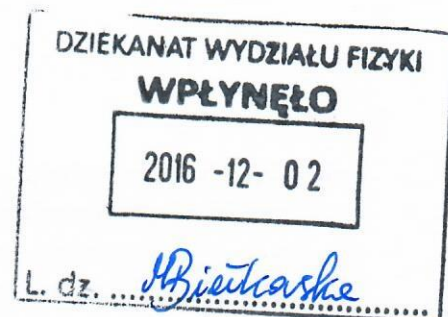


Prof. dr hab. Jarosław Zaremba
Instytut Fizyki
Uniwersytetu Mikołaja Kopernika



Ocena rozprawy doktorskiej magistra Felipe Cajiao Véleza zatytułowanej
„Engineering and Control of Quantum Processes by Short Laser Pulses”

Zjawiska zachodzące podczas oddziaływania układów atomowych z promieniowaniem laserowym o dużej mocy stanowią od wielu lat przedmiot wielkiej aktywności badawczej. Znaczącą rolę odegrało w historii tych badań odkrycie jonizacji ponadprogowej, w której w spektakularny sposób zmanifestowały się nieperturbacyjne aspekty procesu oddziaływania. Od tego czasu badania te są wciąż prowadzone sięgając zakresów pól znacznie silniejszych niż te, w których ujawniła się jonizacja ponadprogowa, a w ich trakcie odkryto interesujące, jakościowo nowe zjawiska, takie jak generacja wysokich harmoniczných czy stabilizacja atomów w bardzo silnych polach. Źródła mogące emitować krótkie, ultrasilne impulsy promieniowania o natężeniu pola elektrycznego porównywalnym i większym od natężenia pola wewnątrzatomowego otwierają nowe perspektywy dotyczące realizacji wysoce nieliniowych procesów. Z teoretycznego punktu widzenia analiza dynamiki oddziaływania układów atomowych z bardzo silnymi impulsami pola promieniowania stanowi trudne wyzwanie. W szczególności konieczne jest stosowanie podejść nieperturbacyjnych z uwzględnieniem stanów widma ciągłego i rozwinięte zostały tu różnorodne modele i metody, zarówno analityczne jak i numeryczne; istnieje dziś bardzo bogata literatura dotycząca tej wciąż dyskutowanej tematyki.

Przedstawiona do oceny rozprawa doktorska wpisuje się w ten nurt badań. Autor interesuje się dwoma fundamentalnymi silnopolowymi procesami fizycznymi: jonizacją atomu oraz generacją harmoniczných. W przypadku pierwszego podjęty został problem uwzględnienia w opisie długozasięgowego potencjału kulombowskiego, a w przypadku drugiego problem opisu dynamiki generacji wysokich harmoniczných w układach molekularnych. Tytuł rozprawy wskazuje, iż w ramach dyskusji obu tych procesów Autora interesuje jeszcze jeden aspekt, a mianowicie możliwość sterowania ich dynamiką, u czego podstaw leży dobór charakterystyk impulsów promieniowania oddziałującego z układem atomowym czy struktury układu molekularnego. Analiza zjawisk fizycznych związanych z tym aspektem jest, obok ogólnych rozważań metodologicznych, istotnym elementem rozprawy.

Już w świetle tej bardzo ogólnej charakterystyki zawartości rozprawy można uznać, że prezentowany w niej program badawczy dotyczy aktualnej, trudnej i w wielu elementach wciąż otwartej tematyki ważnej dla ciągle rozwijanej dziedziny współczesnych badań, jaką niewątpliwie są badania dynamiki procesów atomowych w silnych polach krótkich impulsów laserowych. Podjęcie tej tematyki jest dobrze uzasadnionym, naturalnym i ambitnym przedsięwzięciem, o znaczeniu bezpośrednio poznawczym dla rozumienia tych złożonych procesów fizycznych, jak i o znaczeniu metodologicznym dotyczącym ich badania.

Zrealizowanie założonego celu wymagało szczegółowego i wieloaspektowego modelowania i analizy z wykorzystaniem różnorodnych i zaawansowanych narzędzi badawczych, zarówno analitycznych, jak i numerycznych. Od razu powiem, że Autor wykonał postawione zadanie z

sukcesem, a przedstawiona rozprawa zawiera ciekawą i systematyczną prezentację oraz krytyczną dyskusję uzyskanych rezultatów. Dodam też jeszcze jedno spostrzeżenie dotyczące rozprawy. Podczas lektury tej obszernej pracy nabrałem przekonania, iż zamysł redakcyjny Autora był szerszy, niż przedstawienie własnych wyników badawczych. Ramy prezentacji, układ rozprawy i styl jej napisania powodują, iż posiada ona cechy wszechstronnego, dobrze wprowadzającego w omawianą tematykę przedstawienia. Taki wybór koncepcji uważam za walor pracy doktorskiej, a sposób jej realizacji zasługuje na pochwałę.

Rozprawa doktorska pana Cajiao Véleza ma standardową konstrukcję: po krótkim wstępie wprowadzającym w tematykę i sygnalizującym uzasadnienie jej podjęcia następują trzy rozdziały stanowiące zasadniczy korpus pracy, krótki rozdział podsumowujący oraz sześć załączników przedstawiających niektóre wykorzystywane w pracy zagadnienia i techniki. Obszerne spisy literatury zawiera sto czterdzieści siedem pozycji. Cała rozprawa, napisana w języku angielskim, jest też obszerna - liczy sto pięćdziesiąt pięć stron.

Najdłuższy, stanowiący prawie połowę pracy rozdział 2 poświęcony jest pierwszemu z wymienionych procesów, jonizacji atomu. Autor przedstawia w nim tak zwane uogólnione przybliżenie eikonalne (Generalized Eikonal Approximation - GEA), którego celem jest uwzględnienie w obliczeniach prawdopodobieństwa jonizacji oddziaływania uwolnionego elektronu z macierzystym jonem, i które następnie stosuje do dyskusji wybranych szczegółowych zagadnień. Naturalnym tłem dla tego problemu jest uważana dziś za klasyczne podejście do opisu zjawisk jonizacji w silnym polu, istniejąca w różnych wariantach, teoria Kiełdysza-Faisala-Reissa (KFR), która obok licznych sukcesów była mocno dyskutowana, zarówno z punktu widzenia skuteczności obliczeniowej, jak i problemów interpretacyjnych. W jej standardowym sformułowaniu stan wybitego elektronu to stan Wołkowa opisujący elektron „ubrany” w oddziaływanie z polem, ale poza tym swobodny, co jest dobrym modelem dla układów atomowych z krótkozasięgowym potencjałem wiążącym (jak np. w przypadku fotoooderwania), ale nieadekwatnym dla przypadku jonizacji atomu z długozasięgowym potencjałem kulombowskim. Przybliżenie eikonalne stanowi jedną z metod włączenia do analizy jonizacji oddziaływania kulombowskiego.

Wstępem do właściwej dyskusji uogólnionego przybliżenia eikonalnego w zastosowaniu do opisu fotojonizacji jest ogólna prezentacja metody opisu ewolucji czasowej opartej o wykorzystanie opóźnionego propagatora cząstki naładowanej w polu elektromagnetycznym, a także przybliżeń jednego aktywnego elektronu i dipolowego elektrycznego, które precyzują ramy dla dalszego opisu oddziaływania. Od początku starannie są też przedstawiane zagadnienia dotyczące cechowania. Pozwala to postulować wyjściową dla dyskusji postać (2.48) propagatora elektronu oddziałującego z polem promieniowania i „czującego” atomowy potencjał wiążący w postaci będącej uogólnieniem propagatora cząstki swobodnej. Uogólnienie to polega na wprowadzeniu do rozwiązania dwóch funkcji Φ_k i χ_k , z których pierwsza znika, gdy nie ma pola, a druga, zwana właśnie eikonalem, gdy nie ma potencjału wiążącego. Każda z tych funkcji spełnia odpowiednie równanie różniczkowe. W sytuacji, gdy nie ma oddziaływania z potencjałem wiążącym, eikonał jest równy zeru i propagator (2.48) redukuje się do znanego z teorii KFR propagatora Wołkowa. Rozwiązanie nieliniowego równania dla eikonala daje się przedstawić w postaci wyrażenia całkowitego (2.77) zawierającego potencjał efektywny zależny w złożony sposób od potencjału wiążącego i spełniającej równanie Newtona trajektorii cząstki w polu. Wyrażenie to jest punktem wyjścia

dla systematycznej procedury iteracyjnego obliczania eikonu („rachunek zaburzeń dla eikonu”), a uogólnione przybliżenie eikonalne polega na ograniczeniu tej procedury do pierwszego rzędu względem potencjału wiążącego. Otrzymane w jej wyniku wyrażenie (2.94) przedstawiające funkcję eikonu w pierwszym rzędzie stanowi zasadniczy wynik prowadzący do otrzymania propagatora elektronu opisującego ewolucję z jednoczesnym uwzględnieniem oddziaływania z polem i potencjałem wiążącym. Jego konsekwencją jest najważniejsze, moim zdaniem, wyrażenie (2.164) na amplitudę prawdopodobieństwa jonizacji w ramach uogólnionego przybliżenia eikonalnego. Jest to oryginalny wynik wykorzystany w dalszej części do numerycznej analizy jonizacji w polu krótkich impulsów laserowych.

Przedstawiłem wyżej w bardzo skróty sposób podjęty w tej części rozprawy problem i schemat jego rozwiązania. W tym miejscu chciałbym poczynić jeszcze kilka uwag na temat tej części pracy. Otóż zawiera ona, obok samej, bardzo starannej, drobiazgowej a jednocześnie czytelnej i wychodzącej z bardzo ogólnych podstaw prezentacji GEA (co wcale nie było łatwe ze względu na dość skomplikowaną i zawierającą wiele szczegółów technicznych naturę problematyki) liczne komentarze i uwagi pokazujące tę metodę z różnych perspektyw. Omówiono jej relację do oryginalnego przybliżenia eikonalnego pokazując w szczególności, iż stanowi ono krótkoczasową granicę GEA, a także zastosowano ją dla obliczenia funkcji eikonu dla kilku ważnych, modelowych potencjałów. Należy podkreślić, że w przypadku potencjału kulombowskiego funkcja eikonu w GEA nie jest, w odróżnieniu od oryginalnego przybliżenia eikonalnego osobliwa dla trajektorii elektronowej w położeniu jądra, co może być istotne dla stosowania GEA w opisie ważnych procesów związanych z powrotem zjonizowanego elektronu w pobliże jądra („rescattering”). Choć celem pracy jest analiza procesu jonizacji, to dyskusja metody opisu ewolucji w ramach GEA prowadzona jest jak najdłużej na ogólnym poziomie. W zastosowaniu do jonizacji przedyskutowano relację amplitud jonizacji z amplitudami z teorii Kiełdysza i przybliżenia Borna. Te elementy prezentacji wysoko cenię. Pokazują one, iż Autor nie tylko biegle opanował wieloelementowy formalizm i związane z nim techniki rachunkowe, ale dysponuje umiejętnością szerszego i krytycznego spojrzenia na pole własnych badań, a czytelnikowi pozwalają na umiejscowienie opisywanej metody w szerszej panoramie.

Druga część rozdziału poświęcona jest numerycznej analizie dynamiki fotojonizacji w polu krótkich, silnych impulsów promieniowania laserowego z wykorzystaniem formalizmu opisanego wcześniej. Także tutaj prezentacja jest w widoczny sposób szersza. Ponieważ GEA jest metodą pozwalającą uwzględnić w sposób przybliżony rolę atomowego potencjału wiążącego, Autor sytuuje otrzymane w jej ramach wyniki na tle odpowiednich wyników z przybliżenia Kiełdysza pomijającego wpływ tego potencjału w stanie końcowym. Rozdział rozpoczyna szczegółowa prezentacja kształtu impulsów laserowych oraz uzasadnienie takiego właśnie ich wyboru. Są to ciągi silnych (o powierzchniowej gęstości mocy rzędu 10^{13} Wcm^{-2}) krótkich, jednocyklowych impulsów o obwiedni $\sin^2$. Dla takich impulsów obliczone zostały amplitudy prawdopodobieństwa jonizacji atomu wodoropodobnego ze stanu podstawowego oraz wynikające z nich widma fotoelektronów. W przypadku GEA obliczenia wykonane zostały w sposób przybliżony z wykorzystaniem metody punktu siodłowego ze względu na trudności numeryczne z wykonaniem zawierających szybkooscyłujące człony całek w wyrażeniach na amplitudy, natomiast dla modelu Kiełdysza porównano wyniki obliczone tą metodą z wynikami otrzymanymi z wyrażeń dokładnych. Spośród wielu prezentowanych i dyskutowanych wyników szczegółowych zwrócę uwagę na dwa. Pierwszy to widoczna sygnatura spójnego charakteru oddziaływania atomu z ciągiem impulsów obecna w silnie

nieliniowym, nieperturbacyjnym reżimie procesu jonizacji. Dobrze widać to w modelu Kiełdysza, dla którego w wyrażeniu na amplitudę prawdopodobieństwa jonizacji pojawia się wyraz interferencyjny zależny od liczby modulacji w impulsie, co prowadzi do charakterystycznego „wysmuklenia” kształtu pików w widmie fotoelektronów (analogon siatki dyfrakcyjnej czy prążków Ramseya). Autor podkreśla, że właśnie możliwość wpływania na kształt linii w widmie fotoelektronów poprzez dobór parametrów formujących kształt impulsów pola dostarcza narzędzia do sterowania elementami dynamiki procesu nieliniowego oddziaływania. Drugi to ważna ilustracja o znaczeniu metodologicznym pokazująca na rysunku 2.13 porównanie widm fotoelektronów obliczonych według teorii Kiełdysza, oraz przybliżeń eikonalnych: oryginalnego i uogólnionego dla ciągów impulsów o różnej długości. Pokazują one, które cechy widm są podobne, a które zmieniają się w zależności od metody. Dodam, iż nieomówione tu, a zawarte w tej części pracy analizy stosowanych przybliżeń oraz dyskusje wyników numerycznych są drobiazgowo, starannie prowadzone i świadczą o dobrym rozumieniu przez Autora przedmiotu badań.

W sumie, rozdział 2 rozprawy zawiera interesujący materiał o znaczeniu metodologicznym i poznawczym. Dotyczy on trudnego i wielokrotnie podejmowanego wątku fizyki jonizacji silnopolowej jakim jest problem uwzględnienia długozasięgowego potencjału wiążącego w dynamice tego procesu. Aczkolwiek przybliżenie eikonalne było opisywane i stosowane wcześniej, to systematyczne sformułowanie i wykorzystanie schematu GEA do obliczenia amplitudy prawdopodobieństwa jonizacji oraz zastosowanie go w przypadku jonizacji w polu ciągu silnych impulsów laserowych jest oryginalnym osiągnięciem. O tym, że wyniki prezentowane w tej części rozprawy znalazły już uznanie innych recenzentów świadczy ich publikacja w dwóch artykułach (Phys. Rev. A, J. Phys. Conf. Ser.) – Autor rozprawy jest w nich pierwszym z trójga współautorów. Ciekaw byłbym opinii Autora na temat perspektyw dalszego stosowania GEA do analizy innych zagadnień w optyce silnych pól.

Rozdziały 3 i 4 dotyczą drugiego zagadnienia, generacji wysokich harmoniczných (High-order Harmonic Generation - HHG) w polu silnego promieniowania elektromagnetycznego. Zjawisko to, podobnie jak jonizacja, jest wciąż obiektem zainteresowania badawczego zarówno ze względu na swój fundamentalny charakter, jak i na znaczenie dla fizyki subfemtosekundowej i jej zastosowań. Rozprawa doktorska podejmuje aktualny wątek badań w tej dziedzinie, a mianowicie generację harmoniczných w trakcie oddziaływania silnego pola z cząsteczkami. W porównaniu z dobrze dziś opisaną generacją harmoniczných przez atomy, badania dla układów molekularnych są wciąż na względnie początkowym etapie. Mogą tu występować znacznie bogatsze zjawiska fizyczne ze względu na dodatkowe stopnie swobody oraz złożoną symetrię drobin. Podjęcie tej tematyki jest więc ciekawym problemem badawczym, tym bardziej, że obiektem zainteresowania Autora są wieloatomowe cząsteczki najmniejszego fulerenu C_{20} w trzech różnych formach izomerowych. Pozwala to w szczególności postawić pytanie o zależność procesu generacji wysokich harmoniczných od rozkładu atomów w cząsteczce i właśnie badanie tego problemu stanowi jeden z celów tej części rozprawy.

Rozdział 3 to wprowadzenie do szczegółowej dyskusji formułujące wykorzystywaną dalej metodę. Zawiera on opis generacji wysokich harmoniczných według znanego modelu Lewensteina adaptując go, w perspektywie późniejszych zastosowań, do wielocentrowej tarczy molekularnej. Stan podstawowy drobin konstruowany jest w oparciu o standardową metodę liniowej kombinacji orbitali atomowych (LCAO) z funkcjami typu Gaussa i dla

takiego stanu podstawowego dyskutowane są kluczowe dla opisu generacji harmonicznych zależne od czasu elementy macierzowe momentu dipolowego dla jonizacji i rekombinacji oraz możliwość ich obliczenia z wykorzystaniem przybliżenia punktu siodłowego. Sygnał HHG definiowany jest jako transformata Fouriera z tak uzyskanego momentu dipolowego (wzór 3.90). Drobiazgowo są też przedstawione problemy dotyczące wyboru cechowania. Warto zauważyć starania Autora o włączenie do z natury rzeczy dość technicznej prezentacji komentarzy dotyczących pogładowej, fizycznej interpretacji różnych elementów formalizmu.

W rozdziale 4 przedstawione są wyniki obliczeń numerycznych dotyczących dwóch zagadnień. Pierwsze z nich to analiza HHG w izomerach C_{20} z punktu widzenia zależności widm HHG od struktury cząsteczki. Drugie dotyczy innej, mniejszej cząsteczki N_2 i problemu eliptycznej polaryzacji harmonicznych. Wstęp do prezentacji szczegółowych wyników stanowi czytelne podsumowanie kolejnych etapów obliczeń numerycznych wskazujące na złożoność tej procedury. Pole promieniowania laserowego modelowane jest płaską, liniowo spolaryzowaną falą elektromagnetyczną o długości 800 nm i mocy rzędu 10^{14} Wcm⁻². W dalszym ciągu pokazane są obliczone wykresy widm harmonicznych do rzędu około dziewięćdziesiątego, gdzie następuje ich obcięcie. Dyskutowany jest kształt plateau widm generowanych dla poszczególnych izomerów z molekularnego orbitalu HOMO dla różnych kierunków polaryzacji harmonicznych i polaryzacji promieniowania laserowego, a analiza tego centralnego zagadnienia jest wszechstronna. Charakterystyczną cechą widm HHG jest pojawienie się modulacji plateau. Ze względu na fakt niewielkich różnic wartości potencjałów jonizacji różnych orbitali molekularnych zbadano modyfikację widm HHG przez uwzględnienie orbitalu HOMO-1, pierwszego poniżej HOMO. Przebadane zostało zachowanie się elementów macierzowych momentu dipolowego dla rekombinacji „wzdłuż” numeru harmonicznej. Ponieważ wyniki w modelu Lewensteina zależą od wyboru cechowania, oprócz widm obliczonych w cechowaniu długościowym przeprowadzono ich analizę w cechowaniu prędkościowym. Zbadano też, jak modyfikują się widma dla fulerenu w sytuacji, gdy zamiast fali o stałej amplitudzie cząsteczka oddziałuje z polem impulsowym. Te wymienione tutaj hasłowo zagadnienia składają się na bogate studium, wartościowe nie tylko ze względu na mnogość wyników szczegółowych, ale, co moim zdaniem nawet ważniejsze, ze względu na porównawczy charakter dający dobrą ilustrację zależności między sygnałem generacji harmonicznych a geometrią i symetrią drobiny. Dodam, że prezentowanym wynikom towarzyszą interpretacje dające wgląd w fizykę procesów, w szczególności podkreślające rolę zjawisk interferencyjnych wynikających z wielocentrowej struktury układu molekularnego oddziałującego z silnym impulsem laserowym oraz interferencji pakietów falowych dla różnych trajektorii elektronu. Wszystko to stanowi, moim zdaniem, istotny i nowatorski wkład do dyskusji nad mechanizmami obecnymi w zjawisku generacji wysokich harmonicznych w układach molekularnych. Autor zwraca uwagę, iż wskazane złożone zależności między cechami generowanego promieniowania a właściwościami strukturalnymi tarczy molekularnej mogą być punktem wyjścia do wykorzystania w badaniach spektroskopowych.

Rozważania nad własnościami widm HHG uzupełnia ostatni fragment rozdziału dotyczący szczególnego zagadnienia, a mianowicie pojawiania się polaryzacji eliptycznej harmonicznych wzbudzanych promieniowaniem o polaryzacji liniowej. Miara ilościowa stopnia eliptyczności jest tu zależny od częstości (a więc rzędu kolejnych harmonik) parametr konstruowany z dwóch wielkości: stosunku składowych Fourierowskich momentu dipolowego prostopadłej i równoległej do polaryzacji liniowej pola promieniowania

laserowego oraz różnicy faz między nimi. Stosując metody przedstawione w rozdziale 3 przeprowadzone zostały drobiazgowo obliczenia, analizy i interpretacje eliptyczności harmonicznych dla drobiny N_2 w polu promieniowania o mocy $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$. Są to też ciekawe wyniki istotne dla postępu w rozumieniu szczegółów mechanizmu generacji harmonicznych w układzie bardziej złożonym niż atom.

Podsumowując rozprawę mogę powiedzieć, że obok bezpośredniego skutku poznawczego, jakim jest uzyskanie, dzięki wykonanym obliczeniom, nowej wiedzy szczegółowej na temat procesów jonizacji i generacji wysokich harmonicznych posiada ona walor metodologiczny przedstawiając systematyczne studium metody uogólnionego przybliżenia eikonalnego w zastosowaniu do obliczania prawdopodobieństwa jonizacji oraz metodę porównawczej analizy widm harmonicznych wysokiego rzędu generowanych podczas oddziaływania silnego pola promieniowania laserowego z cząsteczkami o różnej geometrii i symetrii. Są to wyniki oryginalne i mają istotną wartość dla poszerzenia wiedzy na te tematy. Jest to też przedsięwzięcie badawcze, które można uznać za otwarte, co odnosi się zarówno do ewentualnego wykorzystania uogólnionego przybliżenia eikonalnego do analizy innych niż omówione w rozprawie zagadnień, jak i do badań nad generacją harmonicznych w złożonych układach cząsteczkowych. Uzyskane w rozprawie wyniki, już częściowo publikowane w artykułach oryginalnych i prezentowane w trakcie międzynarodowych konferencji, stanowią dobry punkt wyjścia dla dalszych badań. Rozprawa wskazuje na głęboką wiedzę Autora z zakresu fizyki oddziaływania silnego promieniowania laserowego z układami kwantowymi, opanowanie niezbędnego tu aparatu teoretycznego i numerycznego oraz umiejętność prowadzenia badań naukowych w tym obszarze.

Konstrukcja rozprawy nie budzi zastrzeżeń, podział na rozdziały i podrozdziały dobrze organizuje strukturę tekstu i ułatwia czytelnikowi orientację w tej obszernej pracy. Niewątpliwie na objętość rozprawy wpływ miała widoczna koncepcja Autora możliwie pełnego i szczegółowego przedstawienia podjętej problematyki i metodologii jej rozwiązywania; wspomniałem już, że oceniam to jako walor rozprawy doktorskiej. Z redakcyjnego punktu widzenia zagadnienia omawiane w pracy były niełatwe do przedstawienia ze względu na bardzo techniczny charakter – zauważę, że nie licząc dodatków w rozprawie jest około czterystu numerowanych wzorów. Tym bardziej na bardzo pozytywną ocenę zasługuje staranność redakcyjna i edytorska, co w tekście o tak dużej liczbie często skomplikowanych wyrażen matematycznych oraz rysunków jest istotne.

Recenzowaną rozprawę doktorską pana magistra Felipe Cajiao Véleza oceniam więc zdecydowanie pozytywnie. Nie mam wątpliwości, że spełnia ona wymogi stawiane pracom doktorskim i wnoszę o dopuszczenie jej Autora do kolejnych etapów przewodu doktorskiego.

Toruń, 28 listopada 2016

