



M Ű E G Y E T E M 1 7 8 2

Fizikai Tudományok Doktori Iskola
Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

Femtosekundumos közeli infravörös lézerimpulzusok és szilárdtestek ultragyors nanooptikai kölcsönhatásai

PhD tézisfüzet

Bánhegyi Balázs

Témavezető: Dombi Péter



HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóközpont

Budapest, Magyarország

2024

Kutatások előzménye

Az elmúlt években az ultragyors nanooptika területe jelentős fejlődésen ment keresztül, amit többek között a femtoszekundumos lézertechnológia új megoldásainak elterjedése, a nanostruktúrák gyártástechnológiájának fejlődése és a közeltéri folyamatok nanoskálán történő irányításának növekvő igénye gerjesztett. Az elmúlt évtized áttörései bebizonyították, hogy ez a terület egyszerre alkalmas az ultragyors fény-anyag kölcsönhatások alapvető folyamatainak vizsgálatára [1–4] miközben számos alkalmazási lehetőségekkel rendelkezik a mikro- és nanotechnológiától [5] a plazmonikus érzékelésen át [6], a plazmonikusan erősített fotokatalízisig [7], és a következő generációs, mikrocsip méretű optoelektronikai eszközökig [8].

A fény-anyag kölcsönhatások kutatásának egyik nagymúltú ága a lézer-indukált periodikus felületi struktúrák (laser-induced periodic surface structures – LIPSS) vizsgálata. Ezek a struktúrák azért váltak érdekessé, mert egyedi kollektív optikai és mechanikai tulajdonságokkal rendelkeznek, amelyek különféle alkalmazásoknak megfelelően testre szabhatók. Ennek köszönhetően többek között létrehoztak már periodikus struktúrákat felületfunkcionalizáláshoz [9], reflexiómentes bevonatokat [10–12], a félvezetőipar részére készített szerkezeteket [13,14], valamint különféle mikrofluidikai eszközöket biológiai felhasználáshoz [15,16]. Ezek az alkalmazások a felületi struktúrák fizikai paramétereire támaszkodnak, mint például méretük, periodicitásuk, mélységük és egyenletességük. Ezeknek a paramétereknek a pontos és teljeskörű befolyásolása, valamint a kialakulásuk mechanizmusainak feltárása továbbra is kihívást jelent és témát ad nemzetközi konferenciák kapcsolódó vitáihoz.

A nanooptikának egy másik, intenzíven vizsgált kutatási területe a plazmonikus nanorészecskék tulajdonságai, mivel ezek képesek számos nanooptikai jelenség erősítésére: a plazmonrezonancia kihasználásával lehetséges az elektromágneses mezők hullámhossz alatti térbe koncentrálása [17], ami többek között megnövekedett abszorpcióhoz és fényszóráshoz [18,19], valamint lokális térnövekményhez vezet [20]. A plazmonikus térnövekmény kulcsfontosságú szerepet játszik a különböző alkalmazások során, mint például a felület-erősített Raman spektroszkópia (SERS) [21], egyedülálló molekulák érzékelése [22], és minden eddiginél érzékenyebb kémiai és biológiai szenzorok fejlesztése [23]. A plazmonikus nanostruktúrák fotonikai eszközökbe integrálásával létrehozhatók továbbá fényérzékelők [24] és a fotovoltaiikus cellák [25,26] is, hogy ezáltal növeljék azok hatékonyságát és teljesítményét.

A minél magasabb plazmonikus térnövekmény elérését – és a gerjesztő lézer optikai spektrumával történő rezonancia megvalósítását – célzó hagyományos módszerek a nanorészecskék geometriai hangolásán alapultak, mely során egy adott lézer hullámhossz esetén a nanorészecskék lézerpolarizációval párhuzamos méretének hangolásával érhető el rezonancia [27–29]. A módszer általános korlátai (az elkészült nanostruktúrák rögzített tulajdonságai) és az in-situ, dinamikusan hangolható optikai áramkörti elemek szükségessége új, innovatív megoldásokat igényelnek, amelyek alkalmasak lehetnek a jövőbeli, új generációs optoelektronikai eszközök kifejlesztésére. A plazmonikus nanorészecskék felszínén létrehozott térnövekmény vizsgálatának és mérésének (és ezáltal optimalizálásának) kiváló nemdestruktív, ultragyors, robusztus eszköze a felületi ultragyors fotoemisszió, melyet korábban többször is alkalmaztak számos különféle nanorészecske esetén [30–34].

Mindazok mellett, hogy az ultragyors fotoionizáció és fotoemisszió kiválóan alkalmas ultragyors nanooptikai folyamatok vizsgálatára, a jelenség önmagában is jelentős érdeklődés tárgya. Atomok és molekulák lézertény általi ionizálása forradalmasította az elektronok dinamikájának megértését, hozzájárult a elektronok mozgásának páratlan időbeli felbontásához, miközben számtalan kutatási területnek fektette le az alapjait, beleértve a magasrendű felharmonikusok előállítását is [35–37], mely végül elvezetett az attoszekundumos tudományhoz [38–40] és a 2023-as fizikai Nobel-díjhoz.

A hetvenes évektől a kétezres évekig elsősorban a fotoionizációs folyamatok kutatása állt a középpontban, viszont az elmúlt évtizedben az érdeklődés áttért a szilárdtestek esetén ana-

lóg folyamat, a nanostruktúrákról (nanotűk, nanorészecskék, plazmonikus dimerek stb.) történő ultragyors fotoemisszió vizsgálatára. Ezen érdekes nanostruktúrák segítségével számos alapvető ultragyors fotoemissziós folyamatot tártak fel, például a ponderomotoros és optikai cikluson belüli elektrongyorsítást [41–43], a foto-asszisztált alagutazást [44], és a vivő-burkoló fázishatásokat [45], valamint lehetővé tették az egzotikus kvantumanyagok in-situ tanulmányozását is [46]. Ezen kutatások úttörő eredményei mellett máig számos érdekes kihívás rejlik a plazmonikus nanorészecskék felületén lezajló ultragyors fotoemisszió területén, a fotoemittált elektronok nanooptikai közeltérekben lejátszódó ultragyors dinamikájának teljesebb megértése pedig hozzájárulhat új-generációs, ultragyors elektronforrások [47] és másodlagos sugárforrások kifejlesztéséhez.

Célkitűzések

A doktori kutatásom célja, hogy a vezető vékonyrétegek, különböző felületi nanostruktúrák és femtoszekundumos lézerforrások alkalmazásával vizsgáljam az ultragyors nanooptikai kölcsönhatásokat közeli infravörös lézerimpulzusok alkalmazásával. Ezen kutatások során több kapcsolódó területen is vizsgálatokat folytattam, ideértve a femtoszekundumos lézer-indukált periodikus felületi struktúrákat, nanorészecskéken kialakuló plazmonikus térnövekmény hangolását, illetve nanorészecskékről történő ultragyors fotoemissziót:

- LIPSS indium-ón-oxid (ITO) rétegeken: Közeli infravörös femtoszekundumos impulzusok alkalmazásával ITO vékonyrétegeken periodikus felületi struktúrák létrehozása és azok fizikai tulajdonságainak tanulmányozása volt a célom. Ennek megfelelően különböző hullámhosszúságú és csúcsintenzitású femtoszekundumos impulzusok alkalmazásával különböző felületi morfológiák létrehozását és azok kialakulásáért felelős alapfolyamatok vizsgálatát végeztem el.
- A plazmonikus térnövekmény polarizáció alapú hangolása: Kitűzött célom volt kísérletileg validálni egy sokoldalú módszert a plazmonikus nanorészecskéken kialakuló lokális térnövekmény hangolására, kihasználva a plazmonmódusok interferenciáját. A módszer hatékonyságának különböző méretű nanorészecskék esetén történő bizonyításával új lehetőségek nyílnak különféle, dinamikus hangolható eszközök, például ultragyors nanooptikai kapcsolók implementálására.
- Ultragyors fotoemisszió a többfotonos emissziós tartományban: Rezonáns plazmonikus nanorészecskéket közeli infravörös femtoszekundumos impulzusokkal megvilágítva célom volt tanulmányozni a fotoemittált elektronok visszaszórását a többfoton-indukált emissziós tartományban. Különböző hullámhosszúságú gerjesztő impulzusok és egy repülési idő spektrométer alkalmazásával az elektronok kinetikus energia spektrumai elegendően nagy felbontásban mérhetők, melyek segítségével az ultragyors emissziós folyamatok jól vizsgálhatók, ide értve a nanorészecskék felszínének közvetlen közelében végbemenő ponderomotoros elektrongyorsítási folyamatokat is.

Új tudományos eredmények, tézispontok

A fenti célkitűzéseknek megfelelően a következő új tudományos eredményeket értem el lézeres nanostrukturálási kísérleteimmel, illetve ultragyors plazmonikus fotoemissziós kutatásokkal:

- I. Indium-ón-oxid (ITO) vékonyrétegeken lézerindukált periodikus felületi struktúrákat (LIPSS) hoztam létre femtoszekundumos, közeli infravörös lézerimpulzusokkal. 1,6 és 2,4 μm közötti hullámhosszak alkalmazásával LIPSS morfológiákat figyeltem meg, melyek periodicitása közel volt a $\lambda/10$ skálázáshoz. Inhomogén, lokális abláció előidézésével különböző morfológiákat azonosítottam a vékonyréteg felületén, és meghatároztam a keletkezésükhöz tartozó küszöbintenzitás-értékeket [T1].

- II. Kísérletileg igazoltam egy új megközelítést a plazmonikus nanorészecskéken kialakuló térnövekmény in-situ befolyásolására. Három különféle rezonanciájú nanorészecske és három különböző lézerpolarizáció mellett mértem az egyes konfigurációk esetén kialakuló közeltér maximális térnövekményének értékét egy ultragyors fotoemisszió alapuló módszer segítségével. Megmutattam, hogy kizárólag a beeső lézerimpulzusok polarizációjának változtatásával a plazmonmódusok fázisfüggő keverését lehet előidézni. Ezzel pedig jelentősen megnövelt térerősségű közelterek alakulhatnak ki, melyek a hagyományos, geometriai alapú hangoláshoz képest akár 50%-kal magasabb térnövekményekhez vezetnek [T2].
- III. Kísérletileg vizsgáltam a többfoton-indukált és erőstér fotoemissziós tartományok közötti átmenetet közeli infravörös femtoszekundumos impulzusok és rezonáns plazmonikus nanorészecskék felhasználásával. Ezzel a módszerrel igazoltam, hogy az ultragyors fotoemissziós folyamatok során – ellentétben a korábbi megállapításokkal – a fotoemittált elektronok visszaszórása jelen van a többfoton-indukált emissziós tartományban is, nem csak az erőstér-tartományban [T3].

Az ultragyors nanooptika területén végzett kutatásaim eredményei hozzájárulnak a nanoméretű skálán lezajló ultragyors kölcsönhatások teljes megértéséhez számos kapcsolódó kutatási területen a lézeres felületi megmunkálástól kezdve a plazmonos térnövekmény kontrollján át egészen az ultragyors kölcsönhatások alapjelenségeinek kutatásáig.

A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

- T1 B. Bánhegyi, L. Péter, P. Dombi, and Zs. Pápa, "Femtosecond LIPSS on indium-tin-oxide thin films at IR wavelengths", *Appl. Opt.* **61**, 386–391 (2022).
<https://doi.org/10.1364/AO.444653>
- T2 B. Bánhegyi, L. Tóth, P. Dombi, J. Budai, V. Hanus, P. Rácz, and Zs. Pápa, "Controlling Plasmonic Field Enhancement via the Interference of Orthogonal Plasmonic Modes", *Plasmonics*, online publikált cikk (2024). <https://doi.org/10.1007/s11468-024-02212-9>
- T3 B. Bánhegyi, G. Zs. Kiss, Zs. Pápa, P. Sándor, L. Tóth, L. Péter, P. Rácz and P. Dombi, „Nanoplasmonic photoelectron rescattering in the multi-photon-induced emission regime”, *Phys. Rev. Lett.* **133**, 033801 (2024).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.133.033801>

Irodalmi hivatkozások

1. P. Dombi, Z. Pápa, J. Vogelsang, S. V. Yalunin, M. Siviş, G. Herink, S. Schäfer, P. Groß, C. Ropers, and C. Lienau, "Strong-field nano-optics," *Rev. Mod. Phys.* **92**, 025003 (2020).
2. P. Vasa, C. Ropers, R. Pomraenke, and C. Lienau, "Ultra-fast nano-optics," *Laser Photonics Rev.* **3**, 483–507 (2009).
3. G. Günter, A. A. Anappara, J. Hees, A. Sell, G. Biasiol, L. Sorba, S. De Liberato, C. Ciuti, A. Tredicucci, A. Leitenstorfer, and R. Huber, "Sub-cycle switch-on of ultrastrong light–matter interaction," *Nature* **458**, 178–181 (2009).
4. N. Rivera and I. Kaminer, "Light–matter interactions with photonic quasiparticles," *Nat. Rev. Phys.* **2**, 538–561 (2020).
5. B. K. Nayak and M. C. Gupta, "Self-organized micro/nano structures in metal surfaces by ultrafast laser irradiation," *Opt. Lasers Eng.* **48**, 940–949 (2010).

6. M. E. Stewart, C. R. Anderton, L. B. Thompson, J. Maria, S. K. Gray, J. A. Rogers, and R. G. Nuzzo, "Nanostructured Plasmonic Sensors," *Chem. Rev.* **108**, 494–521 (2008).
7. X. Zhang, Y. L. Chen, R.-S. Liu, and D. P. Tsai, "Plasmonic photocatalysis," *Rep. Prog. Phys.* **76**, 046401 (2013).
8. W. Du, T. Wang, H.-S. Chu, and C. A. Nijhuis, "Highly efficient on-chip direct electro- plasmonic transducers," *Nat. Photonics* **11**, 623–627 (2017).
9. M. Oliverio, S. Perotto, G. C. Messina, L. Lovato, and F. De Angelis, "Chemical Functionalization of Plasmonic Surface Biosensors: A Tutorial Review on Issues, Strategies, and Costs," *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9**, 29394–29411 (2017).
10. A. Gombert, W. Glaubitt, K. Rose, J. Dreiholz, B. Bläsi, A. Heinzl, D. Sporn, W. Döll, and V. Wittwer, "Subwavelength-structured antireflective surfaces on glass," *Thin Solid Films* **351**, 73–78 (1999).
11. A. Y. Vorobyev and C. Guo, "Antireflection effect of femtosecond laser-induced periodic surface structures on silicon," *Opt. Express* **19**, A1031–A1036 (2011).
12. H. Wang, F. Zhang, and J. Duan, "Subwavelength Quasi-Periodic Array for Infrared Antireflection," *Nanomaterials* **12**, 3520 (2022).
13. S. Höhm, M. Herzlieb, A. Rosenfeld, J. Krüger, and J. Bonse, "Dynamics of the formation of laser-induced periodic surface structures (LIPSS) upon femtosecond two-color double-pulse irradiation of metals, semiconductors, and dielectrics," *Appl. Surf. Sci.* **374**, 331–338 (2016).
14. M. Sanz, E. Rebollar, R. A. Ganeev, and M. Castillejo, "Nanosecond laser-induced periodic surface structures on wide band-gap semiconductors," *Appl. Surf. Sci.* **278**, 325–329 (2013).
15. F. A. Müller, C. Kunz, and S. Gräf, "Bio-Inspired Functional Surfaces Based on Laser-Induced Periodic Surface Structures," *Materials* **9**, 476 (2016).
16. S. Bai, D. Serien, Y. Ma, K. Obata, and K. Sugioka, "Attomolar Sensing Based on Liquid Interface-Assisted Surface-Enhanced Raman Scattering in Microfluidic Chip by Femtosecond Laser Processing," *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 42328–42338 (2020).
17. D. Alcaraz Iranzo, S. Nanot, E. J. C. Dias, I. Epstein, C. Peng, D. K. Efetov, M. B. Lundberg, R. Parret, J. Osmond, J.-Y. Hong, J. Kong, D. R. Englund, N. M. R. Peres, and F. H. L. Koppens, "Probing the ultimate plasmon confinement limits with a van der Waals heterostructure," *Science* **360**, 291–295 (2018).
18. H. Shen, P. Bienstman, and B. Maes, "Plasmonic absorption enhancement in organic solar cells with thin active layers," *J. Appl. Phys.* **106**, 073109 (2009).
19. K. Aslan, J. R. Lakowicz, and C. D. Geddes, "Plasmon light scattering in biology and medicine: new sensing approaches, visions and perspectives," *Curr. Opin. Chem. Biol.* **9**, 538–544 (2005).
20. A. Bouhelier, M. Beversluis, A. Hartschuh, and L. Novotny, "Near-Field Second-Harmonic Generation Induced by Local Field Enhancement," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 013903 (2003).
21. S.-Y. Ding, J. Yi, J.-F. Li, B. Ren, D.-Y. Wu, R. Panneerselvam, and Z.-Q. Tian, "Nanostructure-based plasmon-enhanced Raman spectroscopy for surface analysis of materials," *Nat. Rev. Mater.* **1**, 1–16 (2016).

22. R. Zhang, Y. Zhang, Z. C. Dong, S. Jiang, C. Zhang, L. G. Chen, L. Zhang, Y. Liao, J. Aizpurua, Y. Luo, J. L. Yang, and J. G. Hou, "Chemical mapping of a single molecule by plasmon-enhanced Raman scattering," *Nature* **498**, 82–86 (2013).
23. J. Homola, "Surface Plasmon Resonance Sensors for Detection of Chemical and Biological Species," *Chem. Rev.* **108**, 462–493 (2008).
24. W. Li and J. G. Valentine, "Harvesting the loss: surface plasmon-based hot electron photodetection," *Nanophotonics* **6**, 177–191 (2017).
25. C.-H. Chou and F.-C. Chen, "Plasmonic nanostructures for light trapping in organic photovoltaic devices," *Nanoscale* **6**, 8444–8458 (2014).
26. Y. H. Jang, Y. J. Jang, S. Kim, L. N. Quan, K. Chung, and D. H. Kim, "Plasmonic Solar Cells: From Rational Design to Mechanism Overview," *Chem. Rev.* **116**, 14982–15034 (2016).
27. C. L. Nehl and J. H. Hafner, "Shape-dependent plasmon resonances of gold nanoparticles," *J. Mater. Chem.* **18**, 2415–2419 (2008).
28. N. Halas, "Playing with Plasmons: Tuning the Optical Resonant Properties of Metallic Nanoshells," *MRS Bull.* **30**, 362–367 (2005).
29. K. Kolwas and A. Derkachova, "Plasmonic abilities of gold and silver spherical nanoantennas in terms of size dependent multipolar resonance frequencies and plasmon damping rates," *Opto-Electron. Rev.* **18**, 429–437 (2010).
30. P. Rácz, Z. Pápa, I. Márton, J. Budai, P. Wróbel, T. Stefaniuk, C. Prietl, J. R. Krenn, and P. Dombi, "Measurement of Nanoplasmonic Field Enhancement with Ultrafast Photoemission," *Nano Lett.* **17**, 1181–1186 (2017).
31. S. Kim, J. Jin, Y.-J. Kim, I.-Y. Park, Y. Kim, and S.-W. Kim, "High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement," *Nature* **453**, 757–760 (2008).
32. J. H. Kang, D. S. Kim, and Q.-H. Park, "Local Capacitor Model for Plasmonic Electric Field Enhancement," *Phys. Rev. Lett.* **102**, 093906 (2009).
33. P. Dombi, A. Hörl, P. Rácz, I. Márton, A. Trügler, J. R. Krenn, and U. Hohenester, "Ultrafast Strong-Field Photoemission from Plasmonic Nanoparticles," *Nano Lett.* **13**, 674–678 (2013).
34. B. Lovász, P. Sándor, G.-Z. Kiss, B. Bánhegyi, P. Rácz, Z. Pápa, J. Budai, C. Prietl, J. R. Krenn, and P. Dombi, "Nonadiabatic Nano-optical Tunneling of Photoelectrons in Plasmonic Near-Fields," *Nano Lett.* **22**, 2303–2308 (2022).
35. M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, "Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **21**, L31 (1988).
36. T. Brabec and F. Krausz, "Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics," *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545–591 (2000).
37. B. Bódi, M. Aladi, P. Rácz, I. B. Földes, and P. Dombi, "High harmonic generation on noble gas clusters," *Opt. Express* **27**, 26721–26727 (2019).
38. M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, "Attosecond metrology," *Nature* **414**, 509–513 (2001).

39. P. B. Corkum and F. Krausz, "Attosecond science," *Nat. Phys.* **3**, 381–387 (2007).
40. F. Krausz and M. Ivanov, "Attosecond physics," *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163–234 (2009).
41. G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde, and C. Ropers, "Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion," *Nature* **483**, 190–193 (2012).
42. K. E. Echternkamp, G. Herink, S. V. Yalunin, K. Rademann, S. Schäfer, and C. Ropers, "Strong-field photoemission in nanotip near-fields: from quiver to sub-cycle electron dynamics," *Appl. Phys. B* **122**, 80 (2016).
43. J. Schötz, S. Mitra, H. Fuest, M. Neuhaus, W. A. Okell, M. Förster, T. Paschen, M. F. Ciappina, H. Yanagisawa, P. Wnuk, P. Hommelhoff, and M. F. Kling, "Nonadiabatic ponderomotive effects in photoemission from nanotips in intense midinfrared laser fields," *Phys. Rev. A* **97**, 013413 (2018).
44. M. Borz, M. H. Mammez, I. Blum, J. Houard, G. D. Costa, F. Delaroche, S. Iddahcen, A. Haboucha, A. Hideur, V. I. Kleshch, A. N. Obraztsov, and A. Vella, "Photoassisted and multiphoton emission from single-crystal diamond needles," *Nanoscale* **11**, 6852–6858 (2019).
45. B. Piglosiewicz, S. Schmidt, D. J. Park, J. Vogelsang, P. Groß, C. Manzoni, P. Farinello, G. Cerullo, and C. Lienau, "Carrier-envelope phase effects on the strong-field photoemission of electrons from metallic nanostructures," *Nat. Photonics* **8**, 37–42 (2014).
46. J. A. Sobota, Y. He, and Z.-X. Shen, "Angle-resolved photoemission studies of quantum materials," *Rev. Mod. Phys.* **93**, 025006 (2021).
47. J. Vogelsang, J. Robin, B. J. Nagy, P. Dombi, D. Rosenkranz, M. Schiek, P. Groß, and C. Lienau, "Ultrafast Electron Emission from a Sharp Metal Nanotaper Driven by Adiabatic Nanofocusing of Surface Plasmons," *Nano Lett.* **15**, 4685–4691 (2015).