

Jana Preclíková; Martin Kozák

Nobelova cena za fyziku 2023 - výprava do světa attosekund

Pokroky matematiky, fyziky a astronomie, Vol. 69 (2024), No. 1, 1–14

Persistent URL: <http://dml.cz/dmlcz/152318>

Terms of use:

© Jednota českých matematiků a fyziků, 2024

Institute of Mathematics of the Czech Academy of Sciences provides access to digitized documents strictly for personal use. Each copy of any part of this document must contain these *Terms of use*.



This document has been digitized, optimized for electronic delivery and stamped with digital signature within the project *DML-CZ: The Czech Digital Mathematics Library*
<http://dml.cz>

Nobelova cena za fyziku 2023 – výprava do světa attosekund

Jana Preclíková, Martin Kozák

Abstrakt. V roce 2023 byla Nobelova cena za fyziku udělena třem významným osobnostem v oblasti attosekundové fyziky. Článek shrnuje základy tohoto vědního oboru, jehož cílem je zachytit nejrychlejší jevy související s dynamikou elektronů v atomech, molekulách a pevných látkách.

Rychlost pohybujících se předmětů souvisí s jejich hmotností – čím těžší je objekt, tím déle trvá změnit rychlost jeho pohybu. Ve světě elektronů v atomech a molekulách se pohyby odehrávají během několika desítek attosekund, přičemž attosekunda je tak krátká, že do jedné sekundy se jich vejde tolik, kolik bylo sekund od zrození vesmíru. Experimenty laureátů letošní Nobelovy ceny za fyziku umožnily vytvořit záblesky světla tak krátké, že jsou měřeny v attosekundách, čímž umožňují snímat videa procesů odehrávajících se uvnitř atomů a molekul. V roce 1987 Anne L’Huillier objevila, že když intenzivní infračervené laserové světlo projde přes vzácný plyn, vznikne mnoho světelných vln na různých frekvencích. Každá generovaná vlna obsahuje celočíselný počet kmitů na jednu periodu laserového světla. Vlny vznikají interakcí laserového světla s atomy v plynu; elektrony vytržené z atomu získají přebytečnou energii, která je pak vyzařována jako koherentní záření na velmi krátkých vlnových délkách. Anne L’Huillier pokračovala ve zkoumání tohoto jevu nazvaného generování vysokých harmonických frekvencí a položila tak základ pro další výzkum. V roce 2001 se Pierru Agostinimu podařilo vytvořit a charakterizovat sérii po sobě jdoucích světelných pulzů, z nichž každý trval pouhých 250 attosekund. Ve stejné době pracoval Ferenc Krausz s jiným typem experimentu, který umožnil izolovat jediný světelný pulz, který trval 650 attosekund. Příspěvky laureátů umožnily prozkoumat procesy, které jsou tak rychlé, že je dříve nebylo možné sledovat.

Pierre Agostini se narodil v roce 1941 v Tunisu v Tunisku. Doktorské studium absolvoval v roce 1968 na Aix-Marseille Université ve Francii a později působil jako profesor na The Ohio State University, Columbus, USA.

Ferenc Krausz se narodil v roce 1962 v Mór v Maďarsku. Doktorský diplom získal v roce 1991 na Technické univerzitě ve Vídni. Působí jako ředitel Max-Planck-Institut für Quantenoptik v Garchingu a jako profesor na Ludwig-Maximilians-Universität v Mnichově v Německu.

Anne L’Huillier se narodila v roce 1958 v Paříži ve Francii. Doktorské studium absolvovala v roce 1986 na Université Pierre et Marie Curie v Paříži a působí jako profesorka na Lunds universitet ve Švédsku.

RNDr. JANA PRECLÍKOVÁ, Ph.D., CRYTUR, spol. s r.o., Na Lukách 2283, 511 01 Turnov, e-mail: Jana.Preclikova@crytur.cz, doc. RNDr. MARTIN KOZÁK, Ph.D., Matematicko-fyzikální fakulta UK, Ke Karlovu 3, 121 16 Praha 2, e-mail: m.kozak@matfyz.cuni.cz



Obr. 1. Laureáti Nobelovy ceny za fyziku 2023: Pierre Agostini, Ferenc Krausz a Anne L'Huillier (autor fotografií: Nanaka Adachi, (c) Nobel Prize Outreach)

1. Historický úvod

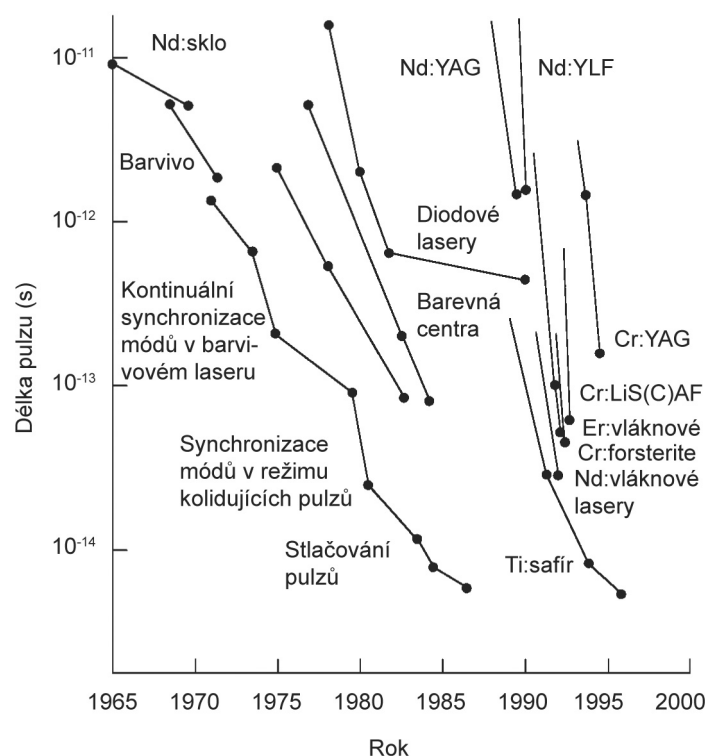
Měření času bylo od nepaměti důležitou součástí lidského života. Odedávna se lidé snažili měřit čas mezi různými událostmi s co největší přesností. Ve starověku lidé začali používat sluneční hodiny, později hodiny vodní a přesýpací, jejichž přesnost se pohybovala v řádu minut. S postupujícím časem se začaly objevovat přesnější způsoby, jak měřit čas, založené na strojích s regulovaným mechanismem. Velkým skokem v přesnosti měření bylo použití mechanického kyvadla, jehož periodický pohyb popsal v roce 1582 Galileo Galilei. První hodiny s kyvadlem sestrojil v roce 1656 Christiaan Huygens a tento typ hodin později umožnil přesnost s odchylkou několika vteřin za den. Mechanické hodiny se dále vyvíjely a využívaly kromě kyvadla také balancované pružiny. Již v této době bylo jasné, že přesnost měření času se odvíjí od frekvence oscilací frekvenčního standardu používaného hodinami. Revoluci v tomto ohledu přineslo využití mechanických oscilací křemenného krystalu vytvarovaného do tvaru laditelné vidlice, jehož oscilace na frekvenci $32\,768\text{ Hz} = 2^{15}\text{ Hz}$ umožnily zvýšit přesnost měření přibližně o řád oproti klasickým mechanickým hodinám. Další zpřesňování v oblasti kapesních či náramkových hodinek již nebylo třeba, protože odchylka menší než vteřina za den nevyžaduje příliš časté nařizování hodinek. Nicméně nejrůznější aplikace vyžadovaly další výrazné zpřesnění měření času, které přišlo s vývojem atomových hodin. V těchto hodinách je „kyvadlem“ záření, které emituje specifický elektronický přechod. Mezinárodní časový standard jedné vteřiny byl v šedesátých letech 20. století ustanoven jako čas, za který záření emitované přechodem elektronu v základním stavu atomu Cesia 133 mezi dvěma spinovými stavy kmitne 9 192 631 770krát.

Velmi přesné měření času je jenom jednou z podmínek nutných pro zobrazování dynamických procesů ve fyzice, biologii či chemii. Další nezbytnou ingrediencí je impuls,

který danou dynamiku odstartuje, a rychlý detektor, který nám ji umožní sledovat. První pokusy o zaznamenání a zprostředkování dynamických procesů se datují do třicátých let 19. století, kdy byl poprvé využit tzv. stroboskopický efekt. Dva proti sobě rotující disky, z nichž jeden obsahoval sekvenci obrázků, vytvářely dojem pohyblivých objektů. Na konci 19. století lidé začali používat fotoaparát s rychlou závěrkou k pořizování série snímků pohybujících se objektů. Z těchto prvotních studií se později vyvinula kinematografie zaznamenávající a zobrazující pohyblivé scény z našeho denního života. Otázkou ovšem bylo, jaké nejrychlejší jevy je možné touto metodou zachytit. Časové rozlišení je v takovém případě omezené dobou otevření mechanické závěrky, která nemůže být zkrácena pod přibližně 1 milisekundu ($1 \text{ ms} = 10^{-3} \text{ s}$). Další postup k zobrazování rychlejších jevů tedy musel být doprovázen změnou principu samotného zobrazovacího procesu. Ukázalo se, že výrazné zvýšení časového rozlišení může přinést alternativní přístup, který namísto mechanické závěrky využívá velmi krátké záblesky světla generované výbojkou. Pokud je naše scéna většinu času neosvětlená a pouze na velmi krátký časový okamžik ji osvětlíme zábleskem světla, stačí nám i relativně pomalý detektor, protože doba záznamu je dána dobou trvání onoho záblesku. Díky tomuto postupu bylo možné zobrazovat například letící kulku vystřelenou z pušky. Záblesky světla generované výbojkou mohou být zkráceny na délku několika desítek nanosekund ($1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$), která již stačí například na studium rotačních pohybů molekul.

Další vývoj v oblasti zkracování světelných záblesků byl umožněn až vynálezem laseru v roce 1960. Laser je zařízení umožňující generování koherentního světla pomocí stimulované emise v aktivním prostředí, které je umístěné v optickém rezonátoru. V klasickém kontinuálním režimu vychází z laseru úzký svazek světla s konstantním optickým výkonem v čase. Nicméně již od počátku se vědci zabývali vývojem pulzních laserů se stále kratší dobou trvání emitovaných pulzů. Pulzní lasery generují světlo ve formě krátkých záblesků, které jsou však na rozdíl od výbojky koherentní. První generace byla založena na principu spínání optického zisku či ztrát rezonátoru, tedy na tzv. Q-spínání (Q označuje faktor kvality rezonátoru, který je úměrný podílu světelné energie, která v rezonátoru obíhá, a energetické ztráty za jeden kmit nosné frekvence světla). Lasery na principu Q-spínání posunuly nejkratší délky světelných pulzů do oblasti jednotek nanosekund. Omezením pro další zkrácení je fakt, že pulzy jsou v tomto typu laserů generované po dobu několika oběhů světla v rezonátoru. Pokud použijeme rezonátor makroskopické velikosti s délkou desítek centimetrů, trvá světlu přibližně nanosekundu vykonat jeden oběh. Bylo evidentní, že dobu trvání pulzu v oblasti pikosekund či kratší bude možné dosáhnout pouze pomocí metody, která umožní cirkulaci samotného pulzu v laserovém rezonátoru.

Možnost dalšího zkrácení světelných pulzů přinesl vynález tzv. režimu synchronizace módů (mode-locking) [8]. V režimu synchronizace módů dochází ke svázání fáze podélných módů laserového rezonátoru (details jsou popsány v následující kapitole), což vede ke vzniku světelného pulzu mnohem kratšího, než je oběhová doba světla v rezonátoru. Tento pulz cirkuluje mezi koncovými zrcadly rezonátoru a po každém oběhu je část jeho energie vyvázána ven díky částečně propustnému výstupnímu zrcadlu. Vznikne tedy periodická sekvence pulzů, jejichž doba trvání byla postupně zkracována až na několik femtosekund ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) dosažených v roce 1997 [10] (viz obrázek 2). V klasické fyzice popisujeme světlo jako elektromagnetické vlnění, které má



Obr. 2. Historický vývoj nejkratší délky laserových pulzů generovaných femtosekundovými lasery v režimu synchronizace módů [8]

konstantní rychlost šíření ve vakuu $c = 299\,792\,458$ m/s a charakteristickou prostorovou periodou λ , kterou nazýváme vlnovou délkou světla. Běžné světelné vlny z viditelné oblasti spektra mají vlnovou délku několik set nanometrů. Pokud světelnou vlnu popíšeme v jednom bodě prostoru, oscilace elektromagnetického pole mají časovou periodu která souvisí s vlnovou délkou podle vztahu $T = \lambda/c$. Pro viditelné světlo je tedy jedna perioda oscilací jeho elektromagnetického pole přibližně 1,5–2,5 femtosekund. Již v 90. letech minulého století se tedy podařilo generovat pulzy, které obsahují pouze několik oscilací pole, a které již nebylo možné dále zkracovat bez výrazného zkrácení vlnové délky (zvýšení frekvence).

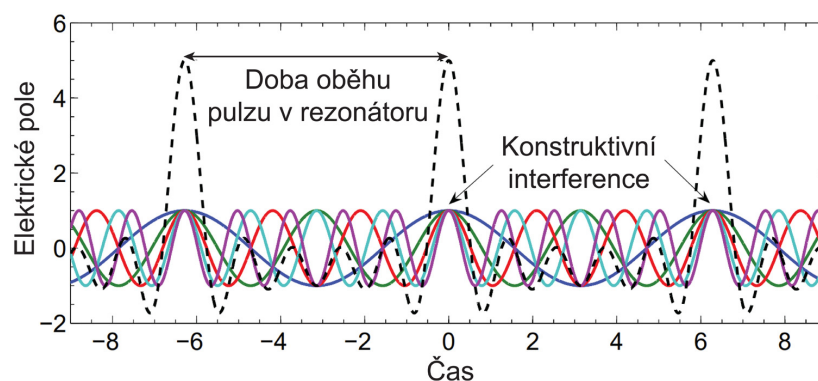
Jako již několikrát během historie, další průlom byl umožněn úplně novým přístupem ke generování světelných pulzů, což nás přivádí k oblasti, ve které byla v letošním roce udělena Nobelova cena za fyziku trojici průkopníků Pierru Agostinimu, Anně L'Huillier a Ferenci Krauszovi. Nový přístup spočívá ve využití silně nelineární optické odezvy atomů ke generování světla na vlnových délkách 10–1000krát kratších než vlnová délka světla dopadajícího na daný atom. V klasické optice je odezva látky na dopadající elektromagnetické pole světla založená na oscilacích lehkých elektronů vzhledem k těžkým atomovým jádřům. Díky nesouhlasným znaménkům nábojů těchto dvou entit vzniká v látce elektrická polarizace, která osciluje na frekvenci příchozího

světla a sama se stává zdrojem dalšího vlnění. Postupným skládáním elektromagnetického pole přichází vlny a vln generovaných polarizací látky dochází efektivně ke zpomalení šíření světla v látce. V klasické lineární optice je polarizace látky úměrná amplitudě elektrického pole dopadající světelné vlny. Pokud má ovšem amplituda elektrického pole vlny velikost, která se přibližuje velikosti pole působícího mezi jádrem a elektronem ($E \approx 10 \text{ V/nm}$), začne polarizace záviset na poli nelineárně, což vede ke generování vln na harmonických frekvencích, tedy násobcích frekvence dopadající vlny [3]. Zde se pohybujeme v oblasti klasické nelineární optiky, ve které stále není možné kontrolovat fyzikální procesy s attosekundovou přesností.

Průlom nastal po objevu nadprahové ionizace [1] a generování vysokých harmonických frekvencí [13] v atomech při osvětlení laserovými pulzy s extrémně vysokou amplitudou elektrického pole. Pokud zvýšíme elektrické pole nad určitou mez, polarizace látky se přestane chovat „klasicky“ a k vysvětlení pozorovaných jevů je třeba přistoupit jinak. V roce 1993 nastal průlom v porozumění odezvě látky v tomto extrémním režimu. Paul Corkum (další ze žhavých kandidátů na Nobelovu cenu v této oblasti) navrhl vysvětlit pozorování pomocí tří oddělených procesů [4] zahrnujících kvantové tunelování elektronu z atomu, jeho urychlení polem laserového pulzu a zpětnou rekombinaci s atomem (návrat do základního stavu) doprovázenou emisí vysokoenergetických fotonů (tento proces je detailněji popsán v kapitole Nadprahová ionizace a generování vysokých harmonických frekvencí). Díky extrémně silné nelinearitě pravděpodobnosti tunelování elektronu v prvním kroku je dynamika celého tohoto procesu velmi přesně řízena polem laserového pulzu, který ji budí. Klíčem k získání attosekundové přesnosti měření tedy bylo vyvinout metody umožňující kontrolovat nejen obálku velmi krátkých světelných pulzů, tedy jejich dobu trvání, ale také fázi jednotlivých oscilací elektrického pole. Kombinace přesné kontroly a silné nelineárních procesů v atomech a molekulách poté dovolila sledovat dynamiku elektronů v látkách s přesností, která mnohdy přesahuje naše chápání.

2. Technologie femtosekundových laserů

Vývoj v oblasti femtosekundových laserů započal v 70. letech 20. století, kdy se podařilo dosáhnout režimu synchronizace módů v barvivových laserech a vygenerovat první pulzy s délkou kratší než 1 ps. Módy laseru jsou stavy elektromagnetického záření uvnitř laserového rezonátoru, které jsou přípustné z hlediska okrajových podmínek. Tzv. podélné módy jsou určeny podmínkou existence uzlů vln na zrcadlech rezonátoru, délka prázdného rezonátoru je tak rovna celočíselnému násobku polovln. Synchronizace podélných módů optického rezonátoru lze připodobnit ke svázání monochromatických vln, které mají různé frekvence. Pokud jsou jejich vzájemné fáze v nahodilém vztahu, po sečtení těchto vln vznikne světlo s oscilujícím okamžitým výkonem, ovšem s nahodilou závislostí na čase. Jestliže ovšem vlny donutíme zakmitnout v nějakém čase všechny naráz, sečtou se v tomto čase jejich amplitudy a vznikne výrazné maximum optického pulzu (viz obr. 3). Technicky je možné podélné módy laseru fázově svázat pomocí aktivních či pasivních metod. První kategorie využívá optické modulátory, jejichž propustnost jako funkci času můžeme ovládat. Existují různé aktivní světelné modulátory, ale pro tento účel se nejčastěji používají tzv. akustooptické modulátory pracující s rozptylem světla na akustických vlnách generovaných v krystalu. Pokud



Obr. 3. Princip generování ultrakrátkých laserových pulzů pomocí metody synchronizace módů. Pokud sečteme pole několika monochromatických vln s různými frekvencemi, které představují podélné módy laserového rezonátoru, získáme pulzy s délkou nepřímo úměrnou počtu sečtených vln n a se špičkovým výkonem, který škáluje s n^2 . Ve femtosekundových laserech je typicky poskládáno 10^6 či více podélných módů

umístíme takový modulátor do rezonátoru laseru a modulujeme jeho propustnost harmonickou funkcí s periodou odpovídající době oběhu pulzu v rezonátoru, ukazuje se, že pulz má tendenci procházet modulátorem právě v čase nejmenších ztrát. Po mnoha obězích se tedy ustaluje doba průletu pulzu modulátorem vzhledem k oscilacím jeho propustnosti, které externě elektronicky řídíme (typické frekvence jsou v oblasti MHz). Navíc lze ukázat, že pulz má tendenci se zkracovat díky faktu, že celkový optický zisk po jednom oběhu nabývá maxima právě v čase maxima propustnosti, a v tomto čase tedy dochází k největšímu zesilování světla stimulovanou emisí, zatímco v okolních časech je zesílení slabší. Ve frekvenční oblasti si lze tuto metodu představit tak, že pokud budeme modulovat amplitudu monochromatické harmonické vlny, vzniknou v jejím spektru kromě hlavního maxima na původní frekvenci f ještě sousední maxima s frekvencemi $f - f_{\text{mod}}$ a $f + f_{\text{mod}}$. Pokud si představíme, že po uvedení laseru nad práh stimulované emise, kdy optický zisk převládne nad ztrátami, vznikne nejprve jeden podélný mód, vygenerují se díky časové modulaci amplitudy v jeho sousedství dvě další frekvence, které jsou s původním módem fázově svázané. Jestliže se ovšem tyto postranní frekvence shodují s frekvencemi sousedních podélných módů rezonátoru, začnou se zesilovat stimulovanou emisí, která zachovává jejich fázi. Díky tomuto procesu se během mnoha oběhů synchronizace rozšíří na celé spektrum stimulované emise a laser začne produkovat vlak ekvidistantních pulzů v čase. Pasivní metody synchronizace módů jsou založené na nelineárně optických jevech, kdy pulz sám indukuje okamžité změny propustnosti či odrazivosti různých optických prvků v rezonátoru. Stimulovaná emise převládá nad ztrátami pouze v pulzním režimu laseru, ve kterém je špičková intenzita nutná k aktivaci nelineárně optických jevů mnohonásobně větší než v kontinuálním režimu.

Délka pulzů vygenerovaných metodou synchronizace módů může být zkrácena až na přibližně 6 fs, k čemuž je nutné aktivní prostředí s velmi širokým spektrem zesílení světla, které umožňuje generování velkého počtu podélných laserových módů. Nejčastěji používaným prostředím pro generování takto krátkých pulzů je krystal safíru dopo-

vaný titanem. Jelikož je iont titanu mnohem větší než atomy hliníku v krystalu safíru, dochází při jeho vložení do safírové mřížky k silné distorzi okolní krystalické struktury, která vede k výraznému nehomogennímu rozšíření absorpčního a emisního spektra. Spektrum zisku těchto krystalů pokrývá obvykle oblast vlnových délek 650–1 050 nm a jeho šířka umožnila generování nejkratších pulzů obdržených přímo z laserového oscilátoru. Dobu trvání pulzů je pak možné dále zkracovat díky rozšíření spektra pomocí nelineárních optických jevů a stlačení pulzů kompenzací disperze grupových zpoždění. Další vývoj přinesl tzv. optické syntetizátory, které dovolují zkrátit optické pulzy až na pouhý jeden zámkit elektrického pole odpovídající délce přibližně 1 fs [7]. V těchto zařízeních je nejprve generováno extrémně široké spektrum koherentního světla, tzv. femtosekundové superkontinuum, které je buzené pulzy se stabilní fází vůči obálce. Spektrum je následně rozděleno na několik spektrálních oblastí (typicky 3–4), z nichž každá je pomocí kompenzace disperze stlačena v čase na dobu trvání několika femtosekund. Následně jsou svazky koherentně složeny. Kontrolou vzájemného časového zpoždění mezi pulzy v jednotlivých spektrálních oblastech a jejich fáze je možné připravit téměř jakýkoliv tvar elektrického pole pulzu v čase [7].

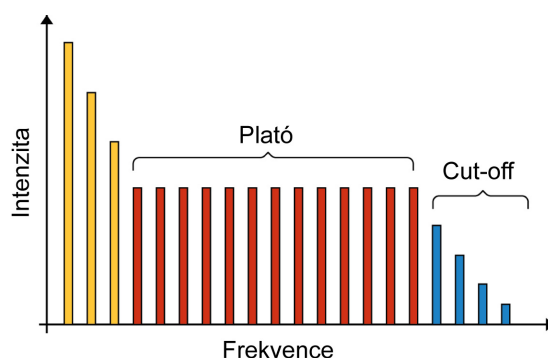
Stručně jsme popsali principy generování ultrakrátkých laserových pulzů ve viditelné či blízké infračervené oblasti spektra. Otázkou ovšem zůstává, jak je možné kontrolovat nejen obálkovou funkci popisující časový profil okamžitého výkonu světla takového pulzu, ale také fázi oscilací elektrického pole vůči této obálce. Již v 90. letech minulého století se začaly objevovat první pokusy o využití spektra sekvence femtosekundových pulzů, tzv. femtosekundového frekvenčního hřebene. Ukázalo se, že frekvenční spektrum obsahující velký počet úzkých čar, které mezi sebou mají velmi přesně definovanou vzdálenost, může najít využití ve frekvenční stabilizaci, metrologii a spektroskopii. Velký význam má ovšem také pro rozvoj attosekundové fyziky, jelikož frekvenční hřebeny umožnily stabilizovat fázi elektrického pole pulzu vůči jeho obálce s přesností attosekund. Základním předpokladem pro tak přesnou stabilizaci je měření vzájemného fázového posuvu jednotlivých pulzů vystupujících z laseru. Ukazuje se, že pokud je fáze pole pulzů vůči obálce neměnná (elektrické pole každého pulzu vypadá přesně stejně), splňují frekvence femtosekundového hřebenu podmínku $f_n = n f_{\text{rep}}$, kde n je celé číslo a f_{rep} je opakovací frekvence pulzů v periodické sekvenci. Pokud se fáze po sobě jdoucích pulzů mění, můžeme zavést frekvenci f_0 , na které se tento posuv odehrává, přičemž pole pulzu se posune o 2π za čas odpovídající $1/f_0$. V tomto případě jsou frekvence femtosekundového hřebene posunuty na $f_n = f_0 + n f_{\text{rep}}$. Abychom tedy byli schopni stabilizovat fázi pole po sobě jdoucích pulzů a vytvořit přesně identické kopie pulzů, je nutné měřit absolutní frekvenční posun frekvenčního hřebenu od nulové frekvence. Při řešení tohoto problému se uplatnila interferometrie založená na skládání dvou monochromatických vln s mírně odlišnými frekvencemi. Pokud rozšíříme spektrum základního pulzu tak, že pokrývá oblast s frekvencí f a zároveň oblast druhé harmonické frekvence $2f$, dojde po generování druhé harmonické z celého spektra pulzu k překrytí vysokofrekvenční oblasti základního spektra $f_n = f_0 + n f_{\text{rep}}$ a nízkofrekvenční oblasti spektra druhé harmonické frekvence $2f_n = 2f_0 + 2n f_{\text{rep}}$. Pokud spektrálním filtrem vybereme pouze úzkou oblast spektra v oblasti překryvu frekvencí, díky vzájemnému posunu frekvencí v obou hřebenech o f_0 má výsledné pole obálky oscilující na této frekvenci, která je typicky v oblasti 1–100 MHz. Výstup z interferometru tedy dopadá na rychlý světelný detektor, typicky lavinovou fotodiodu.

du, která převádí oscilace světelné intenzity na elektrický signál. Ten je možné použít buďto ke stabilizaci frekvence f_0 nebo k jejímu posunu na nulovou hodnotu pomocí zpětné vazby aplikované na laserový oscilátor či pomocí tzv. feed-forward schématu, ve kterém se fáze pulzů vystupujících z laseru dynamicky vyrovnává pomocí akustooptického modulátoru. Výsledkem této složité manipulace je sekvence pulzů, které mají nejen přesně stejnou obálku, ale také tvar jednotlivých oscilací elektrického pole. Existují také pasivní metody, jak absolutní fázi pulzů stabilizovat, založené na generování rozdílové frekvence. Pokud ze sekvence femtosekundových pulzů vygenerujeme rozdílovou frekvenci mezi vysoko- a nízkofrekvenční částí spektra, frekvence f_0 se odečte a zůstane frekvenční hřeben s $f_0 = 0$, tedy všechny pulzy budou mít stejnou fázi pole vůči obálce [2]. Tato metoda se většinou využívá při generování fázově stabilních pulzů ve střední a vzdálené infračervené oblasti spektra či pulzů terahertzových.

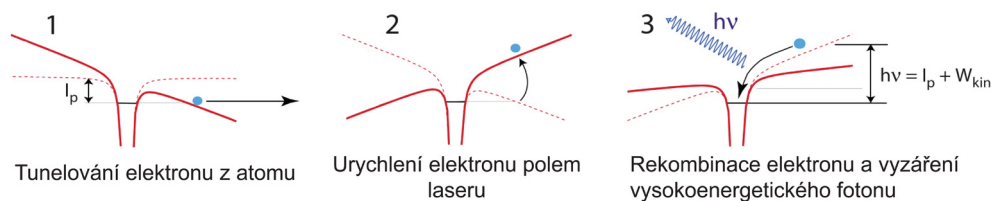
3. Nadprahová ionizace a generování vysokých harmonických frekvencí

S pokrokem ve vývoji laserových systémů byly pulsy nejen zkracovány v čase, ale zároveň byly budovány i laserové systémy dosahující vysokých výkonů ve svazku. V průběhu 80. let minulého století špičková intenzita elektromagnetického pole fokusovaného laserového svazku začala dosahovat hodnot odpovídajících vazebné energii elektronového obalu k jádru atomu (10^{13} W/cm²) a bylo zahájeno studium fotoionizace atomů a molekul.

Ve výzkumném centru v Saclay v Paříži byly pozorovány překvapivé výsledky. Při studiu interakce vzácných plynů s intenzivním laserovým svazkem o vlnové délce 1 064 nm (odpovídající energii fotonu 1,17 eV) byl pozorován vznik extrémního ultrafialového záření (XUV) se spektrem, které sestávalo z ostrých maxim, jejichž energie fotonů přesně odpovídaly lichým násobkům energie fotonu dopadajícího světla (tzv. generování vysokých harmonických – HHG z anglického high harmonic generation). Pozorované spektrum bylo následující: přibližně do 5. řádu HHG intenzita maxim klesala s rostoucí energií fotonů a pak pro oblast 5.–33. řádu HHG bylo pozorováno tzv. plató, kdy intenzita jednotlivých maxim byla konstantní, načež intenzita dalších maxim postupně vymizela až k nule (tzv. „cutoff“ frekvence), viz obr. 4 [5], [15]. Pozorované plató odpovídalo vlnovým délkám přibližně 30–210 nm.



Obr. 4. Typický průběh spektra generovaných vysokých frekvencí (HHG) záření v důsledku interakce silného laserového pole s atomy vzácných plynů, převzato z [15]

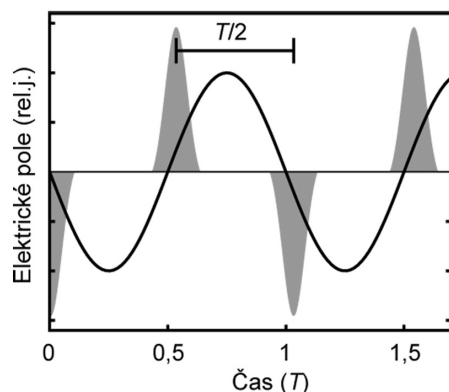


Obr. 5. Třístupňový model generování vysokých harmonických frekvencí (HHG). V prvním kroku dochází k tunelové ionizaci atomu přiloženým elektrickým polem laseru. V druhém kroku je elektron pole urychlen na vysokou kinetickou energii. Ve třetím kroku dochází k rekombinaci elektronu (návrat do základního stavu) a přebytečná energie je vyzářena ve formě vysokoenergetického fotonu. Tato dynamika se odehrává dvakrát za jednu periodu silného optického pole. Převzato z [6]

U těchto prvních pozorování byla letošní nositelka Nobelovy ceny Anne L'Huillier, která se zároveň zasadila i o teoretické vysvětlení pozorovaného jevu a byla přítomna u prvních publikovaných numerických výpočtů časově závislé Schrödingerovy rovnice (TDSE) v jednoelektronové aproximaci, kde bylo HHG začátkem 90. let vysvětleno. Ve zjednodušeném semiklasickém modelu od P. Corkuma [4] lze proces HHG vysvětlit pomocí následujících tří fází: (1) tunelové ionizace atomu v intenzivním laserovém poli, (2) následné dynamiky uvolněného elektronu řízené laserovým polem a (3) zpětné rekombinace elektronu, při které je získaná kinetická energie uvolněna ve formě HHG záření (viz obr. 5). První proces, který je zároveň nejdůležitější z hlediska attosekundové kontroly ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$), je kvantové tunelování elektronu z vázaného stavu v atomu do vakua. Elektron je vytržen z atomu v přesně určený časový okamžik v blízkosti maxima elektrického pole dopadajícího světelného pulzu (viz obr. 5). Druhým krokem je klasické šíření elektronu v oscilujícím laserovém poli, kdy je elektron urychlen na vysokou energii a mrštěn zpět proti atomu, ze kterého byl vytržen. Třetí krok, tedy návrat vysokoenergetického elektronu do základního stavu, již vede ke vzniku velmi krátkého elektromagnetického pulzu, jehož energie fotonů odpovídá ztrátě kinetické energie návrativšího se elektronu a spadá do spektrální oblasti mezi vzdálené ultrafialové a blízké rentgenové záření.

Z tohoto modelu je patrné, že ke generování XUV záblesků dochází vždy v okamžiku, kdy uvolněný elektron, tažený elektrickým polem laserového svazku, prochází v těsné blízkosti mateřského iontu, a tudíž pravděpodobnost rekombinace je nejvyšší. K tomu dochází dvakrát za periodu optického cyklu budícího laserového světla (viz obr. 6). Tyto jednotlivé XUV záblesky spolu interferují. U sudých násobků vysokých harmonických frekvencí jde o interferenci elektromagnetických vln s opačnou orientací elektromagnetického pole, tudíž se vzájemně vynulují a nejsou ve výsledném spektru pozorovány.

Charakteristika generovaného záření se též liší dle toho, za jak dlouho dochází k následné rekombinaci uvolněného elektronu. Trajektorie elektronů mimo vázaný stav v atomu během procesu HHG lze rozdělit do dvou kategorií, na tzv. krátké a dlouhé. Klasicky vypočtené trajektorie závisí na přesném čase emise elektronu vzhledem k elektrickému poli optické vlny. Pouze trajektorie elektronu emitovaného ve druhé polovině časového okna, ve kterém dochází k tunelové excitaci elektronu do vakua, vede k jeho



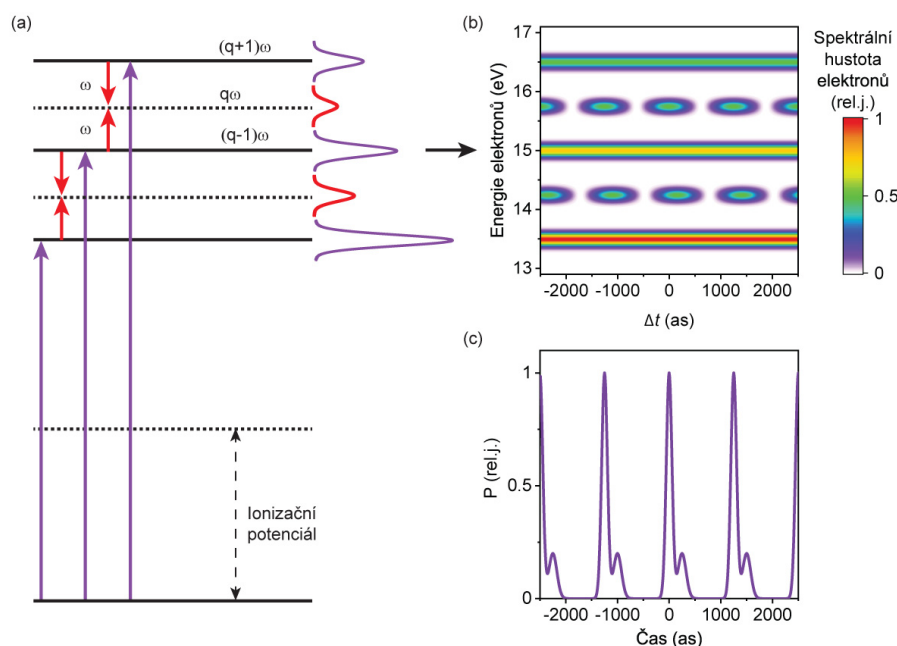
Obr. 6. Periodická sekvence attosekundových pulzů (šedé stínování) generovaných optickou vlnou s periodou T (černá křivka). Převzato z [12]

návratu a rekombinaci. Existuje střední trajektorie odpovídající nejvyšší energii elektronu při návratu zpět k atomu a ta se používá jako dělicí čára pro zmíněné krátké a dlouhé trajektorie. V praxi lze poměr HHG odpovídající krátké, resp. dlouhé trajektorii v generovaném XUV svazku měnit parametry experimentálního uspořádání, zejména přesnou polohou ohniska laserového svazku vůči poloze proudu atomů, z kterých je HHG generováno. To je umožněno makroskopickými jevy, kdy pro účinné generování koherentního svazku je třeba splnit tzv. podmínky sfázování, tedy dosažení stejné fázové rychlosti světla na základní frekvenci a vysokých harmonických frekvencích. Kromě geometrie experimentu se k dosažení sfázování používají také změna hustoty atomů, ve kterých HHG probíhá (změna fázové rychlosti díky změně indexu lomu prostředí), a změny špičkové intenzity budícího světla (nelineárně indukovaná změna indexu lomu).

Pro generování attosekundových laserových pulsů je vhodnější HHG odpovídající kratší trajektorii elektronů. Zatímco ve femtosekundových laboratořích jsou fáze jednotlivých frekvenčních módů (kompenzace rozdílných grupových zpoždění) kontrolovány pomocí mřížkových (hranolových) kompresorů pulsů a chirpovaných zrcadel, v attosekundových laboratořích ke stejnému účelu slouží tenké kovové (např. Al, Cr) fólie, které díky svým vlastnostem umožňují kontrolu grupových zpoždění jednotlivých řádů HHG v XUV oblasti.

4. Attosekundové pulzy, attosekundové rozmítání a RABBIT

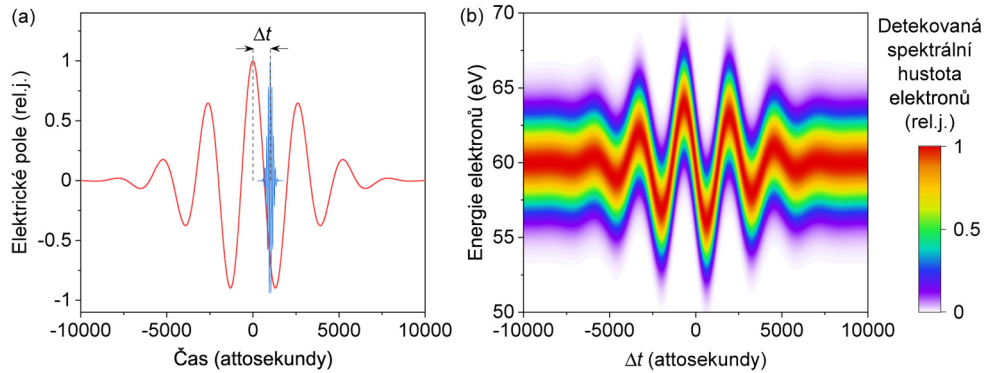
V předešlé kapitole jsme popsali, jak je možné generovat koherentní záblesky elektromagnetického záření s attosekundovou délkou. Nyní se budeme zabývat otázkou, jakým způsobem můžeme takto krátké pulzy charakterizovat a realizovat tak attosekundovou metrologii. Za tímto účelem byly postupně vyvinuty dvě metody, RABBIT (z angl. reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) a attosekundové rozmítání. První z metod je vhodná pro charakterizaci periodické sekvence attosekundových pulzů generované pomocí relativně dlouhých femtosekun-



Obr. 7. (a) Princip interference dvoufotonových přechodů elektronů (RABBIT) emitovaných z atomu vedoucí k oscilacím nově generovaných postranních pásů s měnícím se časovým zpožděním mezi sekvencí attosekundových pulzů a elektrickým polem infračerveného pulzu dopadajícím na atom. Každý postranní pás je zároveň generován dvěma sousedními harmonickými frekvencemi a pozorované oscilace lze chápat jako interferenci kvantově mechanických amplitud těchto dvou přechodů, která nese informaci o grupovém zpoždění v sekvenci attosekundových pulzů. (b) Typický výsledek měření metodou RABBIT, který ukazuje spektra emitovaných elektronů jako funkci zpoždění mezi attosekundovými pulzy a polem infračerveného pulzu. (c) Ukázka periodické sekvence attosekundových pulzů, jejíž časový profil je možné rekonstruovat z výsledku měření metodou RABBIT

dových pulzů obsahujících více oscilací elektrického pole. Princip metody je zobrazen na obrázku 7a. Sekvence attosekundových pulzů (obr. 7c), která ve spektrální oblasti odpovídá hřebenu vysokých harmonických frekvencí, dopadá na shluk atomů, které ionizuje. V případě, že není přítomné jiné externí pole, spektrum elektronů ionizovaných z jedné energetické hladiny reflektuje spektrum vysokých harmonických obsahující pouze liché násobky frekvence budícího světla. Pokud ovšem přimícháme k sekvenci attosekundových pulzů také infračervený pulz, který je v předchozí interakci generoval, dojde k posunu energie fotoemitovaných elektronů v důsledku absorpce a stimulované emise infračervených fotonů. Koherentní míchání elektronových přechodů pak vede na závislost populace nově generovaných energetických stavů na vzájemném časovém zpoždění mezi infračerveným pulzem a sekvencí attosekundových pulzů (obrázek 7b). Z interference a její závislosti na energii je potom možné zrekonstruovat průměrný attosekundový pulz z periodické sekvence. Tato metoda má ovšem řadu omezení, např. teorie nebere v potaz krátkou dobu trvání budícího infračerveného pulzu a metoda je vhodná pouze pro periodicky se opakující attosekundové pulzy.

Jakmile začaly být dostupné izolované attosekundové pulzy, byla vyvinuta druhá metoda, tzv. attosekundové rozmítání. Její princip se dá zjednodušeně připodobnit k principu fungování starého typu CRT obrazovek. Zde byla ve vakuové trubici umístěna katoda emitující elektrony, které byly urychleny pomocí statického pole. Při jejich šíření trubicí bylo přikládáno elektrické pole v příčném směru, které elektrony „rozmítalo“ po přední stěně trubice, kde elektrony tvořily obraz na fosforescenčním stínítku. Pokud tento princip převrátíme, zjistíme, že poloha elektronového svazku na stínítku svazuje čas jeho emise a okamžitou hodnotu elektrického pole přiloženého v době průletu elektronu mezi elektrodami. Stejný princip lze využít i v mikrosvětě, kde je ovšem rozmítacím polem pole infračerveného pulzu a emise elektronu z atomu je řízena attosekundovým pulzem, který na něj dopadá zároveň s infračerveným pulzem. Díky tomu, že elektron je emitován v určitém okamžiku vzhledem k oscilujícímu poli infračerveného pulzu, je jeho výsledná kinetická energie daná energií absorbovaného fotonu sečtenou s energií, kterou elektron získá či ztratí interakcí s infračerveným polem zbylé části pulzu. Tomu lze rozumět tak, že po emisi je elektron urychlován a zpomalován elektrickým polem infračerveného pulzu a jeho výsledná kinetická energie tak závisí na okamžiku, ve kterém byl emitován. Tato metoda poskytla první záznam koherentního optického vlnění, kdy spektrum elektronů jako funkce časového zpoždění mezi attosekundovým a infračerveným pulzem na obr. 7a osciluje na femtosekundové časové škále a rozdíl okamžité střední hodnoty energie a střední hodnoty energie bez přiloženého infračerveného pole je přímo úměrný integrálu z časového průběhu elektrického pole části pulzu začínající emisí elektronu (elektrické pole tedy získáme její derivací podle času). Charakterizace attosekundových pulzů je možná díky změnám tvaru spektra elektronů jako funkci časového zpoždění, které nesou informaci o okamžité frekvenci attosekundového pulzu. Pokud tedy naměřená data zobrazená v obr. 8b zpracujeme pomocí iterativního algoritmu, můžeme z nich přesně zrekonstruovat průběh attosekundového pulzu v čase.



Obr. 8. (a) Ukázka elektrického pole infračerveného pulzu a attosekundového pulzu dopadajících na shluk atomů s časovým zpožděním Δt . (b) Spektra elektronů detekovaná jako funkce časového zpoždění vykazují oscilace odpovídající integrálu z časového průběhu elektrického pole části pulzu začínající emisí elektronu. Spektrogram zároveň obsahuje informaci o přesném časovém tvaru attosekundového pulzu

5. Měření zpoždění fotoemise pomocí attosekundových pulzů

Attosekundová metrologie byla v posledních letech aplikována na studium mnoha zajímavých a do nedávné doby neměřitelných fyzikálních procesů. Zde jsme jako příklad vybrali měření časového zpoždění při fotoemisi elektronu z atomu. V roce 1905 vysvětlil Albert Einstein fotoelektrický jev (někdy též fotoefekt), při kterém je z látky při dopadu světelné vlny vyražen elektron. Ukázalo se, že energie elektronu nezávisí na intenzitě světelné vlny, tedy dopadajícím výkonu na jednotku plochy, ale je nepřímo úměrná rozdílu vlnové délky světla a určité materiálové konstanty zvané výstupní práce. Einstein využil poznatky kvantové mechaniky a vysvětlil tento jev zavedením kvant světla, tzv. fotonů, jejichž energie je přímo úměrná frekvenci, tedy nepřímo úměrná vlnové délce světla. Jeden absorbovaný foton vyráží z látky jeden elektron, jehož energie je dána rozdílem energie absorbovaného fotonu a výstupní práce. Einstein se ovšem nezamýšlel nad tím, že emise má také nějakou dynamiku. Pokud na látku dopadá extrémně krátký pulz s attosekundovou dobou trvání, vyvstává otázka, jestli je emise elektronu okamžitá nebo jestli například elektrony emitované z různých slupek elektronového obalu atomu mají mezi sebou nějaké zpoždění. Pohlédnout na tento problém nám umožnila právě attosekundová metrologie. Budeme-li attosekundovým pulzem emitovat elektrony ze dvou různých hladin a vyžijeme-li stejný princip jako při attosekundovém rozmítání, můžeme porovnat oscilace kinetické energie elektronů ve dvou částech spektra jako funkci zpoždění mezi attosekundovým a infračerveným pulzem. Toto srovnání nám přímo poskytuje informaci o časovém zpoždění emise z těchto dvou stavů, jelikož rozmítací pole infračerveného pulzu je pro oba stavy stejné. Ve skupinách laureátů Nobelovy ceny za fyziku 2023 Ference Krausz a Anny L’Huillier bylo tímto způsobem pozorováno, že emise elektronů z 3s a 3p orbitalů jsou vzájemně časově posunuté o desítky až stovky attosekund [14], [11]. Mezi další pozorování se řadí například zpoždění několika desítek attosekund mezi fotoemisí elektronů z molekul vody v plynném a tekutém skupenství [9], které prokazuje vliv okolí jednotlivých molekul na dynamiku fotoemise.

Na prvotní výzkum navázala řada zpřesňujících experimentů, jejichž cílem je detailně studovat proces fotoemise elektronů z atomů a molekul, porovnat ho s nejnovější teorií a řídit ho s attosekundovou přesností.

Závěrem lze říci, že ačkoliv attosekundová fyzika zatím nepřinesla konkrétní aplikaci zasahující do našich denních životů, její přínos pro porozumění v oblasti dynamiky mikrosvěta je zcela mimořádný a umožnil studovat procesy v atomech, molekulách a pevných látkách s přesností přesahující představivost vědců před několika desetiletími. Je tedy pravděpodobné, že další rozvoj v této oblasti přinese kýžené zrychlení a zefektivnění současné elektroniky.

L i t e r a t u r a

- [1] AGOSTINI, P., FABRE, F., MAINFRAY, G., PETITE, G., RAHMAN, N. K.: *Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms*. Phys. Rev. Lett. 42 (1979), 1127–1130.
- [2] APOLONSKI, A., POPPE, A., TEMPEA, G., SPIELMANN, CH., UDEM, TH., HOLZ-

- WARTH, R., HÄNSCH, T. W., KRAUSZ, F.: *Controlling the phase evolution of few-cycle light pulses*. Phys. Rev. Lett. 85 (2000), 740–743.
- [3] BOYD, R. W.: *Nonlinear optics*. Elsevier, 2003.
- [4] CORKUM, P. B.: *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*. Phys. Rev. Lett. 71 (1993), 1994–1997.
- [5] FERRAY, M., L’HUILIER, A., LI, X. F., LOMPRES, L. A., MAINFRAY, G., MANUS, C.: *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 21 (1988), article no. L31.
- [6] HARELI, L., SHOULGA, G., BAHABAD, A.: *Phase matching and quasi-phase matching of high-order harmonic generation – a tutorial*. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 53 (2020), article no. 233001.
- [7] HASSAN, M. TH., et al.: *Optical attosecond pulses and tracking the nonlinear response of bound electrons*. Nature 530 (2016), 66–70.
- [8] HAUS, H. A.: *Mode-locking of lasers*. IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 6 (2000), 1173–1185.
- [9] JORDAN, I., HUPPERT, M., RATTENBACHER, D., PEPPER, M., JELOVINA, D., PERRY, C., VON CONTA, A., SCHILD, A., WÖRNER, H. J.: *Attosecond spectroscopy of liquid water*. Science 369 (2020), 974–979.
- [10] JUNG, I. D., KÄRTNER, F. X., MATUSCHEK, N., SUTTER, D. H., MORIER-GENOUD, F., ZHANG, G., KELLER, U., SCHEUER, V., TILSCH, M., TSCHUDI, T.: *Self-starting 6.5-fs pulses from a Ti:sapphire laser*. Opt. Lett. 22 (1997), 1009–1011.
- [11] KLÜNDER, K., et al.: *Probing single-photon ionization on the attosecond time scale*. Phys. Rev. Lett. 106 (2011), article no. 143002.
- [12] KLÜNDER, K.: *Electron wave packet dynamics on the attosecond time scale*. Doctoral thesis. Lund University, 2012.
Dostupné z: <https://portal.research.lu.se/files/5352842/2541868.pdf>
- [13] MCPHERSON, A., GIBSON, G., JARA, H., JOHANN, U., LUK, T. S., MCINTYRE, I. A., BOYER, K., RHODES, C. K.: *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*. J. Opt. Soc. Am. B 4 (1987), 595–601.
- [14] SCHULTZE, M., et al.: *Delay in photoemission*. Science 328 (2010), 1658–1662.
- [15] The Nobel Prize in Physics 2023. Advanced Information [online]. Dostupné z: <https://www.nobelprize.org/uploads/2023/10/advanced-physicsprize2023-2.pdf>