

De kortste laserpulsen ooit

De Nobelprijs voor de Natuurkunde 2023

Attosecondefysica is een nieuw vakgebied in de natuurkunde, waar de dynamica van elektronische processen (in atomen, moleculen of in gecondenseerde materie) bestuurd wordt via tijdsopgeloste experimenten, waar de bewegingen van elektronen op tijdschalen van attosecondes (1 attoseconde is 10^{-18} seconden) als het ware gefilmd worden. Dit jaar gaat de Nobelprijs voor de Natuurkunde naar drie experimentele pioniers van het vakgebied, die methoden hebben uitgevonden om attosecondelaserpulsen te produceren en te meten.

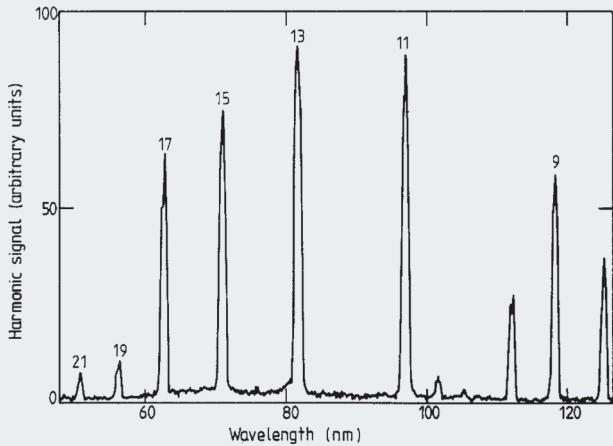
Op 3 oktober werden de winnaars van de Nobelprijs voor de Natuurkunde 2023 bekendgemaakt. Dit jaar ontvingen Anne L'Huillier, Pierre Agostini en Ferenc Krausz de Nobelprijs voor hun baanbrekende werk aan de ontwikkeling van attosecondelaserpulsen, de kortste laserpulsen die ooit in een laboratorium geproduceerd zijn. Met behulp van attosecondelaserpulsen (1 attoseconde = 10^{-18} seconden) is het mogelijk om de ultrasnelle bewegingen van elektronen zichtbaar te maken in atomen, moleculen en gecondenseerde materie. De fundamentele inzichten die op deze manier verkregen worden zijn potentieel van belang voor vele toepassingen. Zo kan inzicht in het gedrag van elektronen in moleculen het mogelijk maken om scheikundige processen in een gewenste richting te sturen, terwijl verbeterd inzicht in ladingstransport van elektronen kan

bijdragen aan de verdere ontwikkeling van zonnecellen. De Nobelprijs heeft dit jaar een klein Nederlands tintje: belangrijk voorbereidend werk werd op AMOLF in Amsterdam gedaan en AMOLF-medewerker Harm-Geert Muller speelde een belangrijke rol bij het werk waarvoor Pierre Agostini de Nobelprijs krijgt.

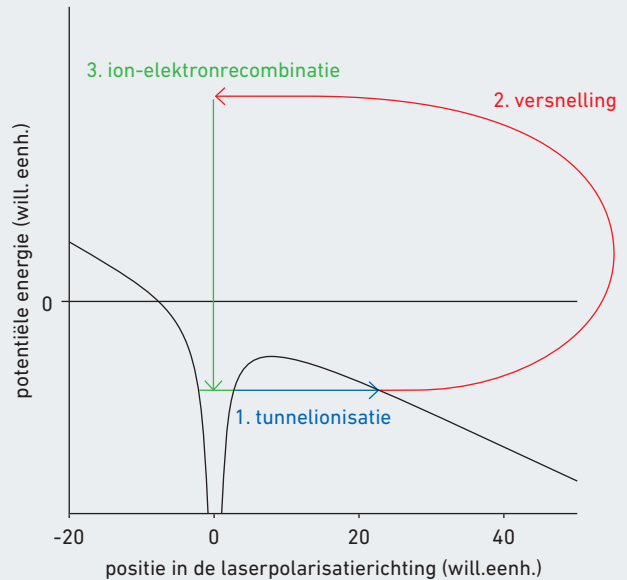
Attosecondelaserpulsen staan in een lange traditie van laserontwikkeling die in 1960 begon met de ontdekking van de laser door Theodore Maiman [1]. Deze ontdekking werd al snel gevolgd door de eerste experimentele demonstratie van een niet-lineair optisch effect met een gepulste laser, namelijk de generatie van tweede harmonischen door Peter Franken [2]. In dit proces worden in een niet-lineair kristal twee inkomende laserfotonen geconverteerd tot één nieuw foton met de dubbele fotonenergie en de halve golflengte.

Deze eerste demonstraties van het

opwekken en gebruiken van laserlicht werden gevolgd door talloze ontwikkelingen, waaronder die van lasersystemen met extreem hoge pulsenergieën en korte pulsduren. Een belangrijke stap bij de ontwikkeling van deze lasersystemen was de ontwikkeling van de *chirped pulse amplification* (CPA)-techniek, waarbij laserpulsen tijdens een versterkingsproces tijdelijk opgerekt worden, zodat beschadiging van het versterkersysteem voorkomen kan worden. In 2018 ontvingen Donna Strickland en Gerard Mourou de Nobelprijs voor de Natuurkunde voor deze ontdekking. Naarmate de intensiteit van beschikbare lasersystemen hoger en de beschikbare pulsduren korter werden, werd het mogelijk om hogere-orde niet-lineaire processen te bestuderen. Dit leidde tot een aantal verrassende resultaten. Een van de grote verrassingen kwam in 1979, toen Pierre Agostini het proces van *above-*



Figuur 1. Hoog harmonisch spectrum gemeten door Anne L'Huil-
lier en collega's in experimenten waar een 1064 nm Nd:YAG-laser
met een intensiteit van $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ gefocuseerd werd op een
10 mbar xenon-gasexpansie. Overgenomen uit [5], © IOP Publish-
ing. Gebruikt met toestemming. Alle rechten voorbehouden.

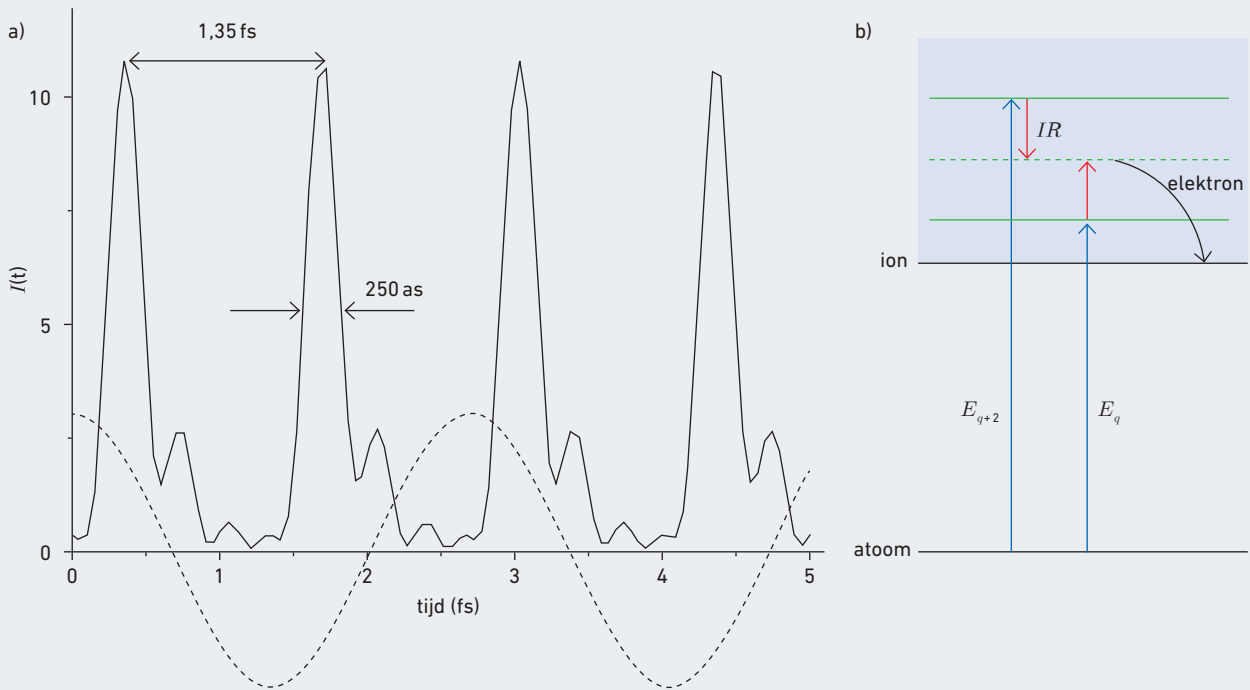


Figuur 2. Het driestapsmodel van hoge harmonische generatie,
geïntroduceerd door Kulander [8] en Corkum [9]. Na ionisatie door
de sterke laser (veelal beschreven als een tunnelproces door de
barrière in de laser + coulombpotentiaal, zwarte lijn) wordt het
fotoelektron versneld door het oscillerende elektrische veld van
de laser. Een deel van de elektronen komt terug bij het achter-
gebleven ion, waarna een recombinatieproces plaats kan vinden,
vergezeld van de emissie van een hoogenergetisch foton. Omdat
het proces zich iedere halve optische periode herhaalt, bestaat dit
licht uit oneven harmonischen van de frequentie van de laser die
het atoom ioniseert.

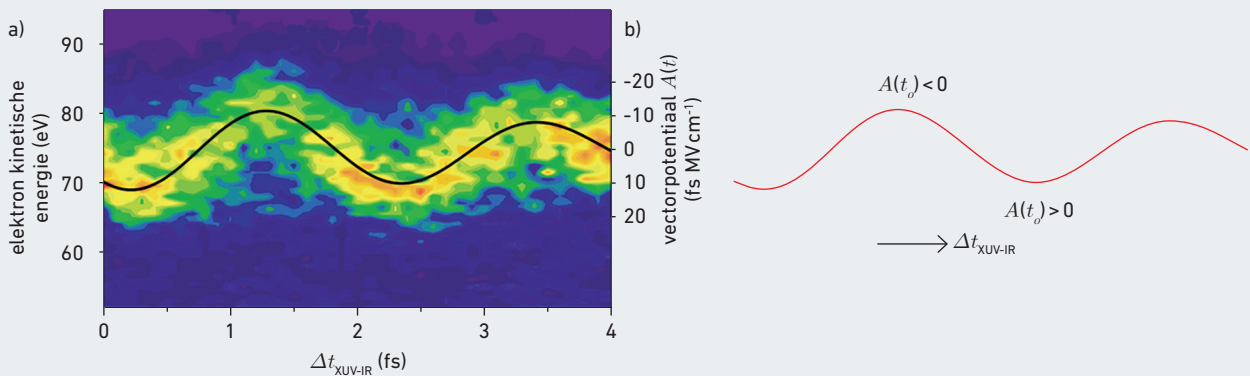
threshold ionization (ATI) ontdekte [3]. Tot dan toe had men aangenomen dat niet-lineaire ionisatieprocessen gedomineerd zouden worden door de absorptie van het kleinste aantal fotonen dat nodig is om boven de ionisatiepotentiaal van een atoom uit te komen. Dit leidt tot de vorming van foto-elektronen met een kinetische energie $E_e = nh\nu - IP$, waarbij $h\nu$ de fotonenergie is, IP de ionisatiepotentiaal en n het kleinste mogelijke getal waarbij $E_e > 0$. De experimenten van Agostini lieten echter ook de vorming van foto-elektronen met een hogere kinetische energie zien, duidend op ionisatieprocessen waarbij een groter aantal fotonen geabsorbeerd werd, zodat $E_e = (n + s)h\nu - IP$, met $s > 0$. In deze beginperiode van onderzoek naar de interacties van intense lasers speelden Nederlandse onderzoekers een belangrijke rol. Op AMOLF voerden Marnix van der Wiel, Ben van Linden van den Heuvel, Harm-

Geert Muller en anderen belangrijke experimenten uit die bijdroegen aan het langzaam groeiende begrip van wat intense lasers teweeg kunnen brengen. Een belangrijk resultaat was bijvoorbeeld een experiment van Pieter Kruit in 1981 [4], waarin hij liet zien dat naarmate de laserintensiteit hoger wordt, het aantal fotonen dat nodig is voor ionisatie toeneemt. Dit komt doordat de energie van de laser nodig is om zowel het elektron uit het atoom vrij te maken, als ook voor de kinetische energie van de oscillerende beweging die het vrijgemaakte elektron vervolgens uitvoert in het elektrische veld van de laser. Waar de eerste ionisatie-experimenten met intense lasers vooral keken naar de vorming van eenvoudig meetbare ionen en elektronen, besloot een aantal onderzoekers te gaan kijken wat er met behulp van fotodetectie te leren viel over de eventuele rol van atomaire resonanties tijdens het

ionisatieproces. Deze experimenten waren moeilijker, omdat de detectie-efficiëntie van fotonen lager is dan die van ionen en elektronen, mede doordat fotonen niet met behulp van een elektrisch veld naar een detector geleid kunnen worden. De oplossing die Anne l'Huil-
lier koos voor deze uitdaging was het opbouwen van een experiment waar de gasdruk in de laserfocus aanzienlijk hoger was dan in eerdere experimenten. En dat is hoe op een goede dag het eerste hoge harmonische spectrum werd gemeten (zie figuur 1) [5]. Tot eenieders verrassing werd het spectrum van het uitgezonden licht niet gedomineerd door atomaire overgangen, maar door een aantal harmonische pieken van het excitatielicht, dat wil zeggen, pieken corresponderend met een fotonenergie $E_q = qh\nu$, met q een oneven getal. Tot een zekere maximale fotonenergie waren deze pieken bovendien allemaal ongeveer even groot.



Figuur 3. a) Gereconstrueerde attosecondepulstrein in het experiment van Agostini en Muller. Door een interferometrische meting van de faseverschillen tussen harmonischen 11-19 kan worden bepaald dat de hoge harmonische puls bestaat uit een trein van 250 attoseconde-lange-pulsen. Overgenomen uit [5]. b) Het principe van de interferometrische meting: absorptie van een hoger gelegen harmonische met een energie $E_{q+2}=(q+2)h\nu_{IR}$, vergezeld door gestimuleerde emissie van een infrarood (IR)-foton en absorptie van een lager gelegen harmonische met een energie $E_q=qh\nu_{IR}$, vergezeld door absorptie van een infraroodfoton leiden beide tot de detectie van een elektron met een kinetische energie $E_e=(q+1)h\nu_{IR}-IP$, waarbij IP de ionisatiepotentiaal van het gebruikte atoom is.



Figuur 4. a) Ionisatie van neonatomen door een geïsoleerde attosecondepuls, gemeten met behulp van een attosecondestreakcamera. De tijdsvertraging tussen de attosecondepuls en een replica van de nabij-infrarode laserpuls beïnvloedt de snelheidsverdeling en de verdeling van de kinetische energie van de foto-elektronen die gevormd worden (zie lopende tekst). Uit de meting kan afgeleid worden dat de geïsoleerde attosecondepuls 250 attoseconden lang is (gebaseerd op [14]). b) als de vectorpotentiaal op het moment van ionisatie door de attosecondepuls negatief is, dan neemt de kinetische energie van het elektron onder invloed van het nabij-infrarode laserveld toe, en vice versa. De gemeten oscillatie van de kinetische energie toont aan dat de attosecondepuls veel korter is dan de helft van de optische periode van de nabij-infrarode laser.

Verdere experimenten lieten zien hoe de vorming van de hoge harmonischen van de experimentele omstandigheden afhing [6]. Zo bleek dat de maximale fotonenergie van de harmonischen zowel van het gebruikte gas als van de laserintensiteit afhing volgens $E_{\max} \approx IP + 3U_p$ [7], waarbij U_p de gemiddelde kinetische energie is van een elektron dat onder invloed van een intens laserveld heen en weer beweegt. Verder lieten de experimenten zien dat de intensiteit van het harmonische signaal kwadratisch van de druk in het laserfocus afhing. Al met al duurde het ongeveer vijf jaar voordat begrepen werd hoe het hoge harmonische generatie-proces (HHG) tot stand komt. Toen publiceerden kort na elkaar Ken Kulander [8] en Paul Corkum [9] theoretische artikelen waarin het zogenoemde driestaps-model geïntroduceerd werd, zoals te zien in figuur 2, waarbinnen HHG begrepen wordt als een sequentie van (i) ionisatie van atomen in de laserfocus onder invloed van het sterke oscillerende elektrische veld van de laser, (ii) versnelling van de vrijgemaakte elektronen door dit elektrische veld (eerst weg van, en vervolgens terug in de richting van het achtergebleven ion), en (iii) een botsing tussen het elektron en het achtergebleven ion waarbij een recombinatieproces plaatsvindt en alle energie die geïnvesteerd is in de ionisatie en de versnelling van het elektron, vrijkomt in de vorm van een harmonisch foton. Deze modellen leunden sterk op ideeën die enige jaren eerder op AMOLF ontwikkeld waren om de ATI-experimenten van Agostini [3] en Kruit [4] te verklaren, en die hun weerslag kregen in de zogenoemde *Simpleman's theory* van Ben van Linden van den Heuvel en Harm-Geert Muller [10]. Het duurde niet lang voordat de inzichten van Kulander [8] en Corkum [9] leidden tot de gedachte dat de vorming van attosecondelaserpulsen mogelijk zou kunnen zijn. Immers, de ionisatie door de intense laser (stap (i)) treedt met name op gedurende een kleine fractie van de optische periode van de laser, in de buurt van een van de maxima van het oscillerende

“Het duurde niet lang voordat de inzichten leidden tot de gedachte dat de vorming van attosecondelaserpulsen mogelijk zou kunnen zijn.”

elektrische veld. Als na de versnelling (stap (ii)) deze elektronen min of meer tegelijkertijd bij de achtergebleven ionen terugkomen, dan is te verwachten dat de recombinatie (stap (iii)) slechts gedurende een kleine fractie van de optische periode van de excitatielaser (een fractie dus van 2,7 femtoseconden, in het geval van een titaansaffierlaser) plaatsvindt, waarmee we automatisch in het attosecondedomein beland zijn. Echter, het is één ding om te anticiperen dat attosecondepulsen gevormd kunnen worden; het is iets heel anders om het vervolgens te bewijzen. En dat is de voornaamste reden dat het nog bijna tien jaar op zich liet wachten voordat de eerste meting van attosecondepulsen een feit was. Geschikte meetmethoden voor attosecondepulsen ontstonden pas in 2001, kort na elkaar, op twee verschillende plaatsen in Europa. Een korte puls, zoals een attosecondepuls, is volledig gekarakteriseerd als het elektrische veld op ieder tijdstip bekend is. Helaas bestaan er echter geen elektrische detectoren die variaties van elektrische velden of laserintensiteiten kunnen meten met een attosecondetijdsresolutie. Als alternatieve mogelijkheid geldt een lichtpuls als volledig gekarakteriseerd wanneer het spectrum van de puls bekend is, inclusief de fase waarmee iedere golflengtecomponent optelt tot de totale korte puls. Dit idee ligt aan de basis van het eerste experiment waarin attosecondepulsen gekarakteriseerd werden, door een team geleid door Pierre Agostini, waar ook Harm-Geert Muller deel van uit-

maakte [11]. Terwijl het eenvoudig is om de intensiteit van iedere spectrale HHG-component te bepalen (daartoe volstaat een meting zoals in figuur 1), is het een stuk moeilijker om de fase van iedere spectrale component te bepalen. Daarvoor bedachten Agostini en Muller een slimme meetmethode, die gebaseerd was op ionisatie van een gas door de hoge harmonische puls, vergezeld door een replica van de nabij-infrarode excitatielaser die de hoge harmonischen gegenereerd had. Naast foto-ionisatie door individuele harmonischen vinden dan ionisatieprocessen plaats waar een extra infraroodlaserfoton wordt geabsorbeerd of uitgezonden. Ionisatie door een lager gelegen harmonische met een fotonenergie E_q vergezeld door de absorptie van een infrarood foton, en ionisatie door de volgende hoger gelegen harmonische met een fotonenergie E_{q+2} samen met gestimuleerde emissie van een infrarood laserfoton leveren allebei foto-elektronen op met een energie $E_e = qh\nu_{IR} + h\nu_{IR} - IP = (q+2)h\nu_{IR} - h\nu_{IR} - IP$. Dit leidt tot een situatie die vergelijkbaar is met een tweespletenexperiment. Beide ionisatieprocessen interfereren met elkaar en deze interferentie maakt het mogelijk het faseverschil tussen de beide harmonischen te bepalen. En dat is alle informatie die nodig is voor de reconstructie van de puls. Het resultaat van Agostini en Muller is te zien in figuur 3. Door een meting van de faseverschillen van harmonischen 11-19 konden zij bepalen dat in hun experiment een trein van 250 attoseconde lange puls gevormd werd [11].



Marc Vrakking is een van de directeuren van het Max-Born Instituut (MBI) in Berlijn. Hij leidt de attosecondefysica-afdeling, waar attosecondepulsen gebruikt worden om elektrodynamica tijdsopgelost te onderzoeken. Marc.Vrakking@mbi-berlin.de

Deze eerste meting van een attosecondepulstrein werd kort daarop gevolgd door de eerste meting van een geïsoleerde attosecondepuls in het laboratorium van Ferenz Krausz. In zijn experimenten gebruikte hij een intense nabij-infrarode laserpuls die zo kort was (~5 fs), dat voor de hoogste fotonenergieën in het HHG-spectrum de benodigde laserintensiteit slechts gedurende één optische periode van de laserpuls beschikbaar was. In dat geval is niet langer sprake van een harmonisch spectrum, maar bevat het spectrum een continuüm aan fotonenergieën. Om de tijdsduur van de hiermee corresponderende puls te meten, liet Krausz zich inspireren door het welbekende concept van een streak-camera, met dien verstande dat het tijdsafhankelijke elektrische afbuigveld dat in een conventionele streakcamera gebruikt wordt, vervangen werd door het elektische veld van een replica van de nabij-infrarode laserpuls die in het HHG-proces gebruikt was [12]. Zodra een foto-elektron op tijdstip t_0 door een attosecondepuls uit een atoom verwijderd is, wordt het door deze replicapuls versneld, zodat een snelheidsverandering plaatsvindt die gelijk is aan

$$\Delta v \sim - \int_{t_0}^{\infty} eE_{IR}(t)dt \doteq - eA(t_0),$$

waar $A(t)$ de vectorpotentiaal van het laserveld is. Uit een meting van de kinetische-energie-verdeling van de foto-elektronen kan dan de pulsduur van de attosecondelaserpuls bepaald worden. Op deze manier vond Krausz in eerste instantie een pulsduur van 650 attoseconden [13], en iets later, in verbeterde experimenten, ongeveer 250 attoseconden [14].

Sinds deze eerste experimenten de vorming van attosecondepulsen in het HHG-proces aantoonde, heeft de attosecondefysica zich ontwikkeld tot een van de spannendste vakgebieden in de laserfysica. Tegenwoordig gebruiken wereldwijd tientallen laboratoria attosecondepulsen om diepere inzichten te krijgen in het gedrag van elektronen in atomen, moleculen, vloeistoffen en vaste stoffen. Hoewel we nog aan het begin staan van de volledige exploitatie

van de mogelijkheden die attosecondelaserpuls bieden, worden ze reeds ingezet bij onderzoek dat reikt van de biologie en scheikunde tot diverse vakgebieden binnen de natuurkunde en moderne quantumtechnologieën. In ons onderzoek aan het Max-Born Instituut in Berlijn houden wij ons bijvoorbeeld intensief bezig met de rol van quantumverstregeling in attoseconde-experimenten en bestuderen wij dit quantummechanische fenomeen op de allerkortste tijdschalen [15]. De toekomst van de attosecondefysica ziet er buitengewoon veelbelovend uit, en daarom is het terecht en verheugend dat de Nobelprijs dit jaar gaat naar drie experimentele pioniers binnen dit vakgebied. Wellicht dat we in de toekomst ook nog een Nobelprijs gaan zien voor de theoretische bijdragen waarop de attosecondefysica gebaseerd is, of enkele van de vele ontdekkingen die nu mogelijk zijn geworden.

REFERENTIES

- 1 T.H. Maiman, Stimulated Optical Radiation in Ruby, *Nature*, **187**(4736), 493-494 (1960).
- 2 P.A. Franken et al., Generation of Optical Harmonics. *Physical Review Letters*, **7**(4), 118-119 (1961).
- 3 P. Agostini et al., Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms, *Physical Review Letters*, **42**(17), 1127-1130 (1979).
- 4 P. Kruij et al., Electron-Spectra from Multiphoton Ionization of Xenon at 1064, 532, and 355 Nm, *Physical Review A*, **28**(1), 248-255 (1983).
- 5 M. Ferray et al., Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **21**(3), L31 (1988).
- 6 A. L'Huillier et al., High-order harmonic generation in rare gases, in *Atoms in Intense Laser Fields*, M. Gavril, editor. Academic Press, 139-206 (1992).
- 7 J.L. Krause, K.J. Schafer en K.C. Kulander, High-Order Harmonic-Generation from Atoms and Ions in the High-Intensity Regime, *Physical Review Letters* **68**(24), 3535-3538 (1992).
- 8 K.J. Schafer et al., Above Threshold Ionization Beyond the High Harmonic Cutoff, *Physical Review Letters*, **70**(11), 1599-1602 (1993).
- 9 P.B. Corkum, Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization, *Physical Review Letters* **71**(13), 1994-1997 (1993).
- 10 H.B. Van Linden van den Heuvell en H.G. Muller, Limiting cases of excess-photon ionization, in *Multiphoton Processes (Cambridge Studies in Modern Optics vol. 8)*, S.J. Smith en P.L. Knight, editors, 24-34 (1988).
- 11 P.M. Paul et al., Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation, *Science* **292** (5522), 1689-1692 (2001).
- 12 J. Itatani et al., Attosecond streak camera, *Physical Review Letters* **88**(17), 173903 (2002).
- 13 M. Hentschel et al., Attosecond metrology, *Nature* **414** (6863), 509 (2001).
- 14 R. Kienberger et al., Atomic transient recorder, *Nature* **427** (6977), 817-821 (2004).
- 15 L.M. Koll et al., Experimental Control of Quantum-Mechanical Entanglement in an Attosecond Pump-Probe Experiment, *Physical Review Letters* **128** (4) (2022).