

# PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola

Nemlineáris optika és spektroszkópia program

## **Ultrarövid lézerpulzusok által keltett plazmonikus fotoemisszió és elektrongyorsítás vizsgálata**

PhD értekezés

**Márton István**

Témavezető:

**Dr. Dombi Péter**

tudományos főmunkatárs

**MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont**



**Pécs, 2017**

# 1. Bevezetés és célkitűzés

A lézerfizika fejlődésével megjelentek az impulzusüzemű lézerek. Egyes technikák alkalmazásával (fázismodulált impulzuserősítés [1,2]), valamint szélessávú lézerközegek (festékek, titán-zafír [3]) és diszperziókompenzáló eszközök segítségével [4-6], lehetővé vált a lézerimpulzus csúcsintenzitásának jelentős megnövelése. A legrövidebb lézerimpulzusok tekintetében lehetőség nyílt az ún. vivő-burkoló fázis (carrier-envelope phase) szabályozására, illetve mérésére is [7].

A fentiek alapján nem meglepő azoknak az alapkutatói felfedezéseknek a sora, amiket egyre rövidebb impulzusú lézerek tettek lehetővé. Az ultrarövid lézerimpulzusok által megvalósítható nagy időbeli felbontást kihasználva jöhetett létre a femtokémia [8],

vagy az attofizika [9] tudománya is, valamint jelentős kutatási területté nőtte ki magát a fény-anyag kölcsönhatási folyamatok legkülönbözőbb fajtáinak vizsgálata, melynek köszönhetően jelentősen bővültek például a fémfelületi fotoemisszióval kapcsolatos ismeretek is [10-15].

Mind az alap kutatás, mind a lehetséges alkalmazások szempontjából érdekesek a felületi plazmonokkal kapcsolatos kutatások is [16]. A felületi plazmon a fém vezetési elektronjainak felület mentén létrejövő töltéssűrűség oszcillációja. A felületi plazmonokhoz kapcsolódó evaneszcens elektromágneses tér jelentősen nagyobb lehet, mint a megvilágító fény elektromágneses tere [16], és ez a térnövekmény nagy mértékben befolyásolja a fotoemisszió [17-19], és az így nyert elektroncsomag tulajdonságait [20-23].

Az ezen disszertáció keretében elvégzett kutatások is a plazmonikus fotoemisszió alapvető, eddig nem ismert tulajdonságait hivatottak vizsgálni. Kutatásaim során kísérletekkel, illetve modellszámítások eredményeit is felhasználva célul tűztem ki a felületi érdesség hatásának megismerését a plazmonikusan keltett fotoáramra és a plazmontérben gyorsított elektronokra vonatkozóan. Célul tűztem ki továbbá a nanorészecskékről történő, a vivő-burkoló fázistól függő fotoemisszió tulajdonságainak vizsgálatát plazmonikusan rezonáns, illetve nemrezonáns esetben is modellszámítások eredményeinek felhasználásával. Továbbá célul tűztem ki a nanorészecskék közelében történő elektrongyorsítás, valamint a keltett THz-es sugárzás közti kapcsolat megértését is.

## 2. Alkalmazott módszerek

A kísérletekhez, felületi plazmonok keltéséhez két femtoszekundumos fényforrást használtam fel: egy regeneratív lézerezősítő-rendszert, illetve egy hosszú rezonátoros lézerezoscillátort, mely eszközök az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpontban álltak a rendelkezésemre. A regeneratív lézerezősítő kimenetén 1 kHz ismétlési frekvenciával, 795 nm központi hullámhossz mellett, 4 W teljesítménnyel üzemelt, az általa biztosított impulzushossz  $40 (\pm 5)$  fs, az impulzusenergia pedig 4 mJ volt.

A hosszú rezonátoros lézerezoscillátor körüljárási hossza 80 m volt, ami módusszinkronizált működés mellett 3,6 MHz ismétlési frekvenciát tesz lehetővé. Az így kialakuló lézerimpulzusok energiája 220 nJ, impulzushossza az impulzusösszenyomó rácok

alkalmazásával kb. 95-110 fs-nak felel meg. Ebben az esetben szükséges volt továbbá egy elektrooptikai alapon működő impulzuskivágót is alkalmazni, elkerülendő az elektronok detektálása során azok átlapolódását, vagyis azt, hogy az egyik impulzus által keltett lassú elektronokat ne a következő impulzus által keltett gyors elektronokként detektáljuk.

A keletkező fotoemittált elektronnyaláb tulajdonságait egy repülési idő elektronspektrométerrel mértem, melyhez rendelkezésemre álltak a gyártótól származó kalibrációs görbék az elektrooptika különböző feszültségbeállításaira vonatkozóan. A megfelelő feszültségérték kombinációkkal az elektronok begyűjtési térszögének növelése érhető el, míg a műszer driftcsövére kapcsolt feszültség az elektronok keletkezése és detektálása közti időt csökkenti, mely egy újabb

módszert ad a kezünkbe az elektronok átlapolódásának megakadályozásához.

A lokalizált felületi plazmonok által létrehozott elektronemisszió és gyorsítás tulajdonságainak megértéséhez nélkülözhetetlen volt a megfelelő fotoemissziós és elektrongyorsítási modell megalkotása, valamint számítások segítségével a megfelelő következtetések levonása. A modellezési eljárás lényege, hogy kvázisztatikus esetben a potenciálra vonatkozó Laplace egyenlet egzaktul megoldható ellipszoid esetén is [24], mely lehetővé teszi ellipszoidális nanorészecskék polarizálhatóságának analitikus megadását, ezáltal meg lehet határozni a nanoellipszoidon kialakult elektromos térerősségeket. Ebből egy megfelelően megválasztott fotoemissziós modell segítségével kiszámolható az ellipszoid adott részén létrejövő fotoemissziós

valószínűség. Ennek során a részecske felületét megfelelő számú tartományra kell felbontani, mégpedig olyan tartományokra, amelyeken belül a térerősség, és ezáltal a fotoemissziós valószínűség is állandónak vehető. A fotoemittált elektronok későbbi trajektóriái a klasszikus Lorentz-egyenletből meghatározhatók, melyből következtethetünk az elektronnyalábok egyes tulajdonságaira, az elektronspektrumokra, valamint a vivő-burkoló fázistól függő tulajdonságokra.

A kutatásaim során továbbá megvizsgáltam a plazmonikus elektrongyorsítás THz-es sugárzás keltésében játszott szerepét. Ehhez szükség volt mind a THz-es jel, mind a fotoemittált elektronok alkalmazott lézerintenzitásától való függésének kimérésére, valamint összehasonlítására. A fotoáram intenzitásfüggő tulajdonságainak mérését a repülési idő spektrométerrel



hajtottam végre, míg a THz-es jel intenzitástól való függését az együttműködő külföldi kutatócsoport végezte el ugyanazokon a mintákon. A kísérlet kivitelezése a THz-es technológiában megszokott elektrooptikai mintavételezéssel történt, ZnTe kristály segítségével [25,26]. A kristályra érkező THz-es jel és lézernyaláb egymáshoz képest történő kiséltetésével rekonstruálható a THz-es jel időbeli lefutása, valamint Fourier transzformációval meghatározható a spektrális jelalak is.

### **3. Tézisek**

A fenti módszerek alkalmazásával a kísérleteim és a modellszámítások során olyan új tudományos eredményeket értem el, melyek alapján a következőket állapítottam meg.

- 1.** Elektronspektroszkópai méréseket végeztem különböző felületi érdességgel rendelkező mintákról

emittált fotoelektronokon, melyekkel a plazmonikusan keltett és gyorsított elektronnyaláb felületi érdességtől való függését vizsgáltam. A kísérleteim során nagy energiájú, a fotonenergiát több tízszeresen meghaladó kinetikus energiával rendelkező elektronokat detektáltam. Az elektronspektrumok nagyenergiás végének kitolódását az érdes felület mentén nm-es skálán modulált, lokális ponderomotoros potenciál hozza létre, mely a fotoemittált elektronokra a kilépés helyétől függően más-más hatást gyakorol. A spektrumokra jellemző nagy levágási energiát tehát a felület viszonylag kevés ún. forró pontjából származó elektron okozza. Továbbá kísérleteimmel azt is kimutattam, hogy a felületi érdesség mértéke és az elektronspektrumok maximális kinetikus energiája között nem triviális, nem monoton

összefüggés áll fenn, ami a probléma további, numerikus elemzését igényli. [F1]

2. Modellszámítások segítségével megmutattam, hogy az érdes felületekről történő, felületi plazmonos elektrongyorsítás folyamatát a haladó és a lokalizált plazmonok csatolása határozza meg. Az általam alkotott modellben a felületi érdesség hatása jól közelíthető a felületre helyezett, megfelelő méreteloszlású nanoellipsoidokkal. A számítások segítségével igazolást nyert, hogy az ilyen felületi szemcsék plazmonrezonanciája határozza meg a mért elektronspektrumoknál észlelhető maximális elektronenergiát. [F1]

3. Modellszámítások segítségével igazoltam, hogy izolált plazmonikus nanorészecskékről történő fotoemisszió és elektrongyorsítás bal-jobb aszimmetriája

felhasználható kevés ciklusú lézerimpulzusok vivő-burkoló fázisának meghatározására, amennyiben a lézerimpulzus központi frekvenciájától kellően távoli rezonanciával rendelkező nanorészecskéket tekintünk. Ellenben rezonáns nanorészecskék esetén a plazmonrezonancia sávszélességének korlátozott volta a vivő-burkoló fázishatást elmossa. [F2]

**4.** Kísérleteimmel bebizonyítottam, hogy a nanostrukturált mintákon ultrarövid lézerimpulzusok segítségével kelthető terahertzes sugárzást a fotoemittált, plazmontérben gyorsuló elektronok határozzák meg egy bizonyos értéket meghaladó lézer-csúcsintenzitás esetén. Az alkalmazott intenzitás szempontjából kritikus értéknek kb.  $15 \text{ GW/cm}^2$  bizonyult, amely felett a fotoáram skálázása jó egyezést mutat a THz-es sugárzásával, míg ezen érték alatt jelentős eltérések

tapasztalhatók. Így rámutattam a nanostruktúrák segítségével létrehozott látható-THz frekvenciakonverzió különböző keltési mechanizmusaira. [F3]

## **4. Saját publikációk:**

**Az értekezés témakörében megjelent**

**folyóiratpublikációk:**

[F1] **I. Márton**, V. Ayadi, P. Rácz, T. Stefaniuk, P. Wróbel, P. Földi, P. Dombi: Ultrafast Plasmonic Electron Emission from Ag Nanolayers with Different Roughness, *Plasmonics*, 11, 811 (2016)

[F2] P. Földi, **I. Márton**, N. Német, V. Ayadi, and P. Dombi: Few-cycle plasmon oscillations controlling photoemission from metal nanoparticles, *Applied Physics Letters*, 106, 013111 (2015)

[F3] D. K. Polyushkin, **I. Márton**, P. Rácz, P. Dombi, E. Hendry, W. L. Barnes: Mechanisms of THz generation from silver nanoparticle and nanohole arrays illuminated by 100 fs pulses of infrared light, Physical Review B, 89, 125426 (2014)

## **Az értekezés témakörében megjelent konferenciaabsztrakt**

[K1] P. Földi, **I. Márton**, N. Német, P. Dombi: Fém nanorészecskék fotoemissziójának kontrollja rövid, plazmonikusan erősített lézerimpulzusokkal In: P. Ádám, G. Almási (szerk.) Kvantumelektronika 2014: VII. Szimpózium a hazai kvantumelektronikai kutatások eredményeiről, Budapest, Magyarország, 28. November 2014. Pécs: Pécsi Tudományegyetem, TTK Fizikai Intézet, 2014. Paper P35. (ISBN:978-963-642-697-2)

## **Az eljárás témakörén kívül megjelent**

### **folyóiratpublikációk:**

[F4] P. Rácz, Zs. Pápa, **I Márton**, J. Budai, P. Wróbel, T. Stefaniuk, C. Prietl, J. R. Krenn, P. Dombi: Measurement of Nanoplasmonic Field Enhancement with Ultrafast Photoemission, *Nano Letters*, **2017**, 17 p 1181–1186.

[F5] M. Aladi, J. Bakos, I.F. Barna, A. Czitrovszky, G. Djotyan, P. Dombi, D. Dzsotjan, I. Földes, G. Hamar, P. Ignác, M. Kedves, A. Kerekes, P. Lévai, **I. Márton**, A. Nagy, D. Oszetzky, M. Pocsai, P. Rácz, B. Ráczkevi, J. Szigeti, Zs. Sörlei, R. Szipöcs, D. Varga, K. Varga-Umbrich, S. Varró, L. Vámos, Gy. Vesztergombi: Pre-excitation studies for rubidium-plasma generation, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **2014**, 740, p. 203-207

[F6] M. Aladi, **I. Márton**, P. Rácz, P. Dombi, I.B. Földes: High harmonic generation and ionization effects in cluster targets, High Power Laser Science and Engineering, **2014**, 2, e32

[F7] P. Dombi, A. Hörl, P. Rácz, **I. Márton**, A. Trügler, J. R. Krenn, U. Hohenester: Ultrafast Strong-Field Photoemission from Plasmonic Nanoparticles, Nano Letters, **2013**, 13, p. 674-678.



## 6. Irodalomjegyzék

- [1] D. Strickland and G. Mourou, *Optics Communications* **56**, 219 (1985).
- [2] S. Backus, C. G. Durfee, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Review of Scientific Instruments* **69**, 1207 (1998).
- [3] O. Svelto, *Principles of Lasers* (Springer US, 2010).
- [4] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, *Opt. Lett.* **9**, 150 (1984).
- [5] R. L. Fork, C. H. B. Cruz, P. C. Becker, and C. V. Shank, *Opt. Lett.* **12**, 483 (1987).
- [6] A. Stingl, R. Szipöcs, M. Lenzner, C. Spielmann, and F. Krausz, *Opt. Lett.* **20**, 602 (1995).
- [7] S. T. Cundiff, *Journal of Physics D: Applied Physics* **35**, R43 (2002).

- [8] A. H. Zewail, *Science* **242**, 1645 (1988).
- [9] P. B. Corkum and F. Krausz, *Nature Physics* **3**, 381 (2007).
- [10] M. Schenk, M. Krüger, and P. Hommelhoff, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257601 (2010).
- [11] G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde, and C. Ropers, *Nature* **483**, 190 (2012).
- [12] R. Bormann, M. Gulde, A. Weismann, S. V. Yalunin, and C. Ropers, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 147601 (2010).
- [13] M. Krüger, M. Schenk, and P. Hommelhoff, *Nature* **475**, 78 (2011).
- [14] A. Apolonski *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 073902 (2004).
- [15] P. Dombi *et al.*, *New Journal of Physics* **6**, 39 (2004).

- [16] H. Raether, *Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings* (Springer, 1988).
- [17] T. Tsang, T. Srinivasan-Rao, and J. Fischer, *Opt. Lett.* **15**, 866 (1990).
- [18] T. Tsang, T. Srinivasan-Rao, and J. Fischer, *Phys. Rev. B* **43**, 8870 (1991).
- [19] H. Chen, J. Boneberg, and P. Leiderer, *Phys. Rev. B* **47**, 9956 (1993).
- [20] J. Zawadzka, D. A. Jaroszynski, J. J. Carey, and K. Wynne, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **445**, 324 (2000).
- [21] J. Zawadzka, D. A. Jaroszynski, J. J. Carey, and K. Wynne, *Applied Physics Letters* **79**, 2130 (2001).
- [22] J. Kupersztych, P. Monchicourt, and M. Raynaud, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5180 (2001).

- [23] S. E. Irvine, A. Dechant, and A. Y. Elezzabi, Phys. Rev. Lett. **93**, 184801 (2004).
- [24] C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles* (Wiley, 1983).
- [25] D. K. Polyushkin, E. Hendry, E. K. Stone, and W. L. Barnes, Nano Letters **11**, 4718 (2011).
- [26] D. K. Polyushkin, I. Márton, P. Rácz, P. Dombi, E. Hendry, and W. L. Barnes, Phys. Rev. B **89**, 125426 (2014).