# Maák Pál bírálati kérdései és az azokra adott válaszok

Bánhegyi Balázs

Ultrafast Nano-optical Interactions of Femtosecond Near-Infrared Laser Pulses with Solids

című PhD disszertációjának bírálatához.

Szeretném megköszönni Dr. Maák Pál bírálati munkáját és a dolgozatomra fordított idejét. Az általa megfogalmazott kérdések és építő jellegű kritikák rendkívül értékesek voltak számomra, és segítettek új megvilágításba helyezni a dolgozat kérdéses részeit.

A következőkben a bírálatban megfogalmazott kérdésekre és megjegyzésekre válaszolok:

 Nagyon szemléletes az átmeneti tartomány kimérése is a sokfotonos és az alagúteffektuson alapuló elektron-szabadulás között. Ehhez kapcsolódik is az első kérdésem, hogy mi volt az indoka, hogy nem mérték meg ugyanezt rövidebb rudakon, élesebb rezonancia mellett 800 nm körüli hullámhosszokon.

A fotoemissziós tartományok közötti átmenet, valamint a nem-adiabatikus alagutazás vizsgálata 800 nm-es hullámhossz és rezonáns nanorudak esetén a csoport korábbi kutatása keretein belül valósult meg [1]. Ezen munka egyik fő eredménye az átmeneti tartományban (1,3 és 2,2 közötti Keldis-paraméterek mellett) tapasztalt fotoemissziós elektrondinamika, mely egyszerre mutat a sokfoton emissziós tartományra jellemző nemlinearitást, és az alagútemissziós tartományra jellemző elektron-visszaszórást.

2. A 2. ábra kevéssé van magyarázva a szövegben. Több görbe van, amelyek értelmezéséhez a szöveg nem nyújt világos hátteret. Mit jelentenek pontosan az egyenesek? A következtetés levonása szempontjából fontosak, a szöveg szerint, de ehhez mérten minimális magyarázat fűződik hozzájuk. Az ábra alatti bekezdés a dolgozat alapján számomra értelmezhetetlen.

A disszertáció 2. ábrájának egy módosított változata az 1. ábrán látható. A (36)-os képlet alapján (melyben tévedésből hiányzik a k<sub>0</sub> hullámszám) a 1. ábrán is látható módon egy adott frekvencián a felületi plazmon polaritonokhoz tartozó  $\beta$  terjedési együttható nagyobb, mint az azonos frekvenciájú, szabad térben terjedő foton  $k_0$  hullámszáma. Ez az ábrán is megfigyelhető, ahogy alacsonyabb frekvenciáktól kezdődően a felületi plazmonok diszperziós relációjának valós részét reprezentáló görbék (piros, illetve kék pontozott görbék) elválnak a levegőben, illetve a szilíciumdioxid üvegben (SiO<sub>2</sub>) történő szabad terjedést képviselő egyenesektől (piros, illetve kék folytonos egyenesek). Ezen  $\beta > k_0$  körülmény miatt szükséges a felületi plazmonok keltéséhez speciális becsatolás (ráccsal vagy prizmával).



- 1. ábra. Felületi plazmonok diszperziós relációja fém-levegő (piros görbék) és fém-SiO<sub>2</sub> (kék görbék) határfelületek mentén összehasonlítva a szabad térben (levegő és SiO<sub>2</sub>) történő terjedést reprezentáló egyenesekkel.
- 3. A 37-43 egyenletekben az egyes változók definíciója nem világos. Mit jelent az "a" jelölés, mi a "A" és "B" együtthatók értelme?

Az "*a*" jelöli a modellként használt homogén, izotróp gömb sugarát. A képletekben szereplő " $A_i$ " és " $B_i$ " együtthatók a gömb belsejében tapasztalható, illetve a gömbön kívüli elektromos térre alkalmazott r = a, illetve  $r \to \infty$  határfeltételek alapján kaphatók meg [2].

4. A 20. oldal utolsó előtti bekezdésében megadja a kulcsfontosságú "field enhancement" értelmezését egy szövegben, de ez véleményem szerint nem elég pontos. Nagy szükség lett volna itt egy képlet és egy jelölés (akár Q?) bevezetésére, mert a field enhancement faktor nagy szerepet kap a továbbiakban és a tudományos eredményekben. Kérdésem, hogy helyes az itt megadott arány? Valóban a gerjesztő és a lokális térerősség aránya a "field enhancement" faktor?

A térnövekmény, avagy "field enhancement factor" kifejezés valóban utalhat az elektromos térerősségre, illetve a tér intenzitására is. Az irodalom túlnyomórészt [2] a felület mentén kialakuló ( $E_{loc}$ ) és a beeső ( $E_{in}$ ) elektromos térerősség hányadosaként hivatkozik rá. Egy korábbi munka [3] ugyanezen térnövekményt az elektromos térerősség vektorok abszolútérték négyzeteinek hányadosával definiálja. Mindezek mellett az irodalomban megtalálható az intenzitás növekmény "intensity enhancement" kifejezés is ez utóbbi esetre [4].

A dolgozatomban később (70. oldal, (64)-es képlet) bevezetett Q jelöli a térnövekményt mely a plazmonikus forró-pontokban kialakuló maximális elektromos térerősség és a beeső lézerimpulzusok maximális térerősségének hányadosa.

5. A 44. képletben mit jelent az a? Mit jelent a részecske mérete, amivel a polarizálhatóság arányos? A polarizálhatóság a részecske térfogatától függ lineárisan? A leírás nem elég pontos és félremagyarázható.

A (44)-es képletben az "*a*" paraméter a modellként használt homogén, izotróp gömb sugarát jelöli. Mivel ezen esetben a nanorészecske jellemző mérete minden irányból megegyezik (nincs a lézer polarizációs iránya által kitüntetett orientáció), a polarizálhatóság valóban a gömbszerű részecske térfogatától lineárisan függ. Ezen modell tárgyalása más összefoglaló munkákban is hasonlóan jelenik meg [5 - 8].

6. A 45. egyenlet fontos, de a forrása nem követhető. Az  $\omega_p$  a plazmafrekvencia?

A (45)-ös képlet forrása a következő [2]:

• A szabad elektron gáz dielektromos függvénye egy  $\omega$  frekvenciájú külső elektromos tér esetén a Drude-modell alapján:

 $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i\gamma\omega}$  ahol  $\omega_p$  a plazma frekvencia,  $\gamma$  az elektron-elektron ütközések miatti csillapítási együttható,  $\varepsilon_{\infty}$  pedig egy, a magas frekvenciák esetén érvényes tag.

• Fémek esetén jó közelítésként használható a  $\gamma = 0$  csillapítás nélküli eset, valamint az alacsonyabb frekvenciák esetén  $\varepsilon_{\infty}$  is elhagyható, amiből a dielektromos függvény a következő formára módosul:

$$\varepsilon(\omega) = -\frac{\omega_p^2}{\omega^2}$$

- Vákuum környezet esetén  $\varepsilon_m = 1$ , így a Frölich-feltételből a következő adódik: Re[ $\varepsilon(\omega)$ ] =  $-2\varepsilon_m = -2$ .
- Ezen egyenletek kombinálásával a következő összefüggés kapható:

$$\frac{\omega_p^2}{\omega^2} = -2 \to \omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}}$$

- Valódi fémek esetén, vagyis az elektron ütközések miatti csillapítás, valamint a magasfrekvenciás tag figyelembe vételével a fenti levezetés módosításával kapható meg a dipól plazmonrezonancia közelítőleg  $\omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{3}}$  értéke.
- 7. Miért kellett az impulzusoknak az ITO-t hordozó szubsztráton áthaladni, hogy elérjék a mintát? Nem teljesen világos a leírásból, hogy a hordozó transzmissziója a kiválasztott hullámhosszokon miért olyan kulcsfontosságú. Fontosnak tartanék egy ábrát, amely a megvilágítás geometriáját ábrázolja a mintán a rétegek szempontjából, amiből kiderülne, hogy melyik felületen van a fókuszfolt, hol nyelődik el a nyaláb és honnan tűnik el anyag, melyik felület érdessége befolyásolja a struktúrák kialakulását.

Az megvilágítási geometria az 1. ábrán látható.



2. Ábra. Az ITO réteggel bevont üveg szubsztrát megvilágítási geometriája. A feltüntetett Rayleigh-hossz értéke 2.0 μm-es megvilágítás mellett érvényes.

Ezen elrendezés abból adódik, hogy a mérések kezdeti fázisában az ITO réteg roncsolási küszöbének mérése volt a cél. Fotoemissziós mérések során ezen vezető vékonyréteg felel a fém nanorészecskék földeléséért, ezáltal elkerülve a minta elektronemisszió miatti feltöltődését. A mérések során az optimális elektronbefogás elérése érdekében az ITO rétegen kialakított nanorészecske mezők az elektron spektrométer belépő apertúrája felé irányulnak. Emiatt a gerjesztő lézerimpulzusok először az üveg szubsztráton, majd az ITO rétegen áthaladva érik el a nanorészecske mezőket. Mindezek miatt a LIPSS mérések során is ennek megfelelő megvilágítási geometriát alkalmaztam.

Mivel ezen megvilágítási geometria esetén az impulzusok az impulzusenergia egy része elnyelődik a hordozóban, így annak transzmissziójának mérése az egyes hullámhosszak mellett kiemelt fontosságú volt a vékonyrétegre eső csúcsintenzitás meghatározásához.

Az atomerő mikroszkópos vizsgálatok során az ITO-réteg szubsztráttal átellenes "szabad" oldalán létrejött, annak felvitele során önrendeződéssel kialakuló felületi érdesség meghatározása valósult meg. Ezen kezdeti kvázi-periodikus érdességmintázatok szolgáltak az EM szimulációk alapjaként, periodikusan lokalizálva a beeső impulzusok által képviselt elektromos teret, mely később a periodikus réteg-leváláshoz vezetett.

8. Hogyan ellenőrizte a mérés során, hogy a beállítás után a kívánt réteg tényleg a fókuszsíkban van. Azaz jó lenne az említett késéles módszerről egy bővebb leírást adni.

A használt közeli-infravörös hullámhosszak (1,6, 2,0 és 2,4 µm), valamint a gyenge fókuszálás (f = 400 mm) miatt a Rayleigh-hossz  $\approx$ 2,3 – 3,4 mm-nek adódott. Ezen értékek nagyságrendekkel nagyobbak, mint az ITO réteg közel 150 nm-es vastagsága, valamint többszörösei a szubsztrát 1 mm-es vastagságának. Mindezen körülmények miatt az ITO réteg fókuszsíkba helyezésének pontossága egy  $\approx$ 0,5 mm-es tartományban volt kritikus. Mindez a már említett késéles módszer segítségével történt meg:

0. A késélt az üveg szubsztrát ITO réteget is tartalmazó felszínével egy síkban helyeztem el a mintatartóban.

- 1. A késéllel történő fókuszfoltmérés során megkapható a késél felszíne által letapogatott fókuszsík pozíciója az optikai tengely mentén.
- 2. Mivel a késél felszínének síkja és az ITO réteg síkja közötti különbség a 0,5 mmes hibahatáron belül helyezkedik el, jó közelítéssel ezen pozíció biztosítja az ITO vékonyréteg fókuszsíkban történő megvilágítását.



3. Az ITO vékonyréteget tartalmazó minta pozicionálásának lépései a késél segítségével.

# 9. Mit jelent a "secondary beam" fogalma a beállítás során? Az idler vagy a signal része, ha az utóbbi, akkor mi biztosítja a nyalábok párhuzamosságát, vagy egytengelyűségét?

A méréseim során a parametrikus erősítő IDL = "idler" interakcióját alkalmaztam, mely során a nemlineáris frekvenciakonverziós kölcsönhatással keletkező idler nyalábot használtam. A "secondary beam" az "idler" mellett elhanyagolható impulzusenergiával megjelenő maradék "signal" nyalábra utalt melynek hullámhossza a látható tartományba esett, így alkalmas volt vizuális megfigyelésre.

A nyalábok egytengelyűségével kapcsolatban: az általam használt erősítő nemlineáris interakciói kollineáris elrendezésben valósultak meg, így a signal és idler nyalábok azonos irányban léptek ki az erősítőből. Ennek ellenőrzése a parametrikus erősítő napi szintű beállításának része, így a nyalábok megfelelő átfedése biztosítja az elérhető maximális kimeneti teljesítményt. Ennek köszönhetően a nyalábok több méternyi optikai úthossznyi terjedés után is közel átfedésben maradnak. Mivel a méréseim az erősítő kimenete utáni első ~50 cm-ben valósultak meg, ezen nyalábok jó közelítéssel átfedtek, így lefókuszáláskor a CCD kamera felbontóképességén belül egy pontba estek. Ezen pontosság elegendőnek bizonyult az egymás után következő LIPSS mérések során a fókuszfoltok elkülönítéséhez, így elkerülve azok átfedését.

10. A 39 ábrán nem világos, hogy melyik adatnak mi a forrása, mi az irodalom és mi esetleg saját szimuláció vagy mérés. Az ábraaláírást hiányosnak érzem.

A 39-es ábra "a" részében található ITO rétegre vonatkozó transzmissziós adatsorok (szürke markerek, illetve kék folytonos görbe), valamint a "b" részében található, üveg szubsztrátra vonatkozó adatsorokat (kék folytonos és szaggatott görbék) egy szerzőtársam, Pápa Zsuzsanna szegedi PerkinElmer Lambda 1050 spektrofotométerrel végzett mérései szolgáltatták. A "b" rész zöld folytonos, illetve szaggatott görbéi egy korábbi munkából átvett adatsorok [9].

11. A 42 ábrán két különböző Sn koncentrációt ábrázoló görbe van, miért? Ugyanakkor a szövegben Si koncentrációt is említ, ez a szubsztrátból származik? Nem egyértelmű egyáltalán.

A 42-es ábrán a legfelső, fekete színnel ábrázolt adatsor esetén téves az "Sn" felirat, ezen adatok az "Si" koncentrációt mutatják mely a kvarcüveg szubsztrátból származik. A javított ábra:



4. Ábra. (a) SEM felvétel a megvilágított felszínről és az energia-diszperzív röntgenspektroszkópiai (EDS) vizsgálat pásztázási útvonala. (b) Az EDS által meghatározott relatív anyagösszetétel a pásztázási útvonal mentén.

12. A 43. ábrán nem világos, hogy melyik az ITO és melyik a szubsztrát, jelölni lett volna jó, hasonlóképpen hiányzik a nagyobb periódusú struktúrák kijelölése. Emiatt nem egyértelmű az ábráról levonható következtetés. A szubsztrátban eredetileg jelen levő periodikus összetétel vagy felületi változás okozná a periodikus rétegleválást? Ha sem a szubsztrátban sem a rétegben nincs ilyen periódusú struktúraváltozás, akkor nehezen deríthető ki a tér-ingadozás oka. Viszont megvilágítatlan, nem kezelt minták összetétel-elemzése, hasonlóan a kezelt mintákhoz esetleg adhatott volna egy plusz információt erről. Kérdésem, hogy volt-e ilyen a kísérlet során?

A 43-as ábra leírása valóban nem pontos, hiányzik az ITO és szubsztrát feliratozása, mely szemléletesebben mutatná a kialakult felületi mintázatokat. Mindezt a 5. ábra mutatja:



5. ábra. (a) ITO vékonyréteg elektronmikroszkópos felvételen LSFL mintázatokkal. (b) ITO felület HSFL mintázatokkal és abláció során szabaddá vált szubsztrát felszín.

A periodikus ablációt az ITO rétegen eredetileg is megfigyelhető felületi mintázat miatti periodikus tér-lokalizáció okozza. Mindennek további alátámasztására valóban alkalmas módszer lett volna az említett kezeletlen minták összetétel-elemzése, ez viszont nem történt meg.

13. A plazmonikus sajátmódusok definíciója hiányos, miért nevezi őket sajátmódusoknak? Összesen hány sajátmódust lehet gerjeszteni, van erre korlát, és mi különbözteti őket meg, ezt jó lenne már az első részekben tisztázni.

Plazmonikus nanorészecskék esetén az "eigenmode" azaz sajátmódus kifejezés azon rezonanciaközeli gerjesztéssel kialakuló lokalizált plazmon módusokra utal, melyekhez szignifikáns térnövekmény tartozik. A kifejezést a vonatkozó irodalom, illetve számos korábbi munka is alkalmazza különféle alakú és tulajdonságú plazmonikus nanorészecskék esetén [10 - 12]. Jelen esetben a sajátmódusok kifejezés a nanorészecskén gerjesztett ortogonális plazmon módusokra utal melyekhez tartozó térnövekmények addíciója azok fázishelyes interferenciája által valósult meg.

A nanorészecskén gerjeszthető módusok számát és a hozzá tartozó térnövekmények értékét első sorban a részecske geometriája és anyagi minősége határozza meg. Egyszerű geometriával rendelkező nanorészecskék általában két, egymásra merőleges, jól definiálható plazmon rezonanciával rendelkeznek, melyek a hosszanti illetve kereszt irányú tengelyük mentén gerjeszthetők és melyekhez szignifikáns térnövekmény tartozik. Bonyolultabb nanostruktúrák esetén magasabb rendű, gyengébb rezonanciák is megjelenhetnek [12, 13].

14. Amikor két módus gerjesztéséről van szó, a 63. egyenletben, mit jelent a  $\psi_{\text{plas}}$ , hogyan definiáljuk? Mit jelent a gerjesztő tér esetében a normális beesés? (66. oldal). A 46. b. ábrán mit jelent a  $\Delta$ ? A "plasmon phase" ugyanazt jelenti, mint a módusok közötti fáziskülönbség? Tisztázni kellene, mert az ábra információja nehezen jön át.

A 63-as egyenletben  $\varphi_{plas}$  jelöli a gerjesztett, ortogonális plazmon módusok közti fáziskülönbséget. Ez a 46(b) ábrán tévedésből  $\Delta$ -val történt jelölésre, valamint később a szövegben is "plasmon phase"-ként történik utalás.

A gerjesztő tér esetén a normális beesés a lézernyaláb minta felületére – valamint ezáltal a plazmonikus nanorészecskék szabad felszínére – történő merőleges beesését jelöli.

15. A 68. oldalon ismertetett ellenőrző mérés leírása nekem eléggé hiányos. Nem nagyon értettem meg, hogy hogy jött a gerjesztő fény, mit látott a spektrométer, és hogyan kapcsolódott a 10-es nagyítású objektívvel. Pedig a mérés és a szimuláció egyezősége szépen demonstrálja a szimuláció megfelelőségét, ha a mérés körülményeiről pontos információ állna rendelkezésre.

A nanorészecskék elektronsugaras litográfiával történő előállítását és azok extinkciós spektrumának mérését az ELI-ALPS-ban végezték el.

Az extinkciós spektrum mérésének alapja egy szélessávú, állítható polarizációjú fényforrás, mellyel megvilágítva a nanorészecske mátrixot az azon transzmittált fény optikai spektrumának mérése valósul meg. Mivel a nanorészecske mátrix részben elnyeli a rezonanciahullámhossz környéki spektrális komponenseket, így ismerve a megvilágító fényforrás (referencia) és a transzmittált fény optikai spektrumának ( $I_{ref}$  illetve  $I_{trans}$ ) különbségét, a nanorészecskék extinkciós spektruma meghatározható különböző megvilágító polarizációk mellett:



 $C_{\rm ext} = \log_{10} \frac{I_{\rm ref}}{I_{\rm trans}}$ (1)

6. ábra. A nanorészecske minták extinkciós spektrumának vázlatos mérési elrendezése.

Az extinkciós spektrum méréséhez szükséges megvilágító fényforrásként egy Zeiss Axio Imager mikroszkóp halogénlámpája szolgált mely polarizációjának hangolása a beépített Thorlabs SAQWP05M-1700 szélessávú  $\lambda/4$ -es lemez segítségével történt. A transzmittált fény optikai spektrumának meghatározása során a mikroszkóp beépített, 10-szeres nagyítású és 0,25-ös numerikus apertúrájú objektívével történt meg a fény optikai szálba történő csatolása. A spektrum mérése egy Avantes AvaSpec-ULS3648-USB-2 típusú spektrométerrel történt.

#### 16. A 47 b. ábra legalsó paneljén mi indokolja, hogy két csúcs jelenik meg?

Kisebb, rövidebb arany nanorészecskék esetén a plazmonrezonancia általában dipólus módusban nyilvánul meg, amely egyetlen, jól definiált csúcsot eredményez a spektrumban. Ahogy a részecske mérete nő, a felület mentén a töltéssűrűség oszcillációi komplexebbé válnak, és megjelennek a magasabb rendű módusok is. melyek az extinkciós spektrumban extra csúcsokat generálnak [12, 13].

17. A nanorudak gerjesztésének leírásában nem választható szét egyértelműen a gerjesztő polarizáció és a gerjesztett módusok polarizációja. A 6. táblázatban sincs megjelölve, hogy melyik polarizáció és hogy szerepel az első oszlopban.

Fém nanorészecskéken gerjesztett kollektív elektronoszcillációk által képviselt elektromágneses tér a nanorészecske felülete mentén lokalizált, valamint egyszerű nanorészecske geometriák esetén a felületre közel merőleges irányú. Épp ezen tulajdonsága a lokalizált felületi plazmonoknak az, mely alkalmassá teszi őket az elektromágneses tér akár diffrakciólimit alá történő fókuszálására. Mindezek miatt fém nanorészecskéken gerjesztett lokalizált plazmonmódusok esetén nem beszélhetünk a hagyományos, elektromágneses hullámok esetén tárgyalt polarizációról.

A 6. táblázat első oszlopának elemei a gerjesztő lézer polarizációját jelölik. A táblázat többi oszlopa pedig a különböző méretű nanorészecskéken a különböző beeső polarizációk esetén ennek hatására – a felszín nagy görbületű tartományaiban lévő forró pontokban – kialakuló maximális térnövekmény értékét tartalmazza.

18. A 48. ábrán mi jelzi a teljes elektronszámot, amely 100%-nak felel meg? Az arányok kissé megtévesztőek.

A 48-as ábrán a teljes elektronszám az adott fotoelektron spektrumot alkotó, összes detektált elektron összegeként – a spektrum numerikus integrálásával nyert területként – adható meg. Az ábrán az arányok elsőre valóban megtévesztők lehetnek, mivel a fotoelektron spektrum ábrázolása fél-logaritmikus skálán történt meg.

19. Egy kis indoklás még jól jönne a hetedik táblázat és a hatodik táblázat összehasonlítása során, hogy miért nem a jobban illeszkedő, fázist is figyelembe vevő maximális értékeket hasonlította össze, hanem a gerjesztő lineáris polarizációk által külön-külön kapott növekedés összegét. Mi indokolja ezt, mert a mérés során ez a szituáció nem valósult meg, azaz a 7. táblázat értékeit a 6. táblázat vastag betűvel szedett értékeivel kellene összevetni? Nem tűnik teljesen bizonyítottnak így az sem, amit többször leír a szerző, hogy a maximális növekményt a gerjesztett módusok fázishelyes interferenciája adja.

A 6. táblázat vastagon szedett értékei a szimulációk során kapott maximális térnövekmény értékek, melyek a különböző méretű nanorészecskéken azon gerjesztő polarizációk mellett jönnek létre, melyeknél az előzetes számolások alapján a merőleges plazmonmódusok optimális szuperpozíciója megvalósul. Ugyanezen táblázat dőlt karakterekkel szedett értékei a szimulációk során kapott, egymásra merőleges plazmon módusok által képviselt térnövekmények összegei az egyes nanorészecskék esetén.

Mivel ezen térnövekmény értékek a különböző nanorészecskék esetén közel egyezőséget mutatnak, így belátható, hogy a vizsgált esetekben az alkalmazott polarizációjú gerjesztések során (45°-os lineáris, 45°-os elliptikus és cirkuláris) valóban

a különböző fázisban gerjesztett, egymásra merőleges (longitudinális és transzverzális) módusok szuperpozíciója valósul meg.

A mérések során ezen említett három polarizációs állapot alkalmazásával valósult meg a maximális térnövekmények mérése (lásd. 7. táblázat), így az 54-es ábrán a módszer szemléltetésének érdekében ezen értékeket hasonlítottam össze a szimulációk során kapott térnövekmény értékek összegével.

Az eredmények további alátámasztása érdekében valóban érdemes lett volna az egyes, merőleges módusokhoz tartozó térnövekmények kísérleti meghatározása mindhárom nanorészecske esetén a 0°-os és a 90°-os lineáris polarizációk alkalmazása mellett. Amennyiben az így kapott térnövekmények értékeinek összege valóban egyezőséget mutatna az általam mért maximális térnövekmény értékekkel, az további igazolása lenne a plazmon módusok szuperpozíciójára és a módszer alkalmazhatóságára. Erre a független bizonyítékra azonban nem volt szükség az állításom alátámasztásához.

20. A 79. oldalon nem világos, hogy mit jelöl az n<sub>oc</sub>, amely előbb 2, majd 5 értéket kapja a számítások során. A z tengely definíciója is kérdéses, mert a görbületre merőleges gyakorlatilag egy változó irányú tengelyt jelent a részecske mentén? (79. oldal teteje)

Az n<sub>oc</sub> a lézer impulzuson belüli optikai ciklusok számát jelöli. A Z tengely definíciója a nanorészecske legnagyobb görbületű pontjában, a maximális plazmonos térnövekménnyel leírható régióban a felületre merőleges, és a számolások ebben az egyetlen pontban írták le a fotoemissziót.

## 21. A 69. egyenletben megadott V(z) és a V<sub>loc</sub>(z) ugyanazt jelöli?

Igen, a  $V_{loc}(z)$  a fém lokális felületi potenciálját jelöli, a V(z) esetén a "loc" jelölés lemaradt.

22. Pontosan mit jelent a "switching off" a visszaszóródott elektronok hullámfüggvénye kapcsán? Matematikailag a 71 egyenlet tartalmazza a megfelelő hullámfüggvényt? Mennyire közelíti ez a számítás a reális képet, hiszen a lokális tér a direkt elektronokat is befolyásolja.

A 71-es egyenlet az elméleti számolás első lépését jelöli, mely szerint külön tárgyaljuk a fém-felületéről kilépő (" $0 \rightarrow \text{continuum}$ ") és a már a kontinuumba fotoemittált elektronok ("laser – driven") dinamikáját.

Második lépésként lehet kikapcsolni (switching off) a lokális potenciált a már lézertér által vezérelt elektron-hullámcsomagok számára: itt (73-as egyenlet) elhanyagoljuk a Hamilton operátorból a fém felületét leíró lokális potenciált, és csak a kinetikus tagot tartjuk meg. Ezen lépés által nem fog visszaszórodás bekövetkezni (a lézertér által eltorzított potenciál-gátról). Az így számolt elektronspektrumok csupán a direkt elektronokat fogják tartalmazni.

A visszaszórt elektronokat úgy kaphatjuk meg, hogy a külön számolt teljes elektroncsomagból (amikor a lokális potenciált nem hanyagoltuk el) kivonjuk a direkt elektroncsomagot.

A direkt elektronok, melyek a kísérlet/számolások végén eljutnának detektorba továbbra is "látják" a lokális fém-felületi potenciált, de csak a legelején az emisszió

során. Számukra nincs kikapcsolva az első tag a 71-es egyenletből. Azon direkt elektronokat, melyek még a külső EM tér által visszakerülnek a potenciálfalhoz és szóródnának már a visszaszórt elektronoknak tekintjük.

23. A 87. oldalon mit jelent a "backside" megvilágítási konfiguráció? Ha a szubsztráton át történő megvilágítást, indokolni kellene, hogy miért ezt választották.

A mérések során a hátsó megvilágítás azt jelenti, hogy a gerjesztő lézerimpulzusok először az üveg szubsztráton, majd az ITO rétegen áthaladva érik el a nanorészecske mezőket. Ezáltal az ITO rétegen kialakított nanorészecske mezőkből emittált elektronok az elektron spektrométer belépő apertúrája felé irányulnak, így azok optimális befogása érhető el.

24. A 60 b ábrán jó lenne látni, hogy melyik az x és melyik az y koordináta. Ezek definíciója korábban történt meg a szövegben, de csak áttételesen.

Valóban, a 60(b) ábrán érdemes lett volna a tengelyek megjelölése a következő módon:



7. Ábra. A szimulációk során használt nanorészecske geometria a felületi érdességgel. A zöld téglalappal jelölt terület reprezentálja a szimulációs térfogatot melyen belül a nagy görbületű forró pontban kialakuló maximális térnövekmény meghatározása történt.

25. A 62a ábrán jó lenne kijelölve látni a roncsolás okozta extra csúcsot, vagy egyéb effektust, mert így nem egyértelmű.

A következő módosított ábrán jelölve látható az anyagi roncsolás miatt megjelenő extra csúcs a fotoelektron-spektrumban:



 Ábra. Fotoelektron spektrum a plató régióból kiemelkedő mellékcsúccsal mely a magas lokális intenzitás (65 TW/cm<sup>2</sup>) miatti anyagi roncsolásra utal.

26. A 63 d-f ábrákon mire vonatkozik az y tengely felirata? Melyik térnek az intenzitása látható a színkódban? A 9. táblázat ugye csak a kis intenzitású gerjesztésre vonatkozik?

A 63(d-f) ábrákon a színkódolt fotoelektron spektrumok esetén az y-tengelyen feltüntetett intenzitás a plazmonikus forró pontokban érvényes – térnövekményt figyelembe vételével kapott – lokális nanooptikai térnek a csúcsintenzitása.

A színkódolás az egyes spektrumok felvétele során kapott elektronbeütés-számokat jelzi.



9. A disszertáció 63(d-f) ábrája mely a különböző hullámhosszak mellett, növekvő lokális csúcsintenzitások alkalmazásával kapott elektronspektrumokat mutatja.

A 9. táblázatban feltüntetett nemlinearitás értékek valóban az alacsonyabb lokális csúcsintenzitások mellett jellemző, többfoton-indukált emissziós tartományra érvényesek.

27. Érdekes, hogy a 64. ábra alapján az átmenet 1.6 mikron hullámhosszon csak jóval nagyobb gerjesztő intenzitás esetén jön létre, mint 2 és 2.4 mikron esetében. Van erre magyarázat?



10. ábra. Az egyes hullámhosszak esetén megfigyelt átmenet a sokfotonos és alagút emissziós tartományok között. A zöld intervallumok az átmeneti tartományokat jelölik.

Valóban, a mérések során a fotoemissziós tartományok közti átmenet különböző hullámhosszak mellett valamelyest eltérő lokális csúcsintenzitásoknál következett be. Ugyanakkor az ultragyors fotoemisszió vizsgálatánál az emissziós tartományok határának jellemzésére a lokális Keldis-paraméter a releváns mennyiség, mivel az nemcsak a lokális csúcsintenzitástól, hanem az alkalmazott hullámhossztól is függ. Kiszámítva a lokális Keldis paramétert minhárom hullámhossz esetén - figyelembe véve az egyes hullámhosszak esetén eltérő lokális maximális térnövekményt is - látható, hogy mindegyik esetben az átmenet  $3 \pm 0.5$  Keldis paraméter érték mellett jelent meg.

28. Kétségkívül a harmadik témakör legérdekesebb eredményeit a 64. ábra foglalja össze. Az összefüggéseket az a-c ábrán látható két, eltérő meredekségű illesztett görbék és a d-f ábrákon látható, a teljes gerjesztő intenzitástartományon jól illeszkedő, egyenletes meredekségű egyenesek között érdemes lenne jobban megvilágítani.

A 64(a-c) ábrákon látható, az integrált elektron hozamok intenzitásfüggésére különböző meredekséggel illesztett egyenesek a többfoton indukált, illetve alagút fotoemissziós tartományok közti átmenetet szemléltetik. Ezen illesztések igazolják, hogy míg alacsonyabb lokális csúcsintenzitások mellett a fotoelektronok kilépéséhez egyszerre több (meredekségtől függően 7, 9, illetve 11 db.) foton egyszerre történő abszorpciója szükséges, addig magasabb lokális csúcsintenzitások mellett a fém felületi potenciálja olyan mértékben torzulhat, hogy az elektronok alagutazás útján történő emissziója is jelentőssé válik.

Mindezek mellett a 64(d-f) ábrákon a levágási elektron energiák intenzitásfüggésére illesztett 10U<sub>p</sub> skálázás látható. Ezen egyenesek mindhárom használt hullámhossz esetén a mérés során alkalmazott teljes intenzitástartományon belül illeszkednek a levágási elektron energiákra. Ezek azt bizonyítják, hogy a levágási elektronok lokális csúcsintenzitással történő 10U<sub>p</sub> skálázása, és ezáltal a fotoelektronok visszaszórása nem csak a magasabb csúcsintenzitású, alagút emissziós tartományban van jelen, hanem az alacsonyabb csúcsintenzitások mellett érvényes többfoton indukált emissziós tartományban is.

### Hivatkozások

- [1] B. Lovász, P. Sándor, G.-Zs. Kiss, B. Bánhegyi, P. Rácz, Zs. Pápa, J. Budai, C. Prietl, J. R. Krenn, and P. Dombi, "Nonadiabatic Nano-optical Tunneling of Photoelectrons in Plasmonic Near-Fields" Nano Lett. 2022 22, 2303-2308, https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.1c04651
- [2] S. A. Maier, Plasmonics: Fundamentals and Applications, Springer US (2007) <u>https://doi.org/10.1007/0-387-37825-1</u>
- [3] W. H. Weber and G. W. Ford, Opt. Lett. 6, 122-124 (1981) <u>https://doi.org/10.1364/OL.6.000122</u>
- [4] S. Kim, J. Jin, Young-Jin Kim, I-Y. Park, Y. Kim & S-W. Kim, "High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement" Nature 453, 757–760 (2008) <u>https://doi.org/10.1038/nature07012</u>
- [5] Van de Hulst, H.C. Light Scattering by Small Particles. Courier Corporation, Chelmsford, MA. (1981)
- [6] C. F. Bohren, D. R. Huffman Absorption and Scattering of Light by Small Particles, Wiley (1983) <u>https://doi.org/10.1002/9783527618156</u>
- [7] U. Kreibig, M. Vollmer, Optical properties of metal clusters. Springer (1995) <u>https://doi.org/10.1007/978-3-662-09109-8</u>
- [8] L. Novotny, B. Hecht, Principles of nano-optics (2nd ed.). Cambridge University Press (2012) <u>https://doi.org/10.1017/CBO9780511794193</u>
- [9] J. W. Cleary, E. M. Smith, K. D. Leedy, G. Grzybowski, and J. Guo, "Optical and electrical properties of ultra-thin indium tin oxide nanofilms on silicon for infrared photonics," Opt. Mater. Express 8, 1231-1245 (2018) https://doi.org/10.1364/OME.8.001231
- [10] B. Ögüt, N. Talebi, R. Vogelgesang, W. Sigle, and P. A. van Aken, "Toroidal Plasmonic Eigenmodes in Oligomer Nanocavities for the Visible" Nano Lett. 12, 5239-5244 (2012) <u>https://doi.org/10.1021/nl302418n</u>
- [11] W. Wang, T. Christensen, A-P. Jauho, K. S. Thygesen, M. Wubs and N. A. Mortensen, A-P. Jauho, "Plasmonic eigenmodes in individual and bow-tie graphene nanotriangles" Sci Rep 5, 9535 (2015). <u>https://doi.org/10.1038/srep09535</u>
- [12] Emma Kathryn Payne, Kevin L. Shuford, Sungho Park, George C. Schatz, and Chad A. Mirkin, "Multipole Plasmon Resonances in Gold Nanorods" The Journal of Physical Chemistry B 110, 2150-2154 (2006) <u>https://doi.org/10.1021/jp056606x</u>
- [13] M. B. Cortie, F. Liu, M. D. Arnold, and Y. Niidome, "Multimode Resonances in Silver Nanocuboids" Langmuir 28, 9103-9112 (2012) <u>https://doi.org/10.1021/la300407u</u>