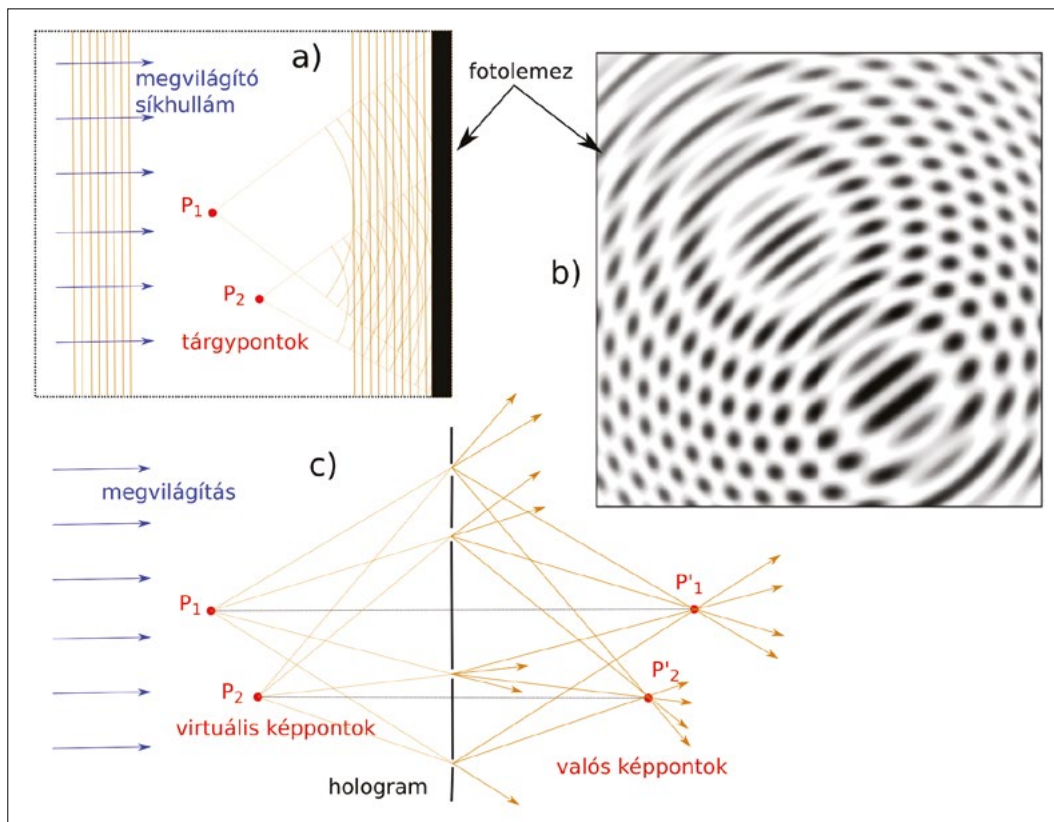
[@]E-mail: sandor.borbely@ubbcluj.ro

1. Bevezető

A hagyományos optikai leképezés során a keletkező kép felbontásának határt szab a leképező elemeken létrejövő fényelhajlás, valamint az ideálistól eltérő leképezőelemekből adódó képhibák. A fényelhajlásból eredő felbontáscsökkenés ellensúlyozható a leképezőelemek (lencsék) átmérőjének növelésével, viszont ez növeli a képhibák nagyságát, ami felbontáscsökkenéshez vezet. Egy adott leképezőrendszer esetén mindig található egy optimális méret (átmérő), amely esetén a fényelhajlásból és a szférikus aberrációból (domináns leképezési hiba) adódó hiba mértéke megegyezik. Ennél nagyobb átmérő esetén

a szférikus aberráció, míg ennél kisebb átmérő esetén a fényelhajlás rontja a keletkező kép felbontását.

Ezzel a problémával szembesült Gábor Dénes is az 1940-es évek második felében, amikor atomrácsok direkt megfigyeléséhez fejlesztett elektronmikroszkópot [1]. Optimális elektronlencse-átmérő esetén az elért legjobb felbontás 1,2 nm volt, amely közel 6-szor rosszabb volt, mint az a felbontás, ami ahhoz szükséges, hogy egy atomrács atomjai megfigyelhetőek legyenek. Ezen gyakorlati feladat megoldásán gondolkodva jött rá Gábor Dénes arra, hogy a hagyományos leképezés (fényképezés) során csak a tárgyról szóródó hullámok amplitúdója által hordozott információt rögzítjük, míg a hullám fázis-



1. ábra. Holografikus leképezés és hullámfront-rekonstrukció. Az [1] 5. ábrája alapján készített illusztráció

sában tárolt információt elveszítjük. Abban az esetben, ha a tárgyról szóródó hullám amplitúdója mellett a fázisát is rögzítjük, akkor a hagyományos leképezés felbontása javítható. Ahhoz, hogy a szórt hullám fázisát rögzíthessük, szükségünk van egy ismert referenciára, amelyet Gábor Dénes javaslata szerint egy síkhullám biztosíthat. A szórt hullám referenciahullámhoz viszonyított relatív fázisa interferencia segítségével rögzíthető egy fényérzékeny lemezen: ha a fáziskülönbség 0° , akkor a találkozó hullámok konstruktívan interferálnak, míg 180° -os fáziskülönbség esetén a destruktív interferencia jelentkezik. Az 1a. ábrán egy egyszerű, két pontból álló tárgyról szóródó hullám referenciahullámmal való találkozása látható. Az ebből keletkező interferenciaképet az 1b. ábra szemlélteti. Ezt a képet hologramnak¹ nevezzük, mivel a tárgyról érkező hullám által hordozott információt teljes mértékben rögzíti. Amint az 1b. ábrán is látható, a hologram gyakorlatban sötét (fényelnyelő) és világos (fény-

áteresztő) zónákból álló mintázat, de ha ezt a mintázatot megvilágítjuk a rögzítéskor használt referenciahullámmal, akkor a hologramon történő fényelhajlás létrehoz egy olyan hullámfrontot, amely megegyezik az eredeti tárgyról szóródó hullámfronttal (1c. ábra).

Gábor Dénes ezen ötletének értékét jelzi, hogy 1971-ben fizikai Nobel-díjjal tüntették ki a holográfia felfedezéséért. Az első hologramot és az abból végzett hullámfront-rekonstrukciót már 1948-ra sikerült Gábor Dénesnek megvalósítania, de ezen kísérletek kivitelezése nehézkes volt, mivel nem állt rendelkezésre megfelelő koherenciájú fényforrás. Ezen a lézerek 1960-ban történő felfedezése változtatott, mivel lehetővé tette a holográfiához szükséges koherens hullámok egyszerű előállítását. Ezen fejlemény lehetővé tette a holográfia robbanásszerű fejlődését, és számos területen történő alkalmazásához [2–5] vezetett. Ezek közül megemlíthetjük a holografikus adattárolást, az eredetigazoló ho-

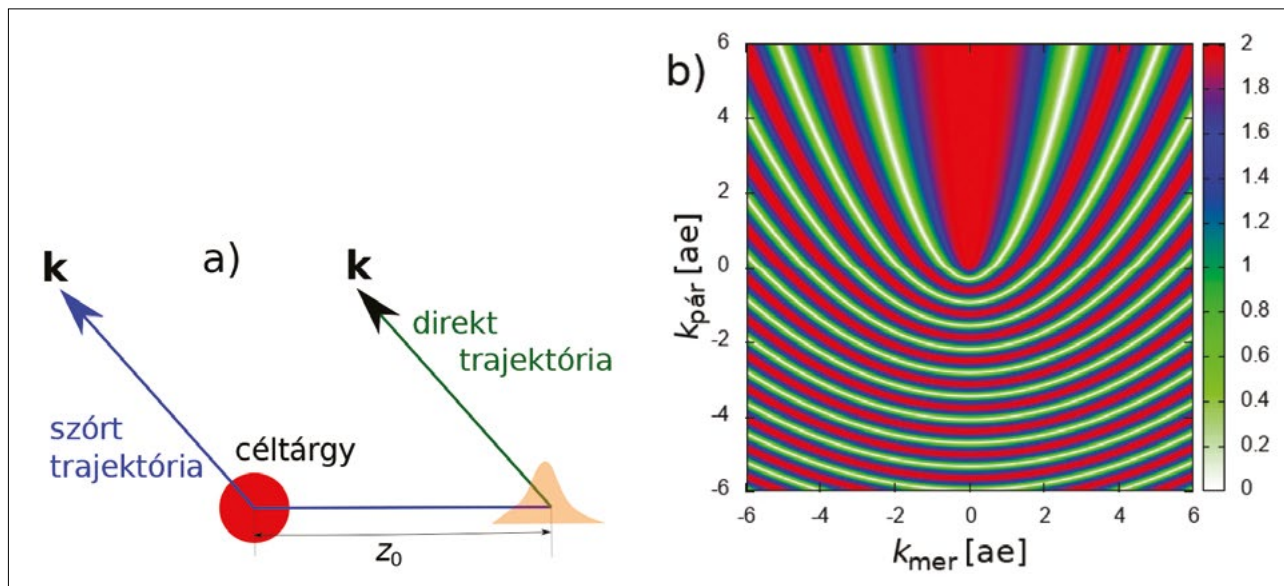
¹ holos = teljes görög nyelven.



Nagy László, fizikus, a kolozsvári Babeş-Bolyai Tudományegyetem tanára, az MTA külső tagja, a Kolozsvári Akadémiai Bizottság elnöke. Kutatási területe az elméleti atomfizika, amelyen belül elsősorban ionok, elektronok/pozitronok és fotonok atomokkal és molekulákkal való ütközését vizsgálta. Érdeklődése különösen a részecskék hullámmérszetéből származó interferenciajelenségekre terjed ki.



Borbély Sándor a Babeş-Bolyai Tudományegyetem Fizika Karának adjunktusa, dékánhelyettese. Kutatási területe az elektrondinamika elméleti vizsgálata olyan atomi rendszerekben, amelyek lézerimpulzusokkal hatnak kölcsön, vagy elektromosan töltött részecskével ütköznek.



2. ábra. Karakterisztikus elektrontrajektóriák a hullámcsomag szóródása során (a) és ezen trajektóriák interferenciájából keletkező mintázat (b)

lografikus bélyegeket, az orvosi képalkotást, a holografikus mikroszkópiát, a holográfián alapuló metrológiai eljárásokat stb.

Holográfia lézerindukált elektron-hullámcsomagokkal

Az atomok és molekulák – a továbbiakban céltárgyak – szerkezetének vizsgálatára használt módszerek egy jelentős része elektronspektroszkópián alapul. Egy elektronspektroszkópiás mérés során a vizsgálandó céltárgyat külső behatással ionizáljuk, majd mérjük a rendszerből kilépő elektronok energia és kilépési iránti eloszlását. Ez egyenértékű az ionizált atomból vagy molekulából kilépő elektronhullám amplitúdójának rögzítésével, azaz a hagyományos optikai leképezésből kölcsönzött analógiával élve, egyenértékű a céltárgy klasszikus fényképezésével. Úgy, amint a hagyományos optikai leképezés esetén is történt, az elektronspektroszkópiás mérések során a céltárgyból eredő elektronhullám fázisát nem rögzítjük.

Az első próbálkozások a céltárgyakból eredő elektronhullámok fázisának rögzítésére, kiaknázására a kétcentrumú interferencián alapultak. Ezen kísérletek során sikerült megfigyelni kétatomos molekulák ionizációjakor a molekulát alkotó atomokból származó elektron-hullámcsomagok interferenciáját [6, 7], amely az elektronokkal elvégzett Young-féle kettősítés-kísérlet [8] megfelelője atomi skálán megvalósítva.

Először 2004-ben merült fel ötletként [9], hogy ha a céltárgyról eredő elektronhullámot interferáltatjuk egy referenciahullámmal, akkor az optikai hologrammal analóg elektronhologram hozható létre. Ezen elképzelés szerint az elektronhologram több lépés után jön létre.

Első lépésben egy rövid lézerimpulzus nagy intenzitású elektromos tere ionizálja a céltárgyat, létrehozva

egy impulzustérben széles elektron-hullámcsomagot. Ez a lézert jellemző úgynevezett Keldysh-paraméter² értékétől függően történhet több foton által, alagúthatással vagy akár a potenciálgát fölötti ionizáció útján. Az elektronhoz rendelt hullámcsomag így elhagyja a céltárgyat, de az oszcilláló lézertér elektromos tere megfordul, és a hullámcsomag visszatér a céltárgy felé, és szóródik azon.

Ha a szórt hullámcsomagból kiszemelünk egy $\mathbf{k}$ hullámszámvektorral jellemzett végállapotot, akkor abba a 2a. ábrán is jelzett két karakterisztikus elektrontrajektória mentén juthatunk: a céltárgyon nem szóródott direkt trajektória mentén, valamint a céltárgyon jelentős mértékben szóródott trajektória mentén. Ezen trajektóriákhoz rendelt síkhullámok a detektorban interferálnak létrehozva a fotoelektron-hologramot. A jelentős mértékben szórt elektrontrajektória mentén az elektron fázisát nagymértékben a céltárgy potenciálja határozza meg, emiatt a létrejövő hologram információt hordoz ezen potenciálról és indirekt módon a céltárgy elektronszerkezetéről. A megjósolt hologramot kísérletileg is sikerült kimutatni a metastabil xenonatom 7 mikrométeres hullámhosszú infravörös lézer útján történő ionizációjánál [10]. A holografikus leképezés egy pókhálószerű, radiális interferenciamintázatot eredményezett.

Az atomok lézerimpulzus általi ionizációjakor létrejövő mintázatokat több elméleti csoport vizsgálta, osztályozta [11, 12]. Mi a tanulmányainkban elsősorban arra fókuszáltunk, hogy hogyan épülnek fel időben az interferenciamintázatok, hogyan függenek a lézerimpulzus paramétereitől (intenzitás, frekvencia), illetve az atom típusa (a szóró potenciál) milyen módon befolyásolja a hologramot.

² A Keldysh-paraméter megadja az elektron-atommag és elektron-lézertér kölcsönhatások nagyságainak arányát.

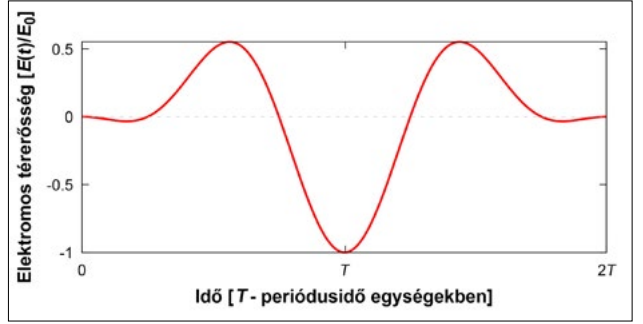
A legtöbb számításunkat a legegyszerűbb atomra, a hidrogénatomra végeztük. A módszerünk az időtől függő Schrödinger-egyenlet numerikus megoldásán alapul, amit egy elektronra nagy pontossággal el tudunk végezni. Az elektron az atommag és a lézertér kombinált terében mozog. A lézerimpulzus megszűnte után a megfelelően hosszú ideig propagált hullámfüggvényből számoljuk³ egy adott végállapotba való átmenet valószínűségét. A számítást az elektron végső impulzusának minden lehetséges értékére elvégezve az impulzustérben egy interferenciamintázatot kapunk, ami hologramnak tekinthető.

Mielőtt rátérnénk a számításaink eredményeinek bemutatására, egy egyszerű modell segítségével illusztráljuk, hogyan jön létre a hologram, és elsősorban mitől függ az interferenciamintázat sűrűsége. Ezt a modellt először a [10] cikkben mutatták be, és a mi csoportunk is használta az eredmények minőségi elemzésében [13]. Amint a 2a. ábrán látható, a direkt és a szórt sugarak közötti interferencia a két útvonal közötti útkülönbségtől függ. Ha a céltárgyat egy egyszerű szórópontnak tekintjük (csak az elektrontrajektória irányát módosítja) akkor az útkülönbséget a szórási szögön kívül az a z_0 távolság határozza meg, amelyre az elektronhoz rendelt hullámcsomag eltávolodik az atomtól a visszatérítés előtt. Az eredő hullám intenzitását a következőképpen írhatjuk fel:

$$I(\mathbf{k}) \sim |1 + e^{iz_0(k-k_z)}|, \quad (1)$$

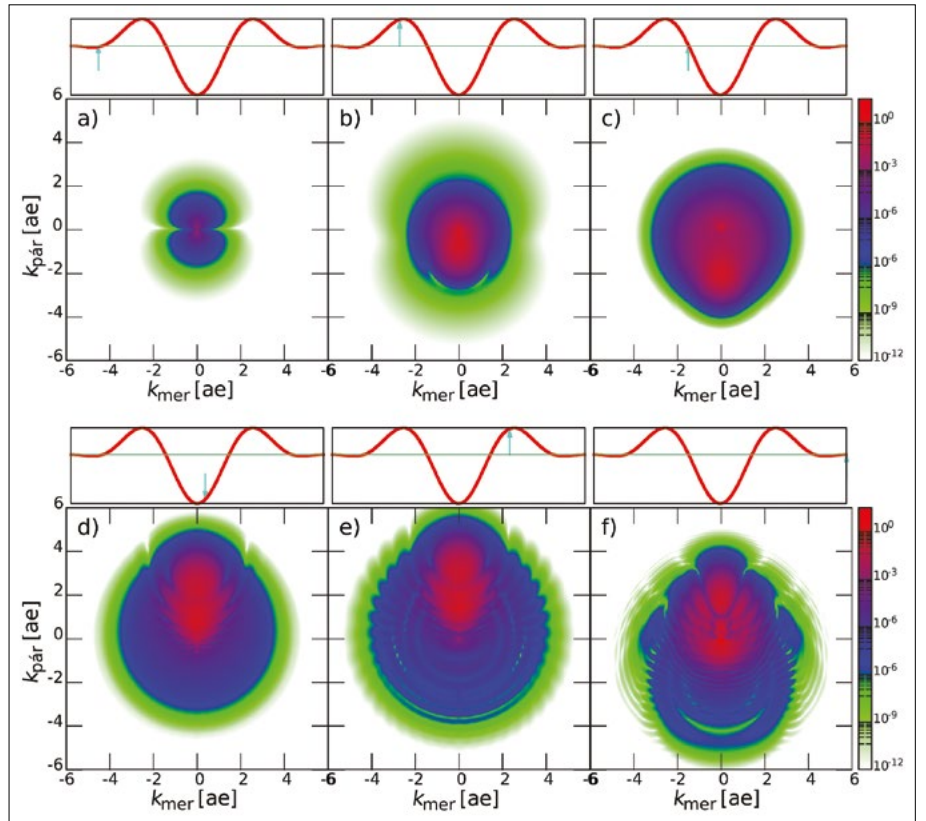
ahol k a hullámszám és k_z annak az elektromos térerősséggel párhuzamos komponense. Ebben az egyszerű modellben a $\mathbf{k}$ irányai szerinti térbeli intenzitáseloszlás egy interferenciaképet ír le, amit csak a z_0 távolság határoz meg, ez látható a 2. ábrán $z_0 = 5 \text{ ae}$ esetére.

Számításainkban egy két ciklusból álló, a távoli ibolyántúli tartományba eső ultrarövid lézerimpulzust használtunk (3. ábra). Az időtől függő Schrödinger-egyenlet megoldásán alapuló módszernek az az előnye, hogy a kapott hullámfüggvényt a lézerimpulzus bármelyik pillanatában vetíthetjük a végállapotai saját-



3. ábra. A lézerimpulzus elektromos térerősségvektora az idő függvényében

függvényekre, megkapva a szabadelektron-eloszlást, amelyen keresztül figyelemmel követhetjük az interferenciamintázat időben történő kialakulását. A 4. ábrán ezen eloszlást ábrázoltuk a lézerimpulzus különböző időpillanataiban. Az első, kis intenzitású maximum csak egyfotonos ionizációt eredményez, és a kilökött elektron impulzusára a jól ismert dipól eloszlás jellemző (4a. ábra). A következő, intenzív félhullám már közel 1-es valószínűséggel ionizálja az atomot, és az elektronhullámot



4. ábra. A szabadelektron-eloszlásfüggvény a lézertérre merőleges (k_{mer}) és az azzal párhuzamos (k_{par}) impulzuskomponensek függvényében különböző időpillanatokban. Az időpillanatokot a lézerimpulzuson nyilakkal jelöltük

³ Vetítve a propagált hullámfüggvényt a végállapotot leíró hullámfüggvényre, ami a visszamaradt ion terében számolt folytonos szabadelektron-sajátfüggvény.

⁴ $\text{ae} = \text{atomi egység}$, távolság esetén az 1 ae megegyezik a Bohr-sugárral (Bohr-modell alapállapotbeli elektronpályájának sugara H-atom esetén).

eltávolítja a magtól (4b., c. ábra). Itt még nyoma sincs az interferenciának. Miután az elektromos tér iránya megfordul (4d. ábra), az elektronhoz rendelt hullámcsomag visszafordul az atom felé, szóródik azon. A direkt hullámmal való interferencia immár láthatóvá válik. A léze-

rimpulzus további hullámai (4e., f. ábra) valamennyire még módosítják az interferenciámintázatot, és kialakul a végső impulzuseloszlás, ami a távozó elektront jellemzi.

3. Hologram függése a lézertér paramétereitől

Részletesen vizsgáltuk, hogyan függ az impulzustérben kapott hologram a lézertér paramétereitől, mint az intenzitás és a körfrekvencia. Amint az előbb tárgyalt egyszerű modell alapján láttuk, a radiális interferenciacsíkok sűrűsége elsősorban attól a z_0 távolságtól függ, amennyire az elektron eltávolodik a magtól. Minél nagyobb ez a távolság, annál nagyobb lesz az interferenciacsíkok sűrűsége – amint az (1) képletből következik. A z_0 nyilván nő a lézerimpulzus intenzitásával, és csökken a frekvencia növekedésével, mert akkor kevesebb ideje van a lézertérnek gyorsítani és az atommagtól távolítani az elektront. Az 5. ábrán állandó frekvencia és csökkenő maximális elektromos tér mellett ábrázoltuk a kapott hologramot. Amint jól követhető, az interferenciacsíkok sűrűsége is egyre csökken az elektromos tér intenzitásával együtt.

A z_0 távolság attól is függ, hogy mennyi ideig távolodik a kilökött elektron a magtól a visszatérítés előtt, ami nyilván a lézerimpulzus periódusával arányos. A 6. ábrán olyan eseteket ábrázoltunk, amelyekre az impulzusátadás (ami az elektromos térerősség és a félperiódus szorzatával arányos) ugyanakkora, ezért az

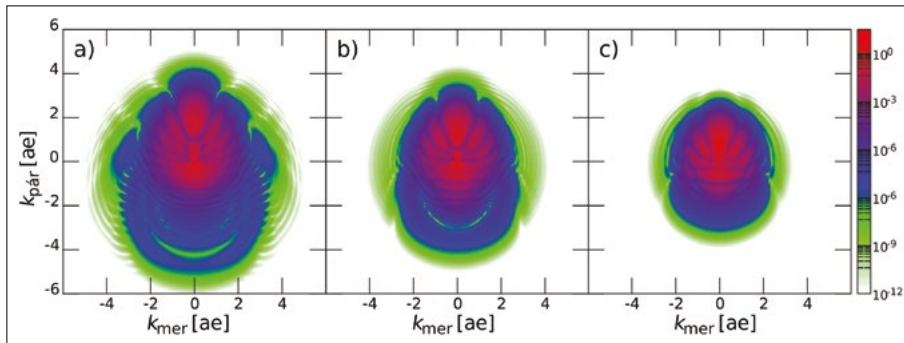
elektron mindhárom esetben ugyanakkora kezdősebességgel távolodik az atomtól. A z_0 így a lézerimpulzus félperiódusával (a távolodási idővel) lesz arányos, tehát az interferenciacsíkok a körfrekvencia csökkenésével sűrűsödnek.

Bár az (1) képleten alapuló egyszerű modell minőségileg helyesen írja le ezeket a függéseket, az időtől függő Schrödinger-egyenlet megoldásán alapuló módszerünk sokkal részletgazdagabb hologramot eredményez, mint a 2b. ábrán látható. Ennek több oka van, az egyik az elektronhoz rendelt hullámcsomag kiterjedése. A másik az, hogy a kétciklusú lézerimpulzus kétszer is oda-vissza mozgatja a hullámcsomagot, így a különböző időpillanatokban távozó elektronhullámok között is létrejöhet az interferencia. A harmadik ok pedig, amivel a következő fejezetben foglalkozunk, a szóró potenciál alakja, ami az ionizált atom típusától függ.

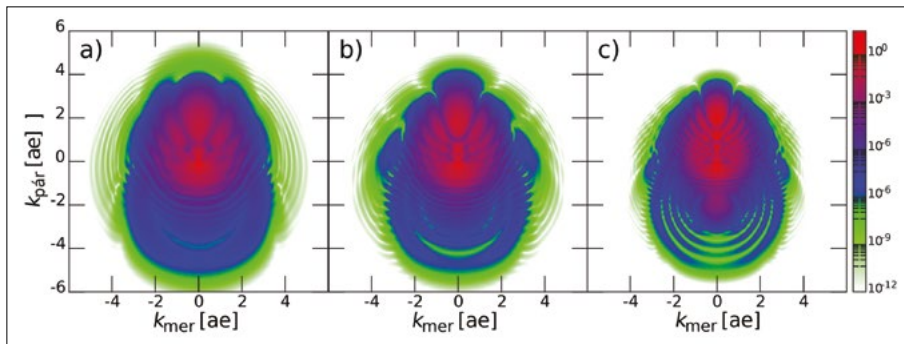
4. A hologram függése a célatomtól

A hidrogénatomon kívül számításokat végeztünk más atomokra is: a héliumra, neonra és az argonra [14]. A Schrödinger-egyenletet többelektronos atomok esetén is a csak egy, az aktív, távozó elektronra oldottuk meg, amely az atommag és a többi elektron átlagolt terében mozog. A visszamaradt atomok potenciáljai különböznek mind a hozzájuk tartozó ionizációs energiában, mind alakban. Mindkét jellemző tulajdonság hologramra gyakorolt hatását vizsgáltuk. Az ionizációs potenciál elsősorban az ionizáció valószínűségét befolyásolja. Ugyanakkor azt észleltük [14], hogy a magasabb ionizációs potenciállal jellemzett atomok esetében (hélium, neon) az interferenciakép komplexebb, mint a másik két atom esetében.

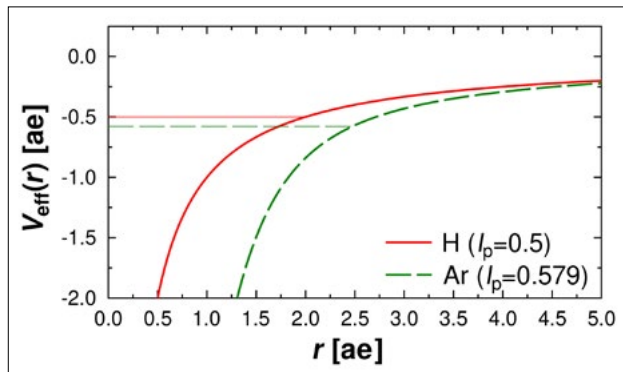
Annak érdekében, hogy a potenciál alakjának a hologramra gyakorolt közvetlen hatását vizsgáljuk, két olyan atomra – a hidrogénre és az argonra – hasonlítottuk össze a kapott hologramokat, amelyekre az ionizációs potenciál közel azonos (7. ábra). Ennek következtében az adott lézertér-paraméterek esetén a keletkező szabadelektron-hullámcsomagok nagysága és az általuk követett térbeli trajektória nagyon hasonló lesz. Ezt igazolja a 8. ábra is, ahol megfigyelhető, hogy a két célatom esetén a teljes ionizációs valószínűség (azaz a keletkező szabadelektron hullámcsomag



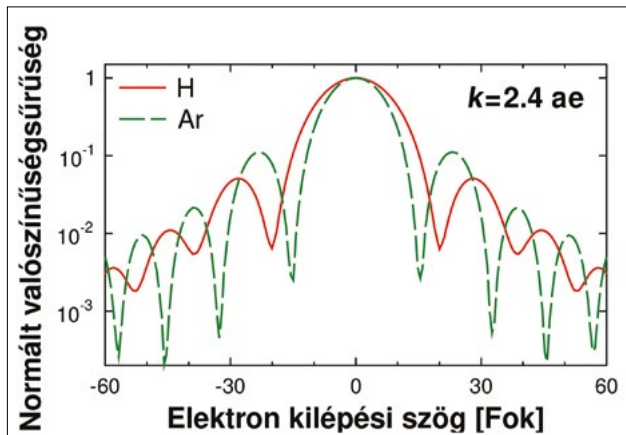
5. ábra. A szabadelektron-eloszlásfüggvény a lézertérre merőleges (k_{mer}) és az azzal párhuzamos (k_{par}) impulzuskomponensek függvényében rögzített körfrekvencia esetén, különböző intenzitásokra: a) $E_0 = 1$ ae; b) $E_0 = 0,75$ ae; c) $E_0 = 0,5$ ae



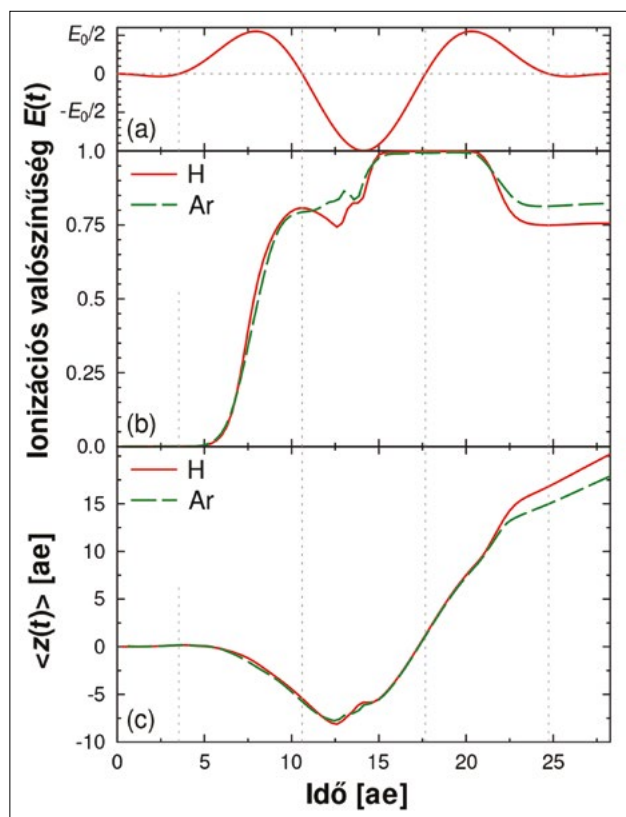
6. ábra. A szabadelektron-eloszlásfüggvény különböző körfrekvencia- és intenzitásértékekre: a) $E_0 = 1$, $\omega = 0,66$ ae; b) $E_0 = 1$ ae, $\omega = 0,44$ ae; c) $E_0 = 0,5$ ae, $\omega = 0,22$ ae



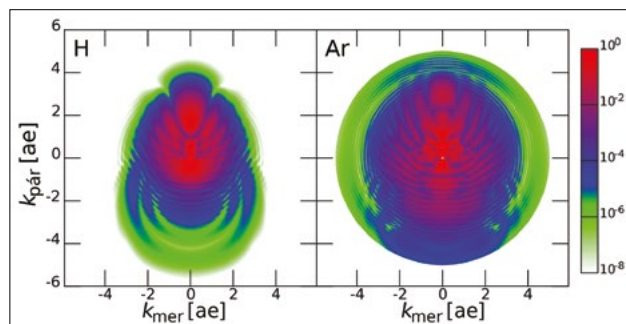
7. ábra. A hidrogénatom és a modell-argonatom effektív potenciálja a távolság függvényében. A vízszintes vonalak jelölik mindkét atom esetén az alapállapot energianívóját



10. ábra. Az elektronok kilépési valószínűsége a kilépési szög függvényében rögzített elektronimpulzus esetén



8. ábra. A lézertér (a), a teljes ionizációs valószínűség (b) és a z koordináta várható értéke (c) az idő függvényében



9. ábra. A szabadelektron-eloszlásfüggvény a hidrogén és az argon célatomok esetén. A lézertér paramétereit a két esetben azonosak: $E_0 = 1$ ae, $\omega = 0,44$ ae

nagysága) és a z koordináta várható értéke (azaz a szabadelektron-hullámcsomag közepének helyzete) az idő függvényében hasonlóan változik. Mivel a két célatom esetén az elektron-ion kölcsönhatási potenciál nagy távolságokra megegyezik, a direkt trajektória ($r > 5$ ae) menti fázisok megegyeznek. Ezzel ellentétben, a szórt trajektória ($r \sim 1$ ae) mentén az Ar-atom potenciálja lényegesen mélyebb, így a rajta haladó elektron sebessége és fázisa nagyobb lesz. Emiatt a direkt és a szórt trajektória közötti fáziskülönbség az Ar-atom esetén nagyobb lesz, és ennek egyenes következménye, hogy a elektron kilépési irányát változtatva az Ar-atom esetén a konstruktív és a destruktív interferencia gyorsabban fogja egymást váltani, azaz a keletkező hologram sűrűbb lesz. Ezen egyszerű gondolatmenet következtetéseit támasztják alá a 9. ábrán látható hologramok, amelyek esetén megfigyelhető, hogy az Ar célatom esetén az interferenciamentázat sűrűbb. Ez a sűrűségi különbség még nyilvánvalóbb a 10. ábrán, ahol az elektronok kilépési valószínűsége látható a kilépési szög függvényében rögzített ($k = 2,4$ ae) elektronimpulzus esetén.

5. Kitekintés

Az ultrarövid lézerimpulzusok keltése és ezek kölcsönhatása az atomokkal és molekulákkal ma a tudományos kutatás frontvonalába tartoznak. Bizonyítja ezt többek között a 2023-as fizikai Nobel-díj, amit az attoszekundumos lézer-impulzusok kísérleti megvalósításáért ítéltek oda, ami lehetővé teszi az anyagban az elektrondinamika vizsgálatát. Egyre több kutatóintézet fejleszt ki azokat a technológiákat, melyekkel az ultrarövid lézerimpulzusok és az anyag kölcsönhatásai vizsgálhatók, ezek egyik zászlóshajója a szegedi ELI ALPS intézet. A mi elméleti vizsgálódásunk is ebbe a trendbe illeszkedik. Egyrészt az időtől függő Schrödinger-egyenlet numerikus megoldásával reprodukálni tudjuk azokat a hologramjellegű interferenciamentázatokat, amelyek az atomok vagy molekulák ionizációjakor mutathatók ki az elektronspektrumban. Ezek a mintázatok tartalmazzák a céltárgy potenciáljára,

az elektronorbitálok alakjára vonatkozó információkat. Másrészt érdekes feladat a jövőre nézve a fordított művelet elvégzése, vagyis hogy adott hologram elemzéséből következtessünk az atomi vagy molekuláris potenciál alakjára. Ahogy az optikai hologramból rekonstruálható a háromdimenziós tárgy, úgy az elektronhullámok hologramjából is meghatározható elvileg az atomi vagy molekuláris orbitál, ami létrehozza a szóró potenciált. A fontos különbség az, hogy míg a makroszkopikus esetben egy adott tárgy képét rekonstruáljuk, az atomi hologramok esetében sok atomról vagy molekuláról szóródott hullámok átlagát tudják csak detektálni. Így a céltárgyak véletlenszerű elrendeződése esetén mindig gömbszimmetrikus potenciált és neki megfelelő orbitált kapunk. Ahhoz, hogy molekulák esetén az orbitálokat rekonstruálhassuk, olyan hologramra van szükség, amit meghatározott irányba beálló molekulákról készítettek.

Hivatkozások

1. Gábor Dénes: Holográfia 1948–1971. *Fizikai Szemle*, 2000/6, 181.
2. Gombkötő Balázs, Kornis János: Digitális holográfia. *Fizikai Szemle*, 2011/12, 422.
3. Bányász István: Tökéletlen holográfia. *Fizikai Szemle*, 2021/12, 409.
4. Horváth Zoltán György: A magyar kézműves holográfia hősköra. 1. rész: *Fizikai Szemle*, 2017/9, 295.; 2. rész: *Fizikai Szemle*, 2017/10, 355.
5. <https://fizipedia.bme.hu/index.php/Holográfia>
6. Stolterfoht N. et al. (2001): Evidence for interference effects in electron emission from H_2 colliding with 60 MeV/u Kr^{34+} ions. *Physical Review Letter*, 87, 023201.
7. Nagy L., Kocbach L., Póra L., Hansen J. P. (2002): Interference effects in the ionization of H_2 by fast charged projectiles. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 35, L453.
8. Tonomura A., et al. (1989): Demonstration of single-electron buildup of an interference pattern. *American Journal of Physics*, 57, 117.
9. Spanner M., Smirnova O., Corkum P., Ivanov M. Y. (2004): Reading diffraction images in strong field ionization of diatomic molecules. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 37, L243.
10. Huismans Y., et al. (2011): Time-resolved holography with photoelectrons. *Science*, 331, 61.
11. Figueira de Morisson Faria C., Maxwell A. S. (2020): It is all about phases: ultrafast holographic photoelectron imaging. *Reports on Progress in Physics*, 83, 034401.
12. Bian X. B., et al. (2011): Subcycle interference dynamics of time-resolved photoelectron holography with midinfrared laser pulses. *Physical Review A*, 84, 043420.
13. Borbély S., Tóth A., Tőkési K., Nagy L. (2013): Spatial and temporal interference during the ionization of H by few-cycle XUV laser pulses. *Physical Review A*, 87, 013405.
14. Borbély S., Tóth A., Arbó D. G., Tőkési K., Nagy L. (2019): Photoelectron holography of atomic targets. *Physical Review A* 99, 013413.