

## PREMIO NOBEL PER LA FISICA 2023

assegnato a

Pierre Agostini, Ferenc Krausz e Anne L'Huillier

"per i metodi sperimentali che generano impulsi di luce agli attosecondi per lo studio della dinamica degli elettroni nella materia "



A cura di Matteo Clerici\*

\* Professore Associato di Fisica presso l'Università dell'Insubria e Associate Professor presso la School of Engineering dell'Università di Glasgow.



### La nascita dell'attoscienza

Questo autunno (2023) l'Accademia Reale Svedese delle Scienze ha conferito il premio Nobel per la fisica a Pierre Agostini, Ferenc Krausz e Anne L'Huillier. Il premio riconosce il contributo fondamentale che i tre scienziati hanno apportato allo sviluppo delle tecniche sperimentali di misura con risoluzioni temporali nel regime degli attosecondi ( $10^{-18}$  s), e ai conseguenti studi seminali sulla dinamica degli elettroni nella

materia. Agostini, Krausz e L'Huillier

sono quindi stati riconosciuti come i fondatori della parte sperimentale di quella branca di fisica chiamata *Attoscienza*. Nella *press release* dove viene annunciata l'assegnazione del Nobel per la fisica, a L'Huillier viene riconosciuta la prima osservazione, nel 1987, di una larga regione spettrale dove armoniche superiori dispari generate da un laser impulsato hanno una intensità quasi uniforme (*plateau*). Tale radiazione aveva le caratteristiche minime richieste per supportare la generazione di impulsi con durata di attosecondi. Nel 2001, Agostini dimostrò come dalla radiazione di armoniche superiori potesse essere distillato un treno di impulsi della durata di poche centinaia di attosecondi, separati in tempo da circa 1 femtosecondo ( $10^{-15}$  s). Negli stessi anni, Krausz dimostrò come, utilizzando impulsi ottici a singolo ciclo, fosse possibile generare, sempre tramite il processo di produzione di armoniche superiori, un singolo impulso di durata di circa 650 attosecondi. Con questi passi, è iniziata l'ultima rivoluzione tecnologica nel campo delle misure risolte in tempo, adatta a studiare la dinamica del mondo microscopico.



I tre vincitori del premio Nobel 2023 per la fisica: Pierre Agostini, nato nel 1941 a Tunisi, attualmente affiliato alla *Ohio State University, Columbus (Usa)*; Anne L'Huillier, nata nel 1958 a Parigi, attualmente affiliata alla *Lund University (Svezia)*; Ferenc Krausz, nato nel 1962 a Mór (Ungheria), attualmente affiliato al *Max Planck Institute of Quantum Optics* e alla *Ludwig-Maximilians-Universität München, Monaco di Baviera*.

## Cenni storici

Osservare un processo in evoluzione richiede l'abilità di risolverne lo stato ad istanti di tempo diversi. Più il processo è rapido, più alta è la risoluzione temporale richiesta. Già nell'Ottocento, si utilizzava l'illuminazione impulsata prodotta da scariche per studiare l'evoluzione di fenomeni rapidi. Nel 1864, Toepler realizzò la prima misura di tipo *pump-and-probe*, dove la dinamica di un processo viene iniziata da uno stimolo ottico e misurata con un altro impulso ottico ritardato rispetto allo stimolo, dando così il via alla corsa agli attosecondi. La risoluzione temporale di un approccio *pump-and-probe* alla Toepler era limitata dalla durata dell'impulso generato dalla scarica e dell'ordine dei nanosecondi ( $10^{-9}$  s), e tale rimase fino all'avvento del laser nella seconda metà del Novecento (Nobel per la fisica 1964). Questa risoluzione era sufficiente a risolvere modifiche strutturali di materiali, ma non permetteva l'osservazione di dinamiche tipiche di reazioni chimiche, dell'ordine del femtosecondo.

L'utilizzo di coloranti organici come mezzi di guadagno laser a larga banda, lo sviluppo di tecniche di *mode-locking* e per il controllo della dispersione ad ordini superiori contribuirono allo sviluppo della femtochimica, nella seconda metà degli anni '80. Impulsi tra 10 e 100 femtosecondi sono sufficientemente brevi per studiare come avvengono le transizioni tra stati chimici, osservando così la rottura e la formazione di legami. Il fisico e chimico Ahmed H. Zewail, considerato il padre della femtochimica, venne insignito del Nobel per la chimica nel 1999. La prossima frontiera era quella di osservare in tempo reale la dinamica di processi elettronici all'interno degli atomi stessi. La meccanica quantistica ci dice che oscillazioni nel tempo della distribuzione elettronica in un atomo si possono osservare quando il sistema si trova in uno stato di sovrapposizione tra due autostati, ad esempio una sovrapposizione tra orbitali 1s e 2p per l'atomo di idrogeno. In questa condizione, la densità di probabilità per l'elettrone oscilla dando luogo ad un dipolo che varia nel tempo con un periodo di circa 150 attosecondi. Questa è dunque la scala di tempi sulla quale è necessario operare per osservare, ma anche controllare, le dinamiche atomiche.

In poco tempo si raggiunse la risoluzione temporale limite con i laser a disposizione, corrispondente a un ciclo ottico ( $T = \frac{1}{\nu_0} = \frac{\lambda_0}{c_0}$ , dove  $\nu_0$  è la frequenza centrale dell'impulso,  $\lambda_0$  la sua lunghezza d'onda nel vuoto e  $c_0$  è la velocità della luce nel vuoto). Per un laser a 750 nanometri, questo corrisponde a circa 2.5 femtosecondi. Fu quindi chiaro che ulteriori incrementi di risoluzione avrebbero richiesto uno spostamento a frequenze maggiori (lunghezze d'onda minori), possibilmente nella regione spettrale tra l'ultravioletto ed i raggi X.

Vennero quindi in aiuto i risultati ottenuti dallo studio dell'ottica non lineare perturbativa (Nobel per la fisica nel 1981), iniziati nella prima metà degli anni '60 appena dopo la scoperta del laser e che promettevano di poter generare impulsi corti ed a frequenze maggiori. Tuttavia, gli impulsi corti generati dai laser a coloranti non erano sufficientemente energetici (*nanojoule*) per stimolare processi non lineari efficacemente. Per questo, sarebbe stato necessario un incremento di energia di almeno tre ordini di grandezza. Questo fu reso possibile da tre importanti avanzamenti tecnologici: il laser a cristalli di zaffiro drogati con titanio (Ti:S, Moulton, 1986) che aveva una banda di guadagno tale da ottenere impulsi corti al limite del ciclo ottico a ~ 750 nanometri; il concetto di *Kerr mode-locking* (KLM, Sibbett e collaboratori, 1991), che permise di ottenere impulsi corti sfruttando il laser a Ti:S; e la *chirped-pulse-amplification*, una tecnica sviluppata da Mourou e Strickland nel 1985 (*Nobel per la fisica nel 2018*) grazie alla quale è possibile amplificare impulsi laser corti senza danneggiare il laser stesso. È in questo frangente che si sono mossi i primi passi verso la fisica degli attosecondi.

**L'osservazione di armoniche superiori**

In concomitanza con lo sviluppo dell'ottica non lineare perturbativa si iniziarono ad investigare gli effetti di laser intensi sugli atomi, tali da indurre ionizzazione (a differenza della condizione operativa dell'ottica non lineare perturbativa, nella quale gli elettroni del mezzo rimanevano legati). Nel 1979, Agostini osservò il processo ora noto come *above-threshold-ionization* (ATI), per il quale un atomo viene ionizzato assorbendo un numero di fotoni la cui somma energetica è maggiore dell'energia di legame.

Poco dopo, due gruppi (McPhearson e collaboratori, 1987; Ferray e collaboratori, incluso L'Huillier, 1988), utilizzando laser con impulsi della durata di picosecondi ( $10^{-12}$  s) focalizzati in getti di gas, registrarono uno *spettro di armoniche superiori del laser con un'insolita distribuzione di intensità*. L'ottica non lineare perturbativa prevede una decrescita rapida dell'ampiezza delle armoniche generate.

Armoniche di ordine  $n$  vengono infatti considerate come la manifestazione di un'interazione all' $n$ -esimo ordine perturbativo della polarizzazione del mezzo indotta dal campo elettrico oscillante del laser.

$$P = \epsilon_0(\chi^{(1)} E + \chi^{(3)} E^3 + \chi^{(5)} E^5 + \dots + \chi^{(n)} E^n)$$

La validità stessa dell'approccio perturbativo richiede che i contributi decrescano con il crescere dell'ordine, e difficilmente poteva giustificare segnali visibili oltre la settima armonica. Al contrario, questi primi esperimenti mostrarono armoniche che si estendevano oltre la quindicesima (fino alla 31<sup>a</sup> nel lavoro di Ferray del 1988) e la presenza di una regione di *plateau*, dove l'energia contenuta in ogni armonica superiore era pressoché costante. Questa osservazione stimolò da una parte, un'intensa attività sperimentale dedicata alla generazione di armoniche superiori (che oltrepassarono la 111<sup>a</sup> già nel 1993, grazie all'avvento dei laser a Ti:S ad alta energia ed impulsi corti di ~100 femtosecondi); dall'altra lo sviluppo di nuovi modelli teorici.

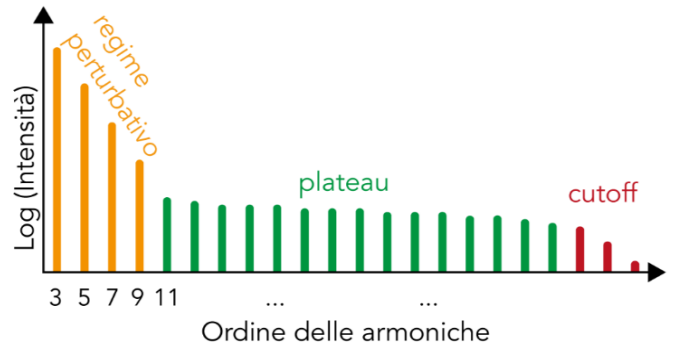
**Il three-step-model**

Kulander, Corkum e collaboratori proposero nel 1993 un modello semiclassico, noto come *three-step-model*, il quale, prescindendo dall'ipotesi perturbativa, permise di comprendere questa nuova fisica. Tale modello fu poi generalizzato al caso quantistico (noto come *strong-field-approximation*) da Lewenstein, Balcou, Ivanov, L'Huillier e Corkum nel 1994.

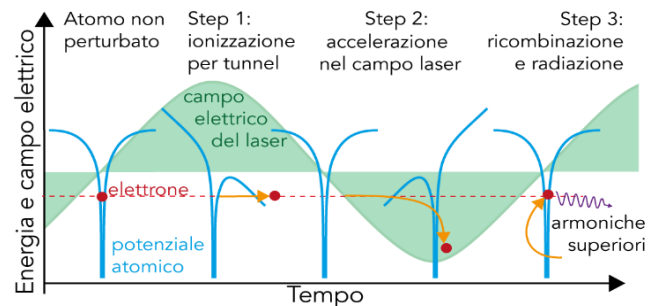
Seguendo il *three-step-model*, descritto nell'illustrazione a lato, l'energia massima acquisita da un elettrone e rilasciata come radiazione di armonica superiore e corrispondente alla frequenza di *cutoff*, è data da:

$$h\nu_{max} \simeq I_p + 3.17 U_p$$

dove  $I_p$  è l'energia di ionizzazione e  $U_p$  è il termine di energia ponderomotiva. Quest'ultima è acquisita dall'elettrone durante l'escursione nel continuo ed è proporzionale all'intensità del laser ed inversamente proporzionale al quadrato della sua frequenza. La generazione di uno spettro modulato in una serie di armoniche discrete (in contrasto ad uno spettro continuo) è una conseguenza dell'interferenza dell'emissione indotta dal processo descritto sopra che avviene ogni mezzo periodo del campo elettrico del laser che stimola il fenomeno.



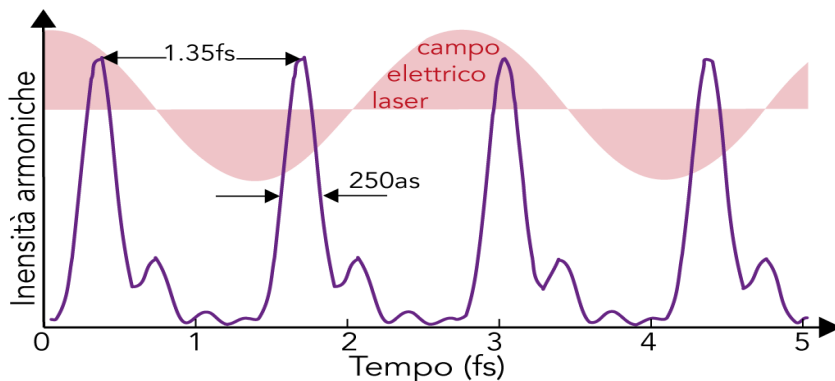
*Schematizzazione di uno spettro di armoniche superiori. Sono presenti solo le armoniche dispari, come atteso per materiali con simmetria da inversione spaziale. La prima parte dello spettro, a bassa frequenza, si comporta come atteso da un processo non lineare perturbativo, dove l'intensità del segnale delle armoniche decresce esponenzialmente. In seguito, si osserva una regione di plateau, dove l'intensità delle armoniche varia minimamente. Infine, le armoniche si estinguono nella regione di cutoff.*



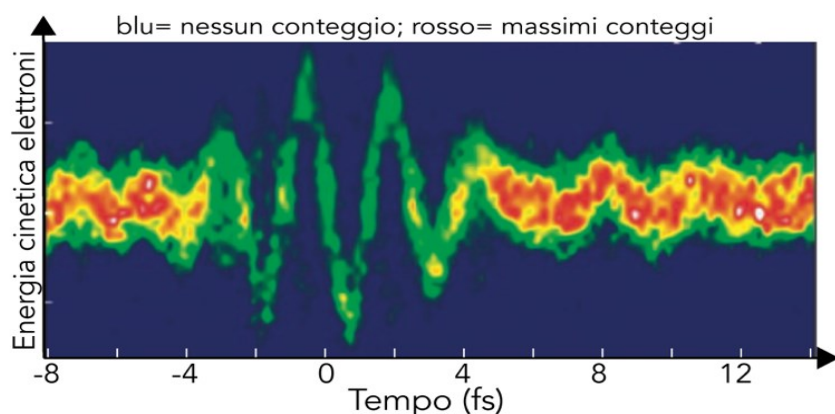
*Illustrazione del three-step-model proposto per interpretare la fisica non perturbativa sottostante al processo di emissione delle armoniche superiori. In verde il campo elettrico del laser che stimola il processo. In azzurro, il potenziale atomico deformato dal campo elettrico. Per ampiezze di campo sufficienti, un elettrone (in rosso) può attraversare per effetto tunnel la barriera temporanea di potenziale ed entrare nel continuo (step 1). Qui, viene accelerato dal campo elettrico del laser aumentando così la sua energia cinetica (step 2). Infine, l'elettrone viene ri-catturato dall'atomo, rilasciando come radiazione di armonica superiore l'energia accumulata (step 3).*

### Treni di impulsi ad attosecondi

L'osservazione di armoniche superiori mostrò la via per ottenere impulsi di luce della durata di attosecondi, fornendo uno spettro a larga banda e nella regione dell'ultravioletto estremo. Ottenere impulsi ad attosecondi fu quindi l'obiettivo degli studi di molti ricercatori a partire dalla metà degli anni '90, tra i quali spiccano i lavori di L'Huillier e colleghi. Le proprietà temporali della radiazione di armoniche superiori, se filtrata in una regione spettrale opportuna, corrisponderebbe ad un treno di impulsi con durata di centinaia di attosecondi e con separazione data dal semiperiodo della radiazione laser usata per stimolare il processo. Tuttavia, questo sarebbe stato vero solo nel caso in cui le armoniche superiori avessero avuto una relazione di fase fissa (ovvero la radiazione fosse stata coerente). Dall'ipotesi di treni di impulso ad attosecondi (1992-1993) alla loro dimostrazione, da parte di Agostini e colleghi nel 2001, passarono quasi 10 anni. Agostini e colleghi inventarono un modo per misurare la relazione di fase tra le armoniche superiori basata sul fenomeno di ATI discusso in precedenza. Grazie a questa nuova tecnica, osservarono che *le armoniche superiori sono coerenti tra loro e formano un treno di impulsi di durata ~250 attosecondi*, quando alcuni dei processi fisici che contribuiscono all'emissione vengono eliminati, nel caso specifico, filtrando la radiazione attraverso un'apertura per eliminare il contributo delle traiettorie lunghe.



Profilo temporale dell'intensità della radiazione di armoniche superiori ricostruita dalle misure di Agostini nel 2001. In rosso, il campo elettrico del laser che stimola il processo



Ricostruzione del campo elettrico del laser utilizzato per stimolare la generazione di singoli impulsi ad attosecondi. Per questa misura, un impulso ad attosecondi è utilizzato per estrarre cariche da atomi su scale di tempo inferiori al ciclo ottico dell'impulso da misurare, fornendo in questo modo la risoluzione necessaria alla misura. Dati estratti da un lavoro pubblicato dal gruppo di Krausz nel 2004.

### Singoli impulsi di attosecondi

Il prossimo passo fu quello di generare un singolo impulso nel dominio degli attosecondi, il quale può più facilmente essere impiegato come strumento per misure con alta risoluzione temporale. Dagli sviluppi teorici della fine degli anni '90 era emerso che singoli impulsi ad attosecondi potevano essere ottenuti nella regione spettrale del *cutoff* se il processo fosse stato stimolato da un impulso laser a singolo ciclo ottico. Per raggiungere questo risultato fu necessario un intenso lavoro dedicato alla generazione di impulsi laser ultracorti. Grazie ad una tecnica di compressione degli impulsi sviluppata da Nisoli e collaboratori e all'introduzione di speciali specchi capaci di compensare la dispersione su una banda larga (Szipöcs e collaboratori), nel 1997 fu generato e misurato l'impulso più corto di quel tempo, della durata di soli 4.5 femtosecondi. Grazie a questo, un impulso singolo della durata di 650 attosecondi fu misurato dal gruppo diretto da Krausz nel 2001. Per dimostrare che l'impulso fosse davvero singolo e di durata inferiore al femtosecondo, fu essenziale una tecnica proposta da Corkum. Questa consiste nel misurare i tempi di arrivo degli elettroni estratti da atomi dall'impulso ad attosecondi con traiettorie modulate dal campo elettrico di un laser a frequenze ottiche – lo stesso che ha stimolato la generazione dell'impulso ad attosecondi. Con questa tecnica fu possibile ottenere le misure mostrate in figura, nel 2004. Questa serie di lavori, diretti in larga parte da Krausz, danno inizio all'attoscienza, provando che gli impulsi ad attosecondi non solo sono ottenibili, ma possono essere utilizzati per studiare dinamiche elettroniche prima inaccessibili.

### L'attoscienza oggi

Le nuove tecnologie sviluppate per poter arrivare ai risultati descritti sopra hanno avuto un forte impatto su tutta la ricerca dedicata allo studio della luce e la sua interazione con la materia. Ad esempio, le nuove sorgenti laser nel medio infrarosso, sviluppate per poter estendere il più possibile lo spettro delle armoniche superiori, spostando il cutoff a frequenze maggiori, hanno poi portato a notevoli risultati in altri ambiti, quali la generazione di impulsi a singolo ciclo ottico nella regione spettrale del lontano infrarosso (Terahertz). Gli impulsi ad attosecondi e le loro tecniche di misura si sono notevolmente evolute. Si hanno ora a disposizione impulsi isolati di circa 50 attosecondi, con i quali si possono controllare le correnti in materia condensata. Questi studi stanno gettando le basi per una rivoluzione nella velocità di elaborazione dati, finora limitata alle frequenze tipiche dell'elettronica (GHz). L'attoscienza ha anche fornito gli strumenti per investigare aspetti fondamentali di meccanica quantistica, quali quelli relativi al tempo richiesto ad una carica per oltrepassare una barriera di potenziale per effetto tunnel. La radiazione coerente di armoniche superiori viene anche impiegata per la caratterizzazione di nanostrutture, fornendo risoluzioni spaziali prima inaccessibili.

Questi, sono solo alcuni degli ambiti influenzati direttamente dall'attoscienza. Altri ne verranno, consolidando questa nuova area di ricerca come una tra le più promettenti degli ultimi decenni.

*Matteo Clerici*

*Professore Associato di Fisica presso l'Università dell'Insubria e Associate Professor presso la School of Engineering dell'Università di Glasgow.*