

## Premio Nobel de Física 2023: ¿Cómo rompimos la barrera del femtosegundo?

El Premio Nobel de Física 2023 fue entregado a Ferenc **Krausz**, Anne **L’Huillier** y Pierre **Agostini** por ‘*métodos experimentales que generan pulsos de luz de attosegundos para el estudio de la dinámica del electrón en la materia*’ [1]. Seguramente te sonará esto, junto con lo de que “*un attosegundo es a un segundo lo que un segundo es a la edad del universo*” [2], y suena sorprendente, pero ¿para qué queremos pulsos tan cortos? ¿Y tan difícil fue generarlos? ¿Qué fue lo que hicieron cada uno de los premiados?

### ¿PARA QUÉ QUEREMOS PULSOS DE LUZ TAN BREVES?

Es bien sabida la limitada ventana que tenemos los seres humanos para poder apreciar los fenómenos que ocurren en la naturaleza. No hace falta irse muy lejos para ver esto. Un colibrí, por ejemplo, puede aletear hasta 80 veces por segundo, mientras que el ojo humano solo puede captar entre 30 y 60 fotogramas por segundo, por lo que nosotros solo podremos ver un movimiento borroso, incapaces de discernir qué hacen sus alas mientras vuela. Por tanto, si queremos estudiar y entender su movimiento, necesitamos tomar una imagen en menos tiempo de lo que tarda el colibrí en batir sus alas.

Toda medida debe hacerse más rápido que lo que tarda el sistema a estudiar en cambiar significativamente [2]. Esta es la idea que ha motivado y motiva todos los esfuerzos en conseguir pulsos de luz cada vez más cortos, consiguiendo llegar hasta el mundo del attosegundo. ¿Pero qué procesos se producen tan rápido?

El límite de velocidad marcado por la velocidad de la luz en el vacío, implica que todo proceso que se dé a escalas temporales comparables al attosegundo ( $10^{-18}$  s), corresponde a escalas espaciales no superiores a unos pocos nanómetros. [4] En estas escalas espaciotemporales, se dan los movimientos de los electrones en los átomos y ser capaces de medir con tal rapidez nos permite estudiar cómo cambian las nubes electrónicas de un átomo en una reacción química o los detalles de la emisión por efecto fotoeléctrico, por ejemplo. Sin duda, procesos interesantes, pero ¿cómo se pueden medir iluminándolos con un pulso de luz?

Hay que tener en cuenta que cuando se habla de fotografiar procesos como estos, no nos referimos a una foto convencional del sistema en sí, sino al registro de su espectro en un instante determinado. El espectro de una sustancia se puede generar, entre otras formas, haciendo pasar luz a través de esta, absorbiendo o emitiendo determinadas frecuencias de luz en función de su estructura atómica y molecular. Por tanto, midiendo cómo cambia el espectro de una molécula, podemos saber cómo cambia su estructura y, por tanto, medir el movimiento de los núcleos y los electrones en su interior. [5] Estas nubes electrónicas cambian en attosegundos, por lo que necesitamos tomar el espectro más rápido que lo que tardan en cambiar significativamente; es decir, necesitamos que la luz con la que se ilumina a la sustancia no dure más que unos attosegundos, para que dicho espectro no contenga información de muchas configuraciones muy distintas entre sí de la misma. (Si no, pasaría como cuando se toma una foto con una cámara normal a un coche en una carrera de fórmula uno; que sale borrosa al captar luz proveniente del coche en muchas posiciones distintas).

La técnica más utilizada para este tipo de mediciones se conoce como “*pump-probe*” (figura (1)) y consiste en hacer incidir sobre la muestra, primero, un pulso de luz con la energía necesaria para que dé comienzo el proceso a estudiar (pulso *pump*) y, luego, otro pulso de luz con el que se obtiene el espectro de la muestra tras un tiempo de evolución (pulso *probe*). Esta diferencia temporal entre ambos pulsos puede ir variándose para cada vez que se realice el experimento, obteniendo así el espectro en diferentes estados de la evolución, lo que nos permite reconstruir posteriormente el proceso completo. Nótese que ambos pulsos deben ser diferenciables, es decir, no estar solapados en el tiempo o en el rango de frecuencias o en ninguno de los dos; para que, cuando incidan ambos en el detector, se sepa cuál es el que tiene la información relevante. [6]

Por último, aunque suene tentador, no basta con producir un solo fotón (lo que podría considerarse como el pulso más corto) porque un fotón solo puede interactuar con un solo elemento del sistema, y para estudiar la estructura

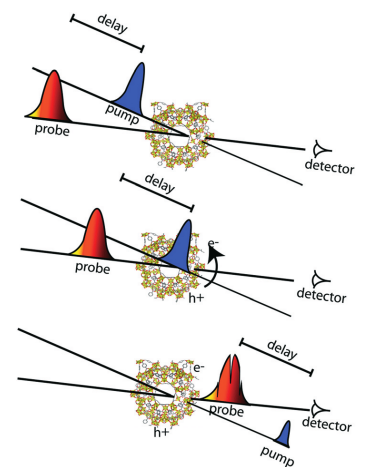


Figura 1: Representación esquemática de la técnica *pump-probe* sobre una muestra. [16]

del sistema en su totalidad, hace falta hacer incidir en él muchos fotones simultáneamente.

Ahora ya sabemos la motivación detrás de los trabajos de los galardonados con el Premio Nobel. Un galardón más que merecido cuando miramos la odisea que supuso el camino que nos llevó a romper la barrera hacia el *attomundo*.

## EL CAMINO HACIA EL ATTOMUNDO

En nuestro camino hacia la comprensión de los fenómenos que nos rodean, los seres humanos hemos estado marcados por la bendita maldición de que, por cada pregunta resuelta, surjan muchísimas más sin respuesta. Así, pronto nos topamos con procesos que ocurrían más rápido que de lo que éramos capaces de discernir con nuestros sentidos, obligándonos a recurrir a técnicas que nos permitieran hacer mediciones rápidas para obtener información de cada paso del proceso y poder así sacar conclusiones acerca de su naturaleza.



Figura 2: Fotografía de las variaciones de densidad del aire cercano a una vela mediante la técnica Schlieren, desarrollada por Toepler. [9]

El primer paso de gigante en esta línea fue dado en 1864 por Toepler, quien dio a luz a la técnica *pump-probe*, aplicándola en el estudio de ondas de sonido (ondas de presión). Toepler generaba primero una onda de presión con una chispa y, luego, con otra chispa retrasada con métodos electrónicos, tomaba una fotografía de dicha onda de presión (gracias a las variaciones en la densidad del aire derivadas de las variaciones de presión en la onda) mediante la técnica Schlieren, desarrollada por él mismo (figura (2)). Variando este tiempo de retraso conseguía fotografiar el proceso en diferentes momentos de evolución. La resolución de esta técnica estaba limitada por la duración de los flashes que producía cada chispa y por el tiempo de retraso que se era capaz de conseguir. En 1899, Abraham y Lemoine solventaron esta última limitación al conseguir separar ambos pulsos *pump* y *probe* a partir de la misma chispa, lo que estableció la resolución mínima potencialmente en el orden de nanosegundos ( $10^{-9}$  s). [8]

No fue hasta 60 años después, con la irrupción del láser y con su aplicación a la espectroscopía *pump-probe*, que se logró reducir este límite, teóricamente, al orden del femtosegundo ( $10^{-15}$  s). Aunque llegar a estos tiempos en la práctica tampoco fue fácil. Para realizar una medida ultrarrápida con pulsos de luz, además de que estos sean ultracortos, como ya hemos visto, es necesario que estos pulsos sean lo suficientemente **coherentes**; es decir, que el campo electromagnético oscile de forma controlada. Algo que no vino de la mano con el primer láser.

Este fue el láser de rubí de Maiman, que conseguía producir pulsos de luz visibles de milisegundos de duración, aunque de forma poco controlada. [10]. Estos tiempos de duración de los pulsos fueron reduciéndose con cada nuevo cambio en la forma de afrontar el problema.

Antes de comentar esta frenética carrera hacia el attomundo, conviene echar un vistazo a los principios básicos de un láser. La palabra láser viene del inglés *light amplification by stimulated emission of radiation*, es decir, que un láser es un dispositivo que se encarga de amplificar la luz gracias a la emisión estimulada de radiación, un fenómeno predicho por Albert Einstein en 1917 [11] que surge de la teoría cuántica de la luz. El funcionamiento básico del dispositivo es el siguiente (figura (4)): se excita un material (el **medio activo**) mediante radiación o corriente eléctrica, dándole energía a los átomos del medio para que pasen a un estado excitado en el que los electrones se encuentran en niveles de energía superiores. Los electrones tienden a volver al nivel de energía más bajo y, por tanto, cada electrón volverá espontáneamente a ese estado emitiendo un fotón en el camino. Al ser espontáneo, cada átomo emitirá en un momento distinto, en una dirección aleatoria distinta y cada fotón tendrá fases distintas (luz incoherente), aunque misma frecuencia (pues viene dada por la diferencia de energía entre los estados excitado y desexcitado, que es la misma para los mismos niveles de átomos iguales). Sin embargo, cuando un fotón con la energía adecuada pasa cerca de un átomo excitado, este provoca que se desexcite emitiendo un fotón que, esta vez sí, tendrá la misma fase y dirección que el fotón incidente (esta es la emisión estimulada), generando, así, luz coherente. No obstante, este proceso compite con la absorción de fotones por parte de los átomos del medio, por lo que algunos fotones volverán a ser reabsorbidos, volviendo el proceso más o menos eficiente en función del medio. También hay que asegurar que haya suficientes electrones en el nivel superior de energía y que dicho estado sea metaestable, para que los electrones no decaigan inmediatamente al estado de menor energía espontáneamente.



Figura 3: Primer dispositivo láser de Maiman [10]

Todo esto hace que solo algunos materiales sean aptos para la emisión láser. [12]

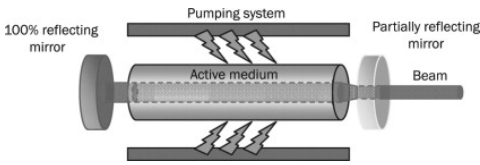


Figura 4: Estructura esquemática de un láser [12]

Para que este proceso genere la suficiente energía, se encierra el medio activo en una **cavidad resonante** que consta de 2 espejos. Estos espejos hacen pasar de nuevo los fotones generados, estimulando más y más emisión de fotones y provocando una *avalancha* de estos, amplificando la emisión láser. Además, uno de los espejos es parcialmente reflectante, lo que significa que dejará pasar parte de la luz que llega a él: este es el rayo láser que observamos.

El primer paso hacia los límites de duración del láser fue dado tan pronto como en 1962 por Hellwarth y McClung, que consiguieron hacer más controlada la emisión de los pulsos del láser de rubí mediante la técnica del **Q-switching**. Lo que permitió reducir la duración del pulso por debajo del microsegundo. [4] Esta técnica permite modular la salida del haz de la cavidad resonante, de tal forma que puedan acumularse muchos más fotones en esta durante un tiempo, favoreciendo así la emisión estimulada de radiación y consiguiendo emitir un solo pulso de radiación láser una vez pase dicho periodo de tiempo. Por tanto, cuanto más tiempo se pueda mantener más fotones dentro de la cavidad, más energía se almacena y más potente y corto será el pulso emitido posteriormente. No obstante, para bajar la duración de este más allá del microsegundo, fue preciso un cambio de perspectiva.

Este cambio de perspectiva vino en 1964 con la técnica de **anclado de modos** (o *mode-locking*) de la mano de Hargrove, Fork y Pollack, pudiendo generar pulsos de nanosegundos. Al igual que las ondas estacionarias en una cuerda de guitarra se producen solo si la longitud de la cuerda es un múltiplo entero de la mitad de la longitud de onda de la onda que por ella se propaga (figura (5)), los modos son aquellas frecuencias que cumplen, en condiciones ideales, que la longitud de la cavidad resonante del láser es un múltiplo entero de la mitad de la longitud de onda ( $\lambda$ ) de la radiación (es decir,  $\lambda = 2L/n$  con  $n$  un número natural). Estos modos son seleccionados de la banda de frecuencias natural en la que emite el medio activo (pues un material no emite una única frecuencia) al ser estos los únicos que podrán resonar en la cavidad. “Anclar” los modos se refiere a imponer un desfase (múltiplo par de  $\pi$ ) entre los diferentes modos. Estos, al superponerse entre sí, dan resultado a un tren de pulsos cortos. [14] Dos años más tarde, en 1966, la introducción de elementos pasivos en la cavidad permitió generar pulsos de picosegundos ( $10^{-12}$  s). [4]

Posteriores mejoras en la cavidad resonante y el perfeccionamiento de la técnica de anclado de modos permitió generar pulsos láser de hasta varios femtosegundos, que, a su vez, podían ser utilizados para conseguir pulsos de hasta 6 femtosegundos para mediados de los años 80, aunque de energías muy reducidas [15]. Y es aquí, una vez llegados a este momento, que nos topamos con un problema fundamental.

Estamos acostumbrados a imaginar una onda real cualquiera con una forma perfectamente sinusoidal. Sin embargo, si una onda fuera perfectamente sinusoidal, tendría que ser infinita, pues la función seno ni empieza ni termina en ningún valor concreto de su argumento. Esto es imposible en el mundo real, pues toda onda que vemos ha sido generada en algún momento finito del pasado (pues el universo mismo tuvo un inicio, no lleva existiendo infinitamente). Por tanto, las ondas del mundo real no son sino pulsos de mayor o menor duración. Estos pueden entenderse como resultado de la superposición de muchas ondas sinusoidales infinitas, que se anulan en todos los puntos, excepto donde existe el pulso. Se dice entonces que todo pulso tiene un ancho de banda que lo soporta. En este contexto surge uno de los resultados más importantes de la mecánica ondulatoria, conocido como el teorema del ancho de banda. Este teorema, que puede considerarse como la variante clásica y predecesora del famoso principio de incertidumbre de Heisenberg de la mecánica cuántica, establece que la duración de un pulso de luz es inversamente proporcional al ancho de banda que lo soporta. [13]. Por tanto, cuanto más corto sea un pulso, más frecuencias necesita que se superpongan para soportarlo y, además, más difícil será que se mantenga la coherencia.

Para generar pulsos más cortos que un femtosegundo, se necesita un ancho de banda muy amplio. Por ejemplo, para generar un pulso de 200 as se necesita un ancho de banda que comprenda desde el infrarrojo cercano, hasta el ultravioleta extremo [23]. Y, por ende, necesitamos un mecanismo que nos permita generar radiación *coherente* en

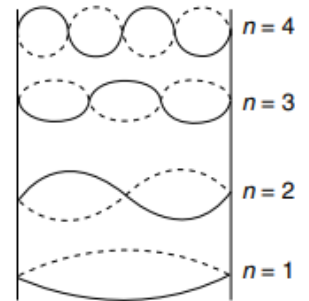


Figura 5: Ondas estacionarias en una cuerda con los extremos fijos, cada  $n$  representa un modo de la cuerda.

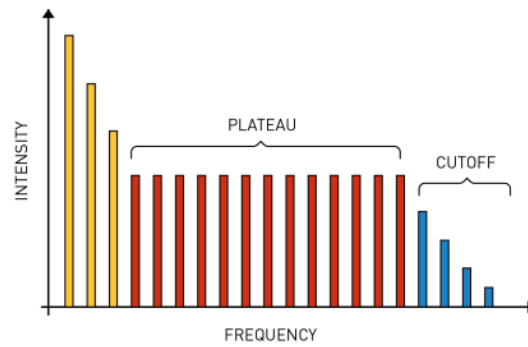


Figura 6: Espectro general de una generación de armónicos elevados mostrando las tres características principales: caída de alta intensidad, meseta y corte [3]

todo ese rango espectral. Esta es la barrera que nos separa del *attomundo* y que pudimos superar gracias al trabajo de nuestros protagonistas.

### LA CLAVE: L'HUILLIER

La vía para superar la barrera al *attomundo* fue divisada, por primera vez, por **L'Huillier** en los años ochenta, cuando observó, por primera vez, el fenómeno de generación de armónicos altos (o *High-Harmonic Generation*, HHG, en inglés). La sorpresa que este fenómeno supuso, impulsó el desarrollo de un marco teórico y una mejora de las técnicas experimentales que, en última instancia, desembocó en la generación de pulsos de attosegundos.

Para entender este fenómeno, hay que recordar que la luz es una onda electromagnética; esto es, que, allá donde haya un rayo de luz, hay un campo eléctrico y un campo magnético oscilando. Cuanto más intensa sea la luz, más altos serán los valores que alcanzarán estos campos y más capacidad tendrán de influenciar a una partícula cargada eléctricamente. Incluso antes de la década de los 80, ya se lograba generar láseres con una intensidad del campo eléctrico asociado tan solo un orden de magnitud inferior al que mantiene ligado al electrón en el átomo de hidrógeno. [4] Esto significa que cuando este láser ilumina a un átomo, la presencia del campo eléctrico oscilatorio no es una simple pequeña perturbación que puede ser entendida mediante una aproximación lineal, sino que su interacción con el átomo genera una respuesta altamente no lineal. Los posibles fenómenos que pueden surgir de la interacción entre radiación y los electrones de un átomo son la excitación o ionización del átomo, o la emisión de radiación. Así, **Agostini** (que no tiene nada que ver con el de *Planeta de Agostini*), observó por primera vez una absorción de un exceso de fotones por encima del mínimo necesario en el proceso de ionización por multi-absorción de fotones en 1979 (fenómeno conocido como ATI, de *above-threshold ionization* en inglés). [17]

Por su parte, L'Huillier y colaboradores observaron, por primera vez, en 1982 átomos múltiplemente ionizados como resultado de este mismo proceso. [18] Y, en 1988, observaron que, bajo intensidades altas, la radiación emitida presentaba un patrón inesperado. Bajo intensidades normales, se había observado que se emitían armónicos de la radiación incidente (es decir, radiación con frecuencias múltiplos de la frecuencia de la radiación incidente) con intensidades menores para los armónicos más altos, algo que estaba en total acuerdo con la teoría perturbativa que explicaba las interacciones radiación-materia del momento. Sin embargo, lo que Huillier y compañía observaron en [19] fue que, bajo intensidades altas, a partir de un cierto número de armónicos de intensidad decreciente, los siguientes se mantenían todos con intensidad similar, formando una especie de meseta, hasta que, a partir de un determinado número de armónicos, la intensidad continuaba su tendencia decreciente (figura (6)). Esto abría la posibilidad de construir fuentes coherentes de alta frecuencia de forma más eficiente, lo que sería vital para abrir la puerta del *attomundo*.

Además, este descubrimiento supuso una ruptura teórico-experimental inesperada. Hasta entonces se entendía la generación de armónicos como el resultado de la desexcitación de un electrón previamente excitado por absorción de varios fotones, resultando en la emisión de un único fotón con energía igual a la suma de todos los que había absorbido. Así, la probabilidad de que el electrón absorbiera varios fotones decrecía tanto cuanto mayor fuera el número de fotones implicados, por lo que la intensidad de los armónicos superiores deberían decrecer sin ninguna meseta entre medio. Esta discrepancia entre expectativa y experimento alimentó una búsqueda de un modelo que nos permitiera entender

qué estaba pasando en el átomo al ser excitado con intensidades altas.

### EL MODELO DEL HOMBRE INGENUO

En 1991, Anne L'Huillier, Schafer y Kulander resolvieron numéricamente la ecuación de Schrödinger para este caso, pudiendo reproducir computacionalmente los resultados experimentales y encontrando así, de manera experimental, una fórmula para la energía de corte de los armónicos para gases atómicos inertes:

$$E_c = I_p + 3U_p \quad (1)$$

donde  $I_p$  es el potencial de ionización del átomo y  $U_p / I\lambda$  es la energía cinética media adquirida por el electrón en el campo del láser. [3] Esta fórmula tan simple nos mostraba que, para lograr armónicos más altos (de frecuencias y  $E_c$  mayores), necesitábamos iluminar el gas mediante un láser de menor frecuencia ( $\lambda$  mayor), algo totalmente contraintuitivo y que alimentó la investigación en esta línea para entender qué estaba pasando, pues con la ecuación (1) conseguimos reproducir los resultados, pero ¿qué había detrás de este proceso?

Fue en estos momentos cuando, a inicios de 1993, se celebró la conferencia Super-Intense Laser-Atom Physics en Bélgica. Allí, se reunieron algunos de los científicos más importantes en este área, como L'Huillier y Agostini, y todos los asistentes fueron testigos de cómo Kulander presentó al mundo el primer modelo sobre el mecanismo detrás de las observaciones de Agostini y L'Huillier de los fenómenos ATI y HHG. [20] Posteriormente, Paul Corkum [21] presentó una alternativa a este modelo semiclásico de Kulander que acabó conociéndose como *modelo de tres etapas* o *modelo del hombre ingenuo*, por su sencillez. Se representa en la figura (7).

En este modelo, el electrón atraviesa primero la barrera de potencial creada por el núcleo (barrera coulombica) mediante **efecto túnel**. Aparece, así, como partícula libre (lo que permite una aproximación semiclásica) con velocidad inicial nula en el campo ionizante. Una vez aquí, es acelerada por la fuerza de Lorentz creada por el campo electromagnético del láser, ganando energía cinética y redirigiéndose al átomo al invertirse el signo de la amplitud del campo. Finalmente, el electrón vuelve a ser capturado por el átomo, convirtiendo la energía cinética adquirida en un fotón de alta frecuencia.

Este modelo lograba dar una explicación sencilla a los aspectos observados en los experimentos de Agostini y L'Huillier. En primer lugar, el fenómeno de ATI quedaba explicado por el simple hecho de que el electrón, una vez libre, ganaba energía cinética en pasos correspondientes a la longitud de onda del láser, lo que explicaba que los electrones tuvieran más energía que el mínimo necesario para ionizar el átomo. En segundo lugar, la fórmula encontrada empíricamente de la energía de corte de los armónicos en el fenómeno de HHG quedaba explicada gracias a que la dinámica clásica de un electrón ionizado con velocidad inicial nula y cuya trayectoria vuelve al átomo que abandonó, está limitada a energías cinéticas durante la recollisión de, aproximadamente,  $3U_p$ . Por tanto, la máxima energía emitida del fotón en la última etapa del modelo será igual a la suma de la energía cinética del electrón en la colisión ( $3U_p$ ) y la energía de ionización del átomo ( $I_p$ ), obteniendo, así, la fórmula (1).

Finalmente, en 1994, Lewenstein, L'Huillier y Corkum, junto con otros coautores, desarrollaron una teoría completamente cuántica del modelo [22], confirmando las interpretaciones semiclásicas de los modelos de Kulander y Corkum. Esto nos permitió entender y predecir las condiciones bajo las cuales sería posible la generación de pulsos

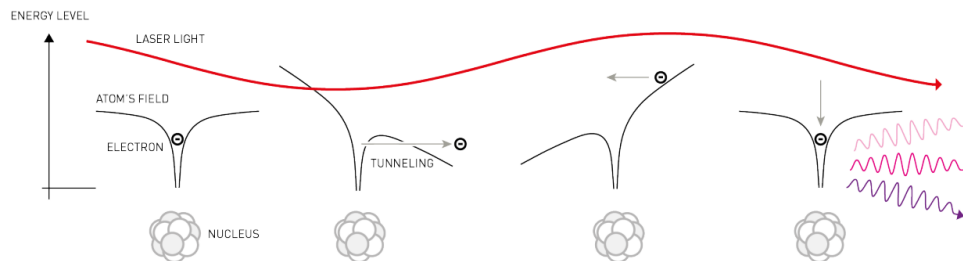


Figura 7: El modelo de tres etapas para la generación de armónicos superiores.[3]



de attosegundos, trabajo que fue desarrollado a finales de los años 90 por L'Huillier y compañeros. Así, ya teníamos las armas necesarias para tirar abajo la barrera y entrar triunfantes al *attomundo*.

### ¡EUREKA! EL TREN DE AGOSTINI

Ya teníamos todo lo necesario para producir los pulsos de attosegundos, pero nos faltaba una forma de saber y de demostrar que, efectivamente, se habían generado; es decir, una técnica para medir los pulsos de attosegundos, puesto que, hasta entonces, no existía un método para medir con la resolución necesaria pulsos tan cortos con las longitudes de onda que estaban en juego, ¡por lo que podríamos haber estado generando pulsos de attosegundos sin saberlo!

En 1994, Agostini realizó un experimento [24] que sentó las bases para la propuesta de la técnica RABBIT (*reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions*) dos años más tarde. Esta técnica permite la caracterización temporal de los pulsos que se hacen incidir sobre el gas correspondiente, aprovechando las variaciones que se producen en el espectro de los fotoelectrones emitidos en función del retraso entre el tren de pulsos y el pulso infrarrojo que se ha utilizado para generarlos. [4]

Con la entrada del nuevo milenio, en 2001, Agostini consiguió generar y medir, por primera vez, **un tren de pulsos de 250 as** de duración, separados entre sí por 1.35 fs. Y así fue como lo hizo: [23]

Si un pulso láser intenso de femtosegundos de duración se hace incidir sobre un gas atómico, la respuesta no lineal de los electrones, como hemos visto, hace que se generen armónicos altos de la radiación del láser gracias al fenómeno de HHG. Por razones de simetría, solo son emitidos armónicos impares. Los pulsos de attosegundos se generarán por la interferencia de varios de estos armónicos emitidos, de forma parecida a como se generaban pulsos cortos con la técnica de anclado de modos que hemos visto, pero sin necesidad de una cavidad resonante (que hacía difícil conseguir una gran precisión) y con un mayor ancho de banda. Cálculos teóricos predicen la generación de un tren de pulsos de attosegundos separados por la mitad del periodo del pulso láser inicial. Para medir este tren, Agostini implementó la técnica RABBIT para determinar la relación entre las fases de pares de armónicos que se superponen para formar los pulsos y, así, poder inferir la duración de estos.

Si se hace incidir tanto los pulsos de attosegundos, como el láser inicial (cuya longitud de onda se encuentra en el infrarrojo, como hemos visto que es lo mejor para la HHG) en un gas atómico, este será ionizado por la combinación de ambos. Los armónicos individuales son demasiado poco intensos como para producir una respuesta no lineal de los electrones de los átomos del gas, por lo que solo provocarán ionización por un solo fotón (por efecto fotoeléctrico normal). El campo del láser infrarrojo es lo suficientemente energético como para generar transiciones multifotónicas en el continuo (es decir, en el régimen del electrón libre). Por tanto, la ionización producida por los armónicos puede ser complementada por la absorción o emisión de uno o varios fotones del campo infrarrojo, lo que resultará en la aparición de fotoelectrones con energías entre medias de los fotoelectrones correspondientes a la absorción única de armónicos (lo que se conoce como *sidebands*). Estas *sidebands*, para intensidades del campo infrarrojo no muy altas, aparecen en energías correspondientes a múltiplos pares de la energía del fotón infrarrojo, por lo que aparecerán exactamente a medio camino entre los fotoelectrones generados únicamente por armónicos (múltiplos impares del fotón infrarrojo). Y solo contribuyen a estas los armónicos adyacentes (armónicos  $q-1$  y  $q+1$ ), cada una por dos caminos cuánticos energícamente equivalentes (ver figura (8)).

La probabilidad cuántica de que se generen fotoelectrones con energías en estas *sidebands* depende de la fase relativa de los armónicos adyacentes y del retraso del campo infrarrojo respecto de los armónicos. Por tanto, si se mide cómo varía la intensidad de estas *sidebands* con respecto a este tiempo de retraso, se puede calcular la diferencia en las fases de los armónicos adyacentes y, con ello, inferir la duración de los pulsos en el tren de pulsos resultante de la superposición de estos.

Así, Agostini y su grupo hicieron todo esto empezando con un pulso de 40 fs de un láser de titanio-zafiro de 800 nm de longitud de onda central y 1kHz de frecuencia, obteniendo resultados que apuntaban unívocamente a que se

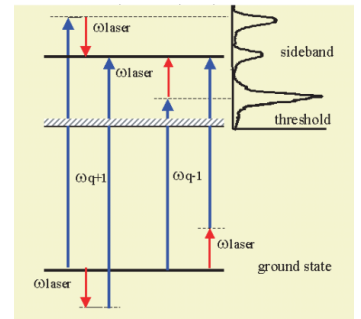


Figura 8: Posibles caminos que pueden seguir los electrones al ionizarse por la combinación de un fotón de uno de los armónicos ( $q-1$  o  $q+1$ , con frecuencias  $\omega_{q-1}$  y  $\omega_{q+1}$ , respectivamente) y un fotón del láser inicial de frecuencia  $\omega_{laser}$ , para dar lugar a un fotoelectrón dentro de la *sideband* de frecuencia  $\omega_q = q\omega_{laser}$ . Los picos marcados con línea discontinua corresponden, de abajo a arriba, a las intensidades de los armónicos  $q-1$  y  $q+1$ . [23]

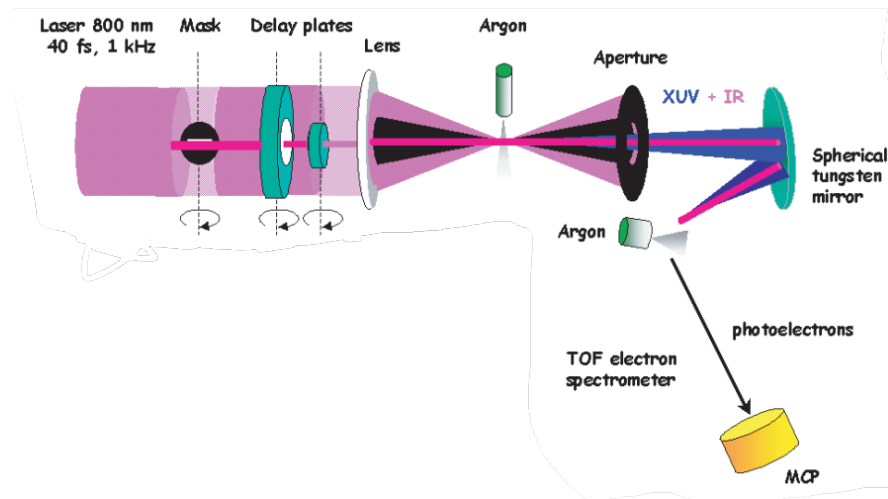


Figura 9: Esquema del dispositivo experimental utilizado por Agostini y su equipo en la generación de un tren de pulsos de 250 as. Primero se separa el láser inicial (IR), por una máscara, en dos partes: una exterior anular, de mayor energía, y otra central pequeña de menor energía (dos órdenes menos). Ambas partes son concentradas en el chorro de argón mediante una lente donde el foco más pequeño de la parte anular genera los armónicos en el ultravioleta extremo (XUV), cuya superposición resulta en el tren de attosegundos. La apertura bloquea la parte anular del láser inicial de tal forma que solo continúan la parte central de menor energía de este y los armónicos generados en el argón hacia el espectrómetro de botella. Dentro de este, la luz es focalizada por un espejo esférico hacia otro chorro de argón donde se generan los fotoelectrones que viajan por el tubo (TOF) y son detectados por el dispositivo MCP, que mide las intensidades correspondientes a cada energía de los electrones. El retraso entre el pulso láser inicial y los armónicos generados puede controlarse mediante las láminas señaladas (delay plates). [23]

había generado un tren de pulsos de 250 as separados por 1.35 fs (que es exactamente la mitad del periodo del láser incidente, como se predijo teóricamente) por la interferencia de los armónicos generados por HHG a partir del láser incidente en una muestra de argón (gas atómico). Un esquema del experimento puede verse en la figura (9).

No obstante, un tren de pulsos de attosegundos tampoco nos servía de mucho para estudiar la dinámica en este régimen temporal con la técnica *pump-probe*, puesto que la separación temporal entre los pulsos (1.35 fs en el experimento de Agostini) era tan corta, que los procesos físicos, químicos o biológicos bajo estudio, una vez excitados y medidos por uno de los pulsos del tren, no tienen tiempo suficiente para decaer completamente y volver a su estado desexcitado antes de que llegue el otro pulso (algo esencial para que el espectro que se obtenga esté lo suficientemente resuelto). Por tanto, si no logramos conseguir un pulso único de attosegundos de duración, la cantidad de procesos que podemos estudiar es tremendamente limitada. [7]

Habíamos conseguido generar un tren de pulsos de attosegundos, pero todavía no habíamos sido capaces de generar un único pulso de attosegundos de duración. Hasta que llegó nuestro tercer protagonista: **Ferenc Krausz**.

### KRAUSZ Y LA CONQUISTA DEL *ATTOMUNDO*

Krausz y sus colaboradores formaron un batallón paralelo a la corriente de L'Huillier y Agostini. Él quería conseguir producir y medir un único pulso de attosegundos de duración, pues sabía que era eso lo que se necesitaba para estudiar los fenómenos que habitaban en el *attomundo*. Sin embargo, conseguir esto requería de técnicas que debían ser desarrolladas en paralelo a lo que ya hemos comentado.

Conseguir un único pulso de attosegundos de duración está limitado por una barrera fundamental. Al ser la luz una onda electromagnética, los pulsos láser no pueden ser más cortos (especialmente) que la longitud de onda de la onda portadora ( $\lambda$ ), por lo que la duración estaba limitada a  $\lambda/c$ , con  $c$  la velocidad de la luz. Así, a menor frecuencia (mayor longitud de onda), mayor debe ser la duración del pulso mínimo que se puede conseguir. Esta limitación impone que, si queremos lograr un pulso de attosegundos, la longitud de onda portadora que tenemos que usar es menor que la longitud de onda de la luz visible (pues, por ejemplo, la duración de un único ciclo de luz roja es de 2 fs). [7]

Conseguir radiación coherente y suficientemente energética en longitudes de onda tan pequeñas (frecuencias altas), ya hemos visto que era posible gracias al fenómeno de HHG (aunque también existía otro fenómeno no lineal, conocido como dispersión estimulada de Raman, que lo permitía). Sin embargo, ambos fenómenos sufrían del mismo problema

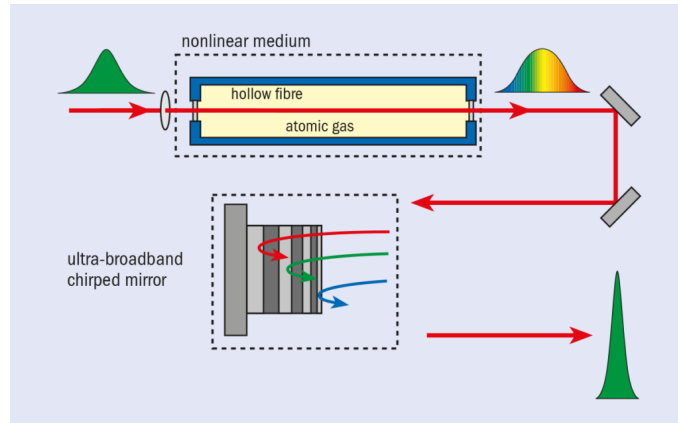


Figura 10: Esquema de la técnica CPA. Se hacen pasar los pulsos de 20 fs por un medio no lineal. Este medio tiene diferente índice de refracción en función de la intensidad, lo que resulta en un aumento del ancho de banda que soporta el pulso, lo que posibilita obtener un pulso más corto. Este pulso ensanchado se hace pasar por un *chirped mirror*, introduciendo un desfase controlado entre las diferentes frecuencias, pudiendo obtener finalmente un pulso de 5 fs y mucho más energético (0.1 teravatios). [7]

para el objetivo de Krausz: el tiempo entre los pulsos de attosegundos del tren que permitían obtener era demasiado corto (1.35 fs con HHG y 11 fs con la dispersión de Raman) como para ser utilizados en espectroscopía *pump-probe*. Esta limitación podía sobrepasarse si se indujera el fenómeno de HHG mediante un láser lo suficientemente corto, de tal forma que solo se generara un único pulso. Esto necesitaba de un pulso que no durara más que 5-10 fs y que tuviera energías suficientemente elevadas. [7]

Hemos dicho que para los años 80 ya se habían producido y medido pulsos tan cortos como 6 fs, sin embargo, para poder ser empleados en la generación de un pulso de attosegundo, debían de ser 4-5 órdenes de magnitud más energéticos de lo que eran. Para esto, hizo falta el desarrollo de 3 grandes invenciones: el láser de zafiro dopado con titanio capaz de emitir en un amplio ancho de banda; la técnica de autoanclaje de modos (o *Kerr-lens mode locking*, KLM, en inglés), y la amplificación de pulso gorjeado (*chirped-pulse amplification*, CPA, en inglés).

Con la llegada del primer KLM-láser de safiro dopado con titanio, se consiguió producir pulsos de 60 fs de duración, que podía todavía acortarse un orden de magnitud más hasta el límite dado por el ancho de banda del medio activo. Para inicios de los años 90, ya se consiguió bajar la duración a 10 fs. [8]

Sin embargo, estos pulsos únicos no eran lo suficientemente energéticos y los métodos para amplificar los pulsos los estiraban necesariamente a, aproximadamente, 20 fs. Para acortarlo de nuevo sin perder energía, hizo falta el desarrollo de unos espejos especiales (*chirped mirrors* desarrollados por el equipo de Krausz y colaboradores) que dejan penetrar más la luz de longitud de onda más larga antes de reflejarse que la luz de longitud de onda más corta, introduciendo un desfase controlado entre las componentes, lo que puede acortar el pulso. Estos *chirped mirrors*, junto con la invención de un método para aumentar el ancho de banda que soporta a un pulso, hicieron posible pulsos de 10 fs con intensidades pico de 100 gigavatios (ver figura (10)). Esto es, éramos capaces de obtener pulsos de un único ciclo de la onda portadora, lo que nos permitía ser capaces de confinar la interacción entre los electrones de los átomos que participan en fenómenos como la HHG a un único ciclo del campo,

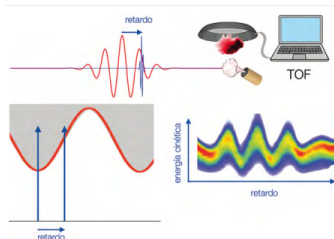


Figura 11: Representación esquemática de la técnica *streaking*. [4]

lo que nos abre la puerta a generar un único pulso de attosegundos de duración. [7]

Para medir el pulso de attosegundos de duración que pudieran generar, Krausz y su equipo emplearon la técnica *streaking* (figura (11)) para inferir, a partir del espectro de energías de los fotoelectrones emitidos de un gas atómico (en este caso kriptón) bajo la incidencia del *attopulso* junto con el láser infrarrojo de 5 fs utilizado para generarlo, la duración del pulso de attosegundos de duración. La técnica consiste en registrar dicho espectro de energías en función del retardo relativo entre el *attopulso* y el pulso láser utilizado para generarlo. El pulso de attosegundo ioniza los electrones en un tiempo mucho menor al ciclo del campo infrarrojo. Este campo modula el umbral de ionización de forma que la energía cinética de los fotoelectrones detectados es diferente según el valor casi instantáneo de este campo en el momento de ionización. La forma del espectro de fotoelectrones da la forma temporal del pulso infrarrojo, y, de



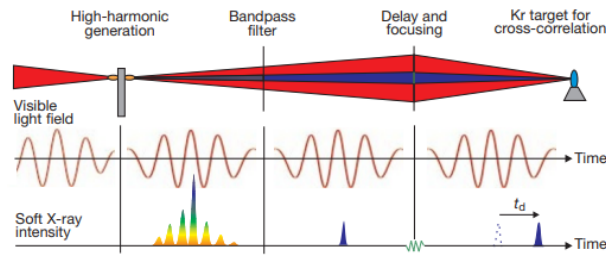


Figura 12: Representación esquemática del experimento que Krausz y su equipo realizaron en 2001, en el que generaron y midieron por primera vez un pulso aislado de attosegundos. Primero el láser de unos pocos ciclos se hace incidir en un gas para producir, mediante HHG, un tren de pulsos en el rango espectral del ultravioleta extremo y rayos X suaves (nótese que los fotones de mayor energía solo están presentes en un único pulso, cerca del pico central del láser incidente). Este tren se hace pasar por un filtro que elimina los pulsos menos energéticos dejando solo un pulso de rayos X suaves, que es luego retrasado respecto del láser inicial un tiempo  $t_d$  variable y ambos son focalizados a la muestra de kriptón para la ejecución de la técnica *streaking*. [25]

la variación de las anchuras de dicho espectro, se infiere la duración del *attopulso*. [4]

Con esta técnica, el equipo de Krausz logró producir y medir **un único pulso de 650 150 as** de duración [25], con el experimento mostrado en la figura (12), unos pocos meses más tarde de que Agostini consiguiera producir y medir su tren de pulsos de 250 as. Así, cayó la barrera del femtosegundo y entramos triunfantes al *attomundo* tras una apasionante carrera con muchísimos obstáculos en el camino.

### YA LO TENEMOS, ¿Y AHORA QUÉ?

Después de esta consecución del objetivo tras más de 40 años bajando los tiempos de duración de los pulsos láser, es normal que sientas una sensación similar a cuando te acabas tu serie favorita y no sabes qué hacer. Pero lo cierto es que esto es solo el comienzo.

El mismo Krausz no se quedó satisfecho en 2001 tras la obtención del primer *attopulso*, pues no se lograba tener un control absoluto de la interacción entre el *attopulso* y el electrón, por desfases entre la onda portadora con respecto al perfil de amplitudes del pulso, que desembocaban en pequeñas variaciones en la evolución del campo láser y podrían ocasionar variaciones de un pulso a otro en la evolución de los procesos electrónicos provocados o medidos por estos campos. Tras otro año de intenso trabajo y aplicando la técnica del peine de frecuencias del Nobel de 2005, Theodor Hänsch, Krausz pudo, al fin, tener control sobre el perfil de onda de pulsos intensos. [8] Ahora sí se podía aplicar los *attopulsos* al estudio de procesos con total confianza y seguridad en las técnicas desarrolladas. Había nacido la **attofísica**.

Esta nueva rama ha permitido dar respuestas a aspectos tan fundamentales como el transcurso temporal de la ionización, la modificación transitoria de la respuesta óptica por el propio campo transmitido o la transferencia de carga ultrarrápida en moléculas. [4] Además de todo esto, la *attofísica* ya está adentrándose en terreno de la Biología, liderada por el grupo de Krausz en el Instituto Max Planck de óptica cuántica. Combinando óptica de banda ancha, fuentes láser ultrarrápidas, y tecnologías de resolución de campos de femtosegundo-attosegundo, su grupo ha desarrollado técnicas que pueden detectar cambios en la composición molecular de biofluidos. Lo que promete una nueva técnica analítica de diagnóstico *in vitro* para detectar trazos moleculares característicos de enfermedades en muestras de sangre, con la gran ventaja de que muchas moléculas pueden ser monitoreadas al mismo tiempo, y de que la radiación es no ionizante y, por tanto, no dañina. [3]

Pero lo mejor de esta carrera no es que hayamos conseguido el control sobre los *attopulsos*, ni que ya hayamos podido utilizarlos para iluminar regiones que permanecían oscuras en nuestro mapa de conocimiento, sino que ha abierto muchísimos frentes nuevos de investigación, que harán crecer aún más la ciencia y, con ella, nuestra sociedad. Quizá lo mejor del nacimiento de esta rama son todas las nuevas preguntas que nos estamos haciendo y que antes no podíamos ni formular, siendo esta historia un ejemplo más de la bendita maldición que recae sobre nosotros.

En definitiva, el Premio Nobel de Física de 2023 es la forma que tiene la sociedad de homenajear, no solo a estos tres grandes científicos, sino a todos y cada uno de los que han estado empujando para derribar la barrera que nos impedía entrar al *attomundo* y, que, tras un esfuerzo colectivo extraordinario, culminó con la consecución de la herramienta que

nos posibilita y nos posibilitará estudiar fenómenos que antes no podíamos siquiera imaginar que estaban a nuestro alcance. Es un premio al esfuerzo de mejorar técnicas para ser cada vez más precisos, al ingenio de sortear las barreras que la naturaleza nos ponía en el camino, a la curiosidad insaciable del ser humano de entender la realidad en la que vivimos y a la constancia de todos los científicos que trabajan cada día para hacer crecer cada vez más al gigante en cuyos hombros nos sentamos nosotros para ver más lejos que antes.

- 
- [1] THE NOBEL PRIZE *Press release*. Enlace web
- [2] THE ROYAL SWEDISH ACADEMY OF SCIENCE *The Nobel Prize in Physics 2023: Popular Information*
- [3] THE ROYAL SWEDISH ACADEMY OF SCIENCE *The Nobel Prize in Physics 2023: Advanced Information*
- [4] LUIS PLAJA, “Attociencia: Nobel de Física 2023”, *Revista Española de Física* **37-4**, 0213-862X (2023).
- [5] YUDHIJIT BATTACHARJEE, “Measuring the immeasurable”, *Nature* **412**, 474 (2001).
- [6] CENTER FOR MATERIALS AND DEVICES FOR INFORMATION TECHNOLOGY RESEARCH *Youtube video link: Femtosecond Pump-Probe Spectroscopy*
- [7] FERENC KRAUSZ, “From femtochemistry to attophysics”, *Phys. World* **14** (9) 41 (2001).
- [8] FERENC KRAUSZ, “The birth of attosecond physics and its coming age”, *Phys. Scr.* **91** (2016) 063011.
- [9] PHANTOM *High-Speed Imaging deckt das Unsichtbare mit Schlierentechnik auf* Enlace web
- [10] WIKIPEDIA *Laser de rubí*. Enlace web
- [11] AMERICAN PHYSICAL SOCIETY *Einstein Predicts Stimulated Emission* Enlace web
- [12] AITZOL LAMIKIZ, ENEKO UKAR, IVAN TABERNEIRO, SILVIA MARTINEZ, “Thermal advanced machining processes”, *Modern Machining Technology*, J. PAULO DAVIM, Woodhead Publishing (2011)9780857090997.
- [13] H. J. PAIN, *The Physics of Vibrations and Waves* sexta edición, John Wiley & Sons , 2005
- [14] WIKIPEDIA *Mode locking* Enlace web
- [15] FERENC KRAUSZ, THOMAS BRABEC, “Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics”, *Rev. Mod. Phys.* **72** 545.
- [16] J. G. SANTACLARA, F. KAPTELJN, J. GASCON, M. A. VAN DER VEEN, “Understanding metal-organic-frameworks for photocatalytic solar fuel production”, *CrystEngComm*, 2017, **19**, 4118.
- [17] P. AGOSTINI ET AL, “Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms”, *Phys. Rev. Lett.*, **42** 1127 (1979).
- [18] L’HUIILLIER, A. AND LOMPRES, L. A. AND MAINFRAY, G. AND MANUS, C., “Multiply Charged Ions Formed by Multiphoton Absorption Processes in the Continuum”, *Phys. Rev. Lett.*, **48** 26 (1982).
- [19] M FERRAY ET AL, “Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** L31 (1988).
- [20] K.C. KULANDER, K.J. SCHAFER AND J.L. KRAUSE, “Dynamics of Short-Pulse Excitation, Ionization and Harmonic Conversion”, Proceedings of a NATO Advanced Research Workshop on SILAP (Super-Intense Laser-Atom Physics), 12 (13) eds. B. Piraux, A. L’Huillier and K. Rzazewski (Plenum Press, New York, 1993); K.J. Schafer, B. Yang, L.F. DiMauro and K.C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* , **70** 1599 (1993).
- [21] P. B. CORKUM, “Plasma perspective on Strong-Field multiphoton ionization”, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1994 (1993).
- [22] M. LEWENSTEIN, PH. BALCOU, M. YU. IVANOV, A. L’HUIILLIER AND P.B. CORKUM, “Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields”, *Phys. Rev. A.*, **49**, 2117 (1994).
- [23] P. M. PAUL *et al.*, “Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation”. *Science*, **292** 1689-1692(2001).
- [24] J. M. SCHINS, P. BREGER, P. AGOSTINI, R. C. CONSTANTINESCU, H. G. MULLER, G. GRILLON, A. ANTONETTI, AND A. MYSYROWICZ, “Observation of Laser-Assisted Auger Decay in Argon”. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 2180 (1994).
- [25] M. HENTSCHEL *et al.*, “Attosecond metrology”. *Nature*, **414**, 509-513 (2001).