

Verhalten von Atomen in hochintensiven Laserfeldern

Henri Zimmermann

17. Juni 2009

Inhalt

- 1 Einleitung
- 2 Effekte induziert durch intensive Laserstrahlung
 - ATI
 - HHG
- 3 Theoretische Ansätze
 - Keldysh-Näherung
 - Strong-Field-Näherung
- 4 experimentelle Ergebnisse

Einleitung

- hochintensiv: Laserfelder sind stark genug, um mit dem Coulombfeld, das Elektronendynamik bestimmt zu konkurrieren
- Beispiel: Wasserstoffatom
- $E \approx 5 \cdot 10^9 \frac{V}{m} \rightarrow I \approx 3.51 \cdot 10^{16} \frac{W}{cm^2}$
- magnetisches Feld: ($\approx 10^3 T$)
- Elektronengeschwindigkeit: bis zu $\frac{1}{100} c_0$

Effekte induziert durch intensive Laserstrahlung

- Ein- und Mehrfachionisation der Atome
- Erzeugung höherer harmonischer Frequenzen

Ionisationsregimes

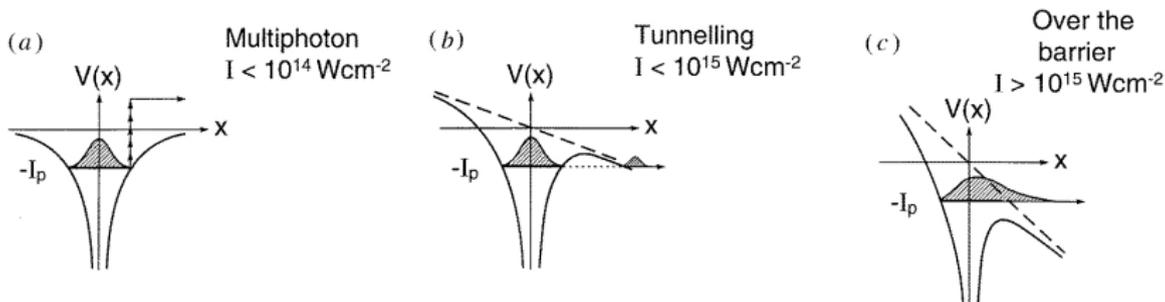


Abbildung: Die drei verschiedenen Regimes der Elektronenionisation durch verschieden hohe Lichtintensitäten (aus [1])

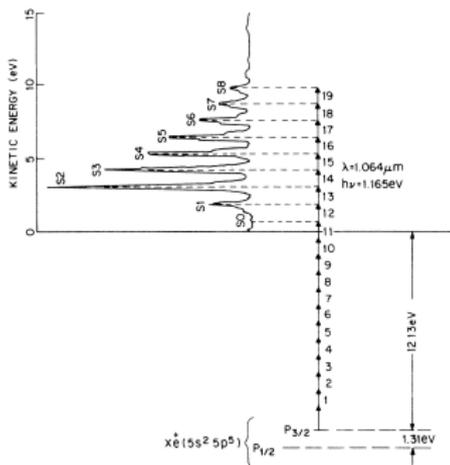


Abbildung: ATI-Spektrum für Xenon aufgenommen mit 100ps 1064nm Pulsen (aus [3])

- Absorption von Photonen nach Ionisation
- → Peaks der Elektronenenergie $h\nu$ bei ganzzahligen Vielfachen der Photonenenergie
- steigende Intensität führt zu Peaks höherer Ordnung



High-Harmonic Generation

- Erzeugung von Vielfachen der eingestrahnten Laserfrequenz durch Probe

„simple-man's-theory“

- 1 Elektron tunnelt aus dem Kern
- 2 Oszillation im Laserfeld → Aufnahme kinetischer Energie
- 3 bei Rückkehr zum Kern und Rekombination unter Abstrahlung eines Photons

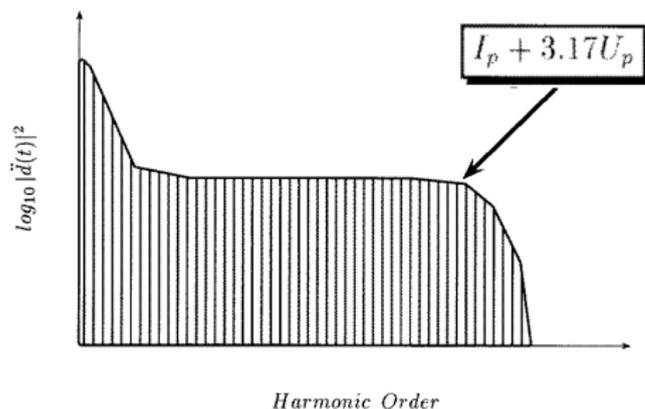


Abbildung: schematische Darstellung eines ATI-Spektrums (aus [1])

- Elektron gibt bei Rekombination mit Kern seine Gesamtenergie (Bindungsenergie + kinetische Energie) ab

$$U_P = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} \quad (1)$$

Theoretische Ansätze

- 2 theoretische Ansätze
- Keldysh-Näherung: Regime der Mehrphotonenionisation
- Strong-Field Näherung: Regime in dem Coulompotential durch Laserfeld stark deformiert wird
- grobe Abschätzung durch Keldysh Parameter

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \propto \sqrt{\frac{I_P}{I}} \quad (2)$$

- $\gamma \gg 1$ Mehrphotonenionisation; $\gamma \ll 1$ Tunnel- / „over-the-barrier“-Ionisation

Keldysh-Näherung

- Keldysh-Näherung gibt intuitives Verständnis für den Vorgang der Multiphotonen-Ionisation, quantitativ ist das Modell nur sehr grob gültig
- Ansatz: Schrödinger-Gleichung mit minimaler Kopplung

$$i\hbar\dot{\psi} = \left(\frac{\hat{p}^2}{2m} + \hat{V}(r) + \hat{H}' \right) \psi \quad (3)$$

- mit

$$\hat{H}' = -\frac{e}{mc}A(t)\hat{p} + \frac{e^2A^2(t)}{2mc^2} \quad (4)$$

- mit dem Coulomb-Potential $V(r)$



- Ansatz für die Wellenfunktion: Entwicklung in diskrete Atomzustände $|n\rangle$ und Kontinuumszustände $|k\rangle$

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t)|n\rangle + \int d^3k a_k(t)|k\rangle \quad (5)$$

- Amplituden $a_n(t)$ und $a_k(t)$ erfüllen also die Gleichungen

$$i\hbar\dot{a}_n(t) = E_n a_n(t) + \sum_m \langle n|\hat{H}'(t)|m\rangle a_m(t) + \int d^3k \langle n|\hat{H}'(t)|k\rangle a_k(t) \quad (6)$$

$$i\hbar\dot{a}_k(t) = E_k a_k(t) + \sum_m \langle k|\hat{H}'(t)|m\rangle a_m(t) + \int d^3k' \langle k|\hat{H}'(t)|k'\rangle a_{k'}(t) \quad (7)$$

- essentielle Annahme: $V(r)$ ist kurzreichweitig genug um Kontinuumszustände $|k\rangle$ durch Eigenzustände $|p\rangle$ des kinetischen Terms zu approximieren
- dadurch Vereinfachen der Kontinuum-Kontinuum Übergänge und der Übergänge zwischen gebundenen und Kontinuumszuständen
- damit vereinfacht sich Gl. (7) zu

$$i\hbar\dot{a}_p(t) \approx \left(\frac{p^2}{2m} + \hat{H}'(t) \right) a_p(t) + \sum_m \hat{H}'(t) \Phi_m a_m(t) \quad (8)$$

- Lösung per Integration

- Ansatz für Anfangszustand $a_m(t)$ und eingestrahktes Feld $A(t)$:

$$a_m(t) \approx \exp(iE_m\tau\hbar) \exp\left(-\frac{\gamma_m\tau}{2}\right) \exp(-i\delta\omega_m\tau) \quad (9)$$

$$A(t) = A_0 (\vec{e}_x \cos \omega t + \vec{e}_y \sin \omega t) \quad (10)$$

- E_m : Bindungsenergie des Zustandes, γ_m : Ionisationsrate und $\delta\omega_m$: Stark-Shift
- eingestrahktes Feld: zirkular polarisierte Welle

■ Photoelektronenspektrum:

$$|a_p|^2 \approx \left[\left(\frac{p^2}{2m} + E_m + \hbar\delta\omega_m \right)^2 + \frac{(\hbar\gamma_m)^2}{4} \right] |\Phi_m(p)|^2$$

$$\times \sum_{-\infty}^{+\infty} J_n^2(\Gamma) \left[\left(\frac{p^2}{2m} + E_m + \hbar\delta\omega_m - n\hbar\omega \right)^2 + \frac{(\hbar\gamma_m)^2}{4} \right]^{-1} \quad (11)$$

■ mit

$$\Gamma = \frac{eA_0 P_{\perp}}{m c \hbar \omega} \quad (12)$$

$$P_{\perp}^2 = p_x^2 + p_y^2 \quad (13)$$

- Intensität der höheren harmonischen Frequenzen hängt von $|d(t)|^2$ ab, wobei

$$d(t) = \langle \psi | \hat{d} | \psi \rangle \quad (14)$$

- zu beachten: für $A(t)$ muss linear polarisiertes Feld angesetzt werden! (zirkular polarisiertes Licht erzeugt keine höheren Harmonischen)



Strong-Field-Näherung

- Annahmen:
 - 1 bei Einstrahlung des Laserfeldes wird das Elektron direkt aus Grundzustand heraus ionisiert
 - 2 nach der Ionisation ist Auswirkung des Coulombpotentials vernachlässigbar



- Beginn mit der Schrödingergleichung und dem Ansatz für die Wellenfunktion ψ :

$$i\hbar\partial_t|\psi(r, t)\rangle = \left(-\frac{\hat{p}^2}{2m} + V(r) - exE(t)\cos\omega t\right)|\psi(r, t)\rangle \quad (15)$$

$$|\psi(r, t)\rangle = \exp\left(\frac{ilPt}{\hbar}\right) \left(a(t)|0\rangle + \int d^3q b(q, t)|q\rangle\right) \quad (16)$$

- für das Laserfeld diesmal lineare Polarisation angenommen



- Behandlung der Schrödingergleichung (Gl. (15)) nun störungstheoretisch
- dazu: Aufspaltung der Dipolwechselwirkung:

$$\langle \psi | ex | \psi \rangle \rightarrow \langle q | ex | 0 \rangle + \text{h. c.} + ie\hbar \nabla_{q_x} \delta(q - q') + g_x(q, q') \quad (17)$$

- erster Term (+ hermitesch konjugierter): Übergang aus dem gebundenen Zustand ins Kontinuum
- zweiter Term: Bewegung des Elektrons im Laserfeld
- letzter Term: Streuung am Kern



- Streuung mit dem Kern wird nun als Störung behandelt
- Motivation: nach Ionisation durch das Laserfeld ist die Wahrscheinlichkeit der Streuung mit dem Kern gering
- in nullter Ordnung Störungstheorie erhält man für die Amplituden der Kontinuumszustände $b(q, t)$:

$$b_0(q, t) = i \int_0^t dt' E(t') \cos(\omega t') d_x(p - eA(t')/c) \times \exp(-iS(p, t, t')/\hbar) \quad (18)$$

- $A(t)$: Vektorpotential und:

$$p = q + eA(t)/c \quad (19) \quad S(p, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left(\frac{(p - eA(t''))^2}{2m} + I_P \right) \quad (20)$$

- nun Benutzung von b_0 aus Gl. 18 zur Berechnung der Amplituden in erster Ordnung Störungstheorie:

$$\begin{aligned}
 b_1(q, t) = & - \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' \int d^3 p' E(t') \cos(\omega t') \\
 & \times g_x(p - eA(t')/c, p' - eA(t')/c) e^{-iS(p, t, t')/\hbar} \\
 & \times E(t'') \cos(\omega t'') d_x(p' - eA(t'')/c) e^{-iS(p', t', t'')/\hbar}
 \end{aligned} \tag{21}$$

experimentelle Ergebnisse

- in Experimenten wird Strom aus Atomen mit geringem Druck mit fokussierten Laserpulsen bestrahlt

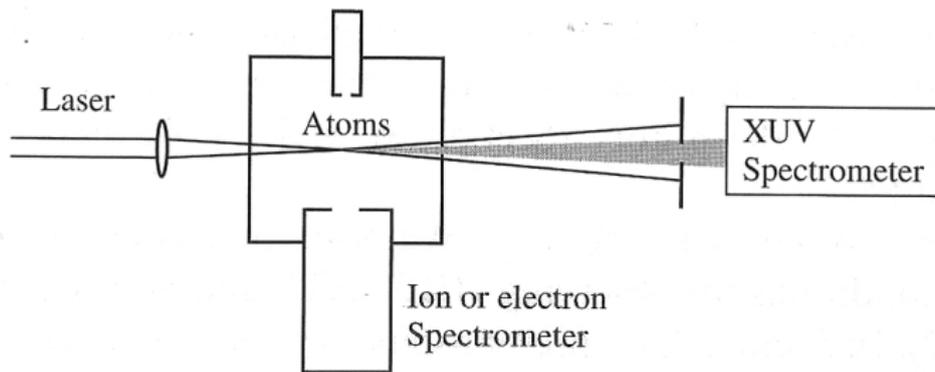


Abbildung: typischer experimenteller Aufbau (aus [2])

ATI

- Unterdrückung der Peaks niedriger Ordnung resultiert aus Kopplung der atomaren Zustände an das Laserfeld (Stark-Shift)

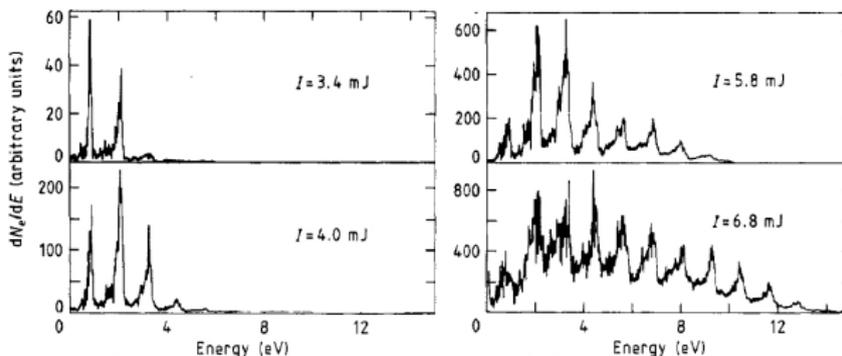


Abbildung: ATI Spektren von Xenon für steigende Pulsenergien (aus [4])

HHG

- für Helium konnten höhere Harmonische erzeugt werden, deren Wellenlängen unter 3nm liegen

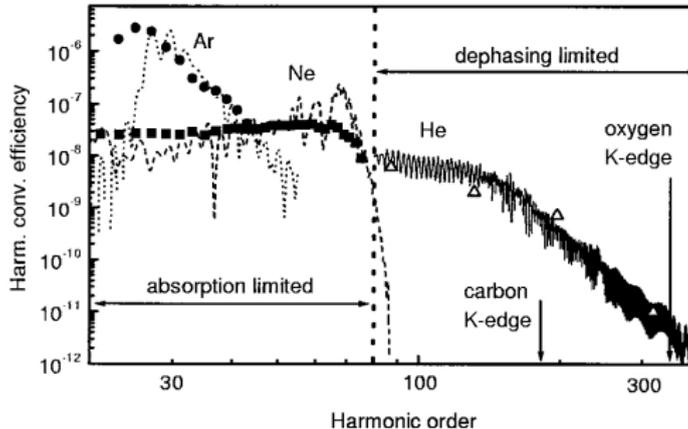
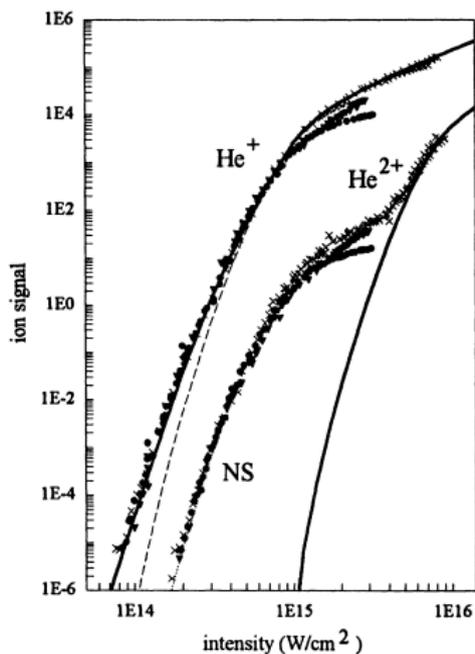


Abbildung: HHG-Spektren für Argon , Neon und Helium (aus [5])

nichtsequenzielle Ionisation



- Detektionsraten ein- und zweifachionisierten Heliums als Funktion der Laserintensität (aus [6])



- bei steigender Intensität der Laserpulses zeigen zweifach ionisierte Atome den gleichen Anstieg wie einfach ionisierte Atome
- → nichtsequenzieller Ionisationsprozess
- „simple-man’s-theory“ liefert auch hier mögliche Erklärung:
- nach Ionisation des ersten Elektrons schlägt das Elektron bei der Streuung am Kern ein zweites Elektron heraus



-  M. Protopapas, C. H. Keitel and P. L. Knight; *Reports on Progress in Physics* 60; 389; (1997)
-  M. Lewenstein, A. L'Huillier; *Principles of Single Atom Physics: High-Order Harmonic Generation, Above-Threshold Ionization and Non-Sequential Ionization in Strong Field Laser Physics*; Springer; 2008
-  R.R. Freeman, T.J. McIlrath, P.H. Bucksbaum, M. Bashkansky; *Physical Review Letters* 57; 3156;; (1986)
-  F.Yergeau, G. Petite, P Agostini; *Journal of Physics B - Atomic, Molecular and Optical Physics* 19; L663; (1986)
-  T. Brabec, F Krausz; *Review of Modern Physics* 72; 545; (2000)
-  B. Walker, B. Sheeshy, L.F. DiMauro, P. Agostini, K.J. Schafer, K.C. Kulander; *Physical Review Letters* 73; 1227; (1994)