

Zeitaufgelöste Abbildung der Kern- und Elektronenbewegung auf der Femto- und Attosekundenskala

Simon Birkholz

26. Mai 2010

Inhalt

- 1 Einführung und Motivation
- 2 'High-Harmonic Generation' (HHG)
 - Semi-klassische Beschreibung
 - Quantenmechanische Erweiterung
- 3 Exkurs: Attosekundenimpulse
- 4 Zeitaufgelöste Abbildung der Kernbewegung
 - HHG-Spektrum
 - Experimentelle Realisierung

Zeit- und Längenskalen

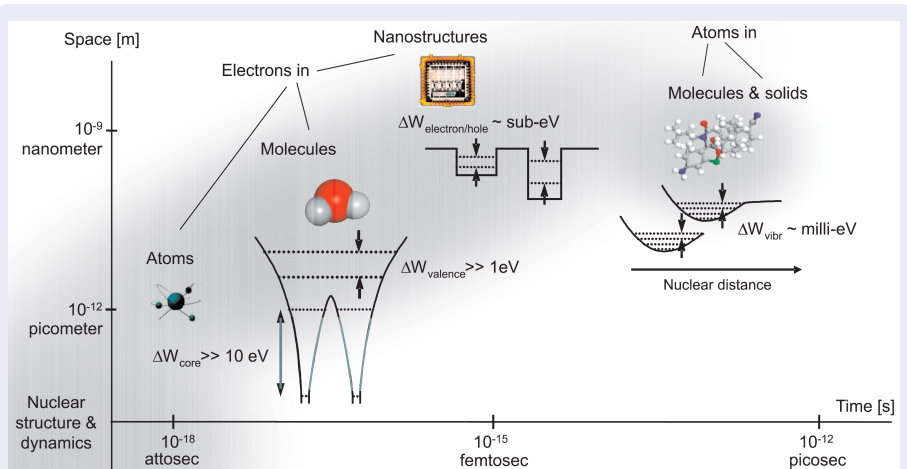


Abbildung: 'Attosecond physics', F. Krausz, M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. Vol. 81, 2009

Motivation

Langfristige Ziele

- Effiziente Verfahren zur Anregung von Atomen in hochangeregte Zustände
→ Röntgen-Verstärkung/ Röntgenlaser
- gezielte Veränderung der Funktion großer (Bio-)Moleküle
- Verständnis des Ladungsträgertransportes in Molekülen
→ Effizientere Solarzellen
- Finden/Erreichen der Grenzen elektronischer Datenübertragung und Datenspeicherung
- Elektronentransport in dichte Materie
→ Kernfusion

Abbildungen: v.o.n.u.: www.worldofmolecules.com, www.advanced-rc.com,
www.evidencetechnology.net, aaiiuc3m.files.wordpress.com



'High-Harmonic Generation'

- Wichtiges Prinzip für zeitaufgelöste Dynamik in as-Bereich: 'High-Harmonic Generation' (HHG)
- Semi-klassisches 3-Phasen-Modell
- Ausgangspunkt: einzelnes Atom mit einem Valenzelektron in Wechselwirkung mit E-feld

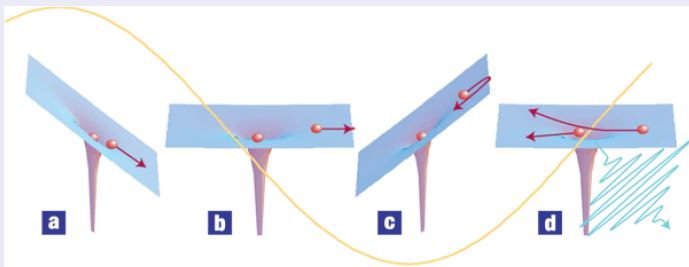


Abbildung: 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007

'High-Harmonic Generation'

Phase 1 - Ionisation

- E-Feld: (N)IR-fs-Laserimpuls
- Ionisation - innerhalb von ca. 300 as um Impulsmaximum

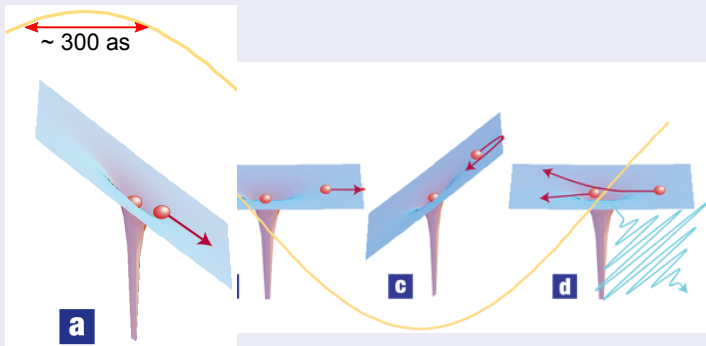


Abbildung: 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007

'High-Harmonic Generation'

Phase 2 - Bewegung in Kontinuum

- Kinetische Energie nach Ionisation: 50 – 1000eV
- Näherung: Elektron und Kern unabhängig voneinander

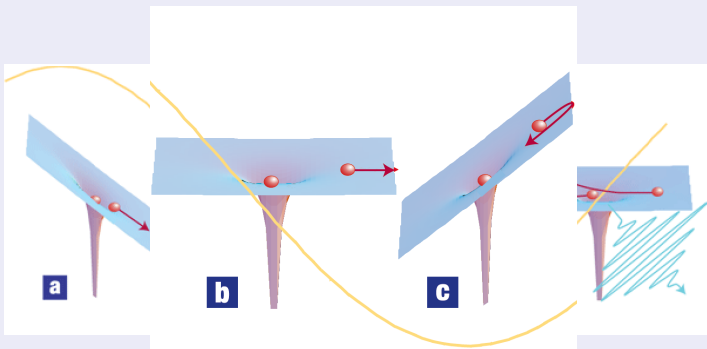


Abbildung: 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007

'High-Harmonic Generation'

Phase 3 - Rekombination

- Rückt zum Kern in folgender Halbperiode des Laser-Feldes
- Rekombination unter Abstrahlung von höheren Harm. des E-Feldes

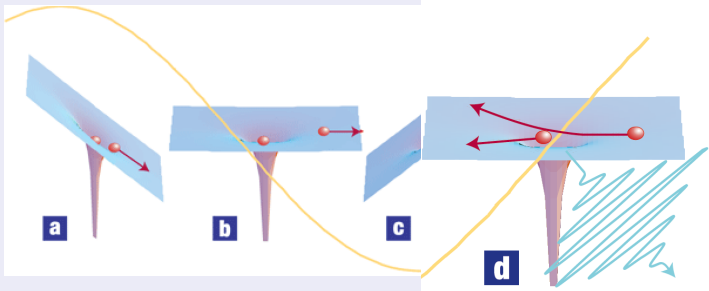


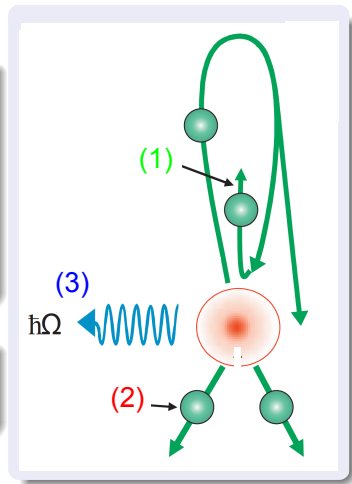
Abbildung: 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007

'High-Harmonic Generation'

Alternative Vorgänge bei Rückkehr des Elektrons

- Elastische Streuung (1)
- Inelastische Streuung: Ionisierung, Anregung (2)
- Rekombination unter Photonemission: High-Harmonic Generation (3)

Abbildung: 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007



'High-Harmonic Generation'

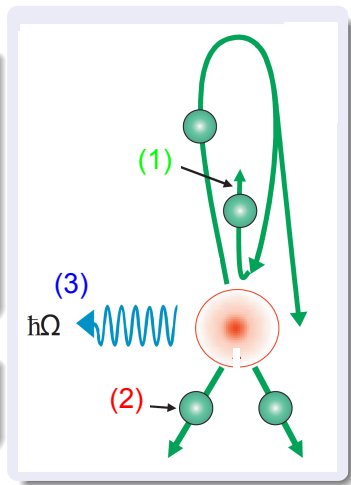
Alternative Vorgänge bei Rückkehr des Elektrons

- Elastische Streuung (1)
- Inelastische Streuung: Ionisierung, Anregung (2)

(1) und (2) liefern ebenfalls Strukturinformation!

- Rekombination unter Photonemission: High-Harmonic Generation (3)

Abbildung: 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007



High-Harmonic Generation

Quantenmechanische Erweiterung

Bei Rückkehr des Elektrons zum Kern:

- (kohärente) Überlagerung von Grundzustandsfkt. Ψ_g und Elektron Ψ_c
- assymetrische Elektronendichteverteilung
→ Dipolmoment
- Abstrahlung höherer Harmonischer durch oszillierendes Dipolmoment

Abbildung: 'Tomographic imaging of molecular orbitals', P. B. Corkum et al., Nature, Vol. 432, 2004

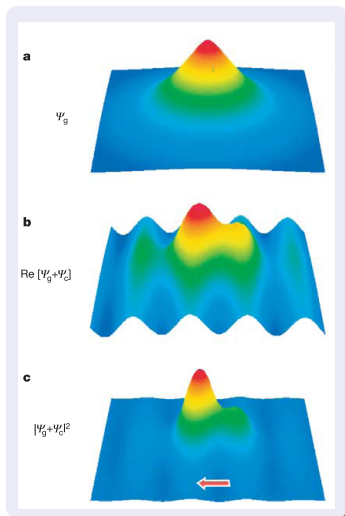
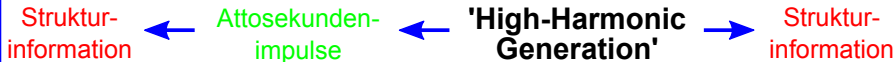


Abbildung von Kern- und Elektronenbewegung durch HHG



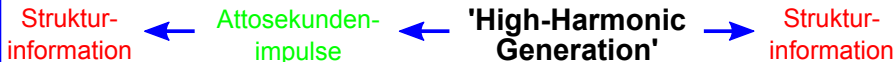
Informationengewinnung mit Hilfe von Attosekundenimpulsen

- Erzeugung von Attosekundenimpulsen
- Methode: Pump-Probe Spektroskopie

Informationengewinnung durch Analyse des HHG-Spektrums

- Zusammenhang: Spektrum höherer Harmonischer \longleftrightarrow Zeitinformation
- Experimentelle Realisierung: Abbildung von Kernbewegungen

Abbildung von Kern- und Elektronenbewegung durch HHG



Informationengewinnung mit Hilfe von Attosekundenimpulsen

- Erzeugung von Attosekundenimpulsen
- Methode: Pump-Probe Spektroskopie

Exkurs

Informationengewinnung durch Analyse des HHG-Spektrums

- Zusammenhang: Spektrum höherer Harmonischer ↔ Zeitinformation
- Experimentelle Realisierung: Abbildung von Kernbewegungen

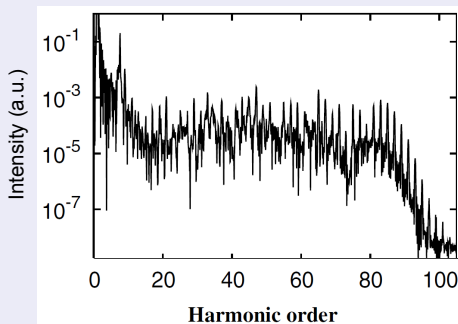
Erzeugung von Attosekundenimpulsen

Für kurze Impulse:

- Breites Spektrum
 $\Delta t \Delta \omega \geq \text{const.}$
- Feste Phasenbeziehung
zwischen spektralen
Komponenten

Abbildung aus 'Molecular imaging
using recolliding electrons', M. Lein, J.
Phys. B, Vol. 40, 2007

Höhere Harmonischen Spektrum von H_2^+



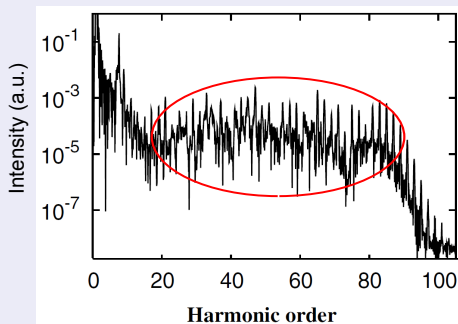
Erzeugung von Attosekundenimpulsen

Für kurze Impulse:

- Breites Spektrum
 $\Delta t \Delta \omega \geq \text{const.}$
- Feste Phasenbeziehung
zwischen spektralen
Komponenten

Abbildung aus 'Molecular imaging
using recolliding electrons', M. Lein, J.
Phys. B, Vol. 40, 2007

Höhere Harmonischen Spektrum von H_2^+



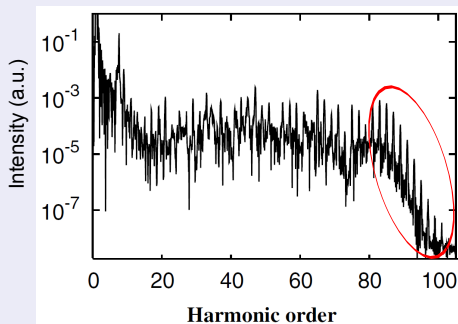
Erzeugung von Attosekundenimpulsen

Für kurze Impulse:

- Breites Spektrum
 $\Delta t \Delta \omega \geq \text{const.}$
- Feste Phasenbeziehung
zwischen spektralen
Komponenten

Abbildung aus 'Molecular imaging
using recolliding electrons', M. Lein, J.
Phys. B, Vol. 40, 2007

Höhere Harmonischen Spektrum von H_2^+



Pump-Probe Spektroskopie

Abbildung von Dynamik seit 19. Jh.:

- Abbildung schneller Ereignisse durch noch schnellere (Licht-)Signale
→ benötige immer kürzere (Licht-/Laser-)Impulse
- Erweiterung: Abbildung der Dynamik durch Anregung-Abfrage Technik

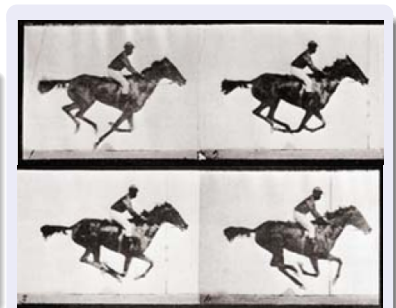


Abbildung: beantime.files.wordpress.com

Pump-Probe Spektroskopie

Grundprinzip der Pump-Probe Spektroskopie:

- Anregung des Systems durch Pump-Impuls
- Abbildung des Systemzustandes durch Probe-Impuls
- Dynamik: zeitlicher Versatz τ zwischen Pump- und Probe-Impulse

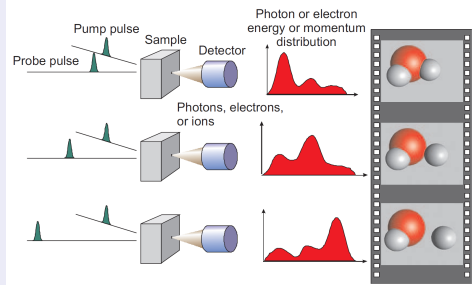


Abbildung aus 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007

Problematik

Geringe Effizienz der Attosekundenimpulserzeugung
→ Einsatz im as-Bereich aufwändig

Pump-Probe Spektroskopie

Grundprinzip der Pump-Probe Spektroskopie:

- Anregung des Systems durch Pump-Impuls
- Abbildung des Systemzustandes durch Probe-Impuls
- Dynamik: zeitlicher Versatz τ zwischen Pump- und Probe-Impulse

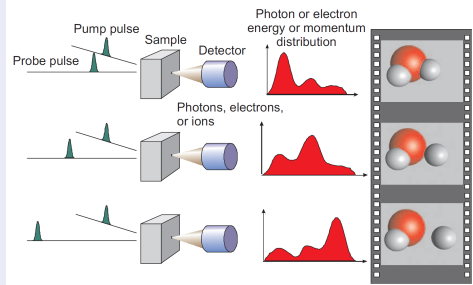


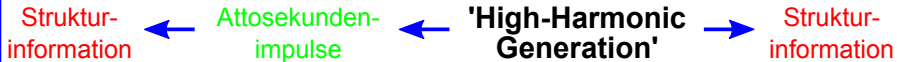
Abbildung aus 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007

Problematik

Geringe Effizienz der Attosekundenimpulserzeugung
→ Einsatz im as-Bereich aufwändig

Ende des Exkurses

Abbildung von Kernbewegungen



Experiment

Abbildung von Kernbewegung durch Analyse des Spektrums höherer Harmonischer

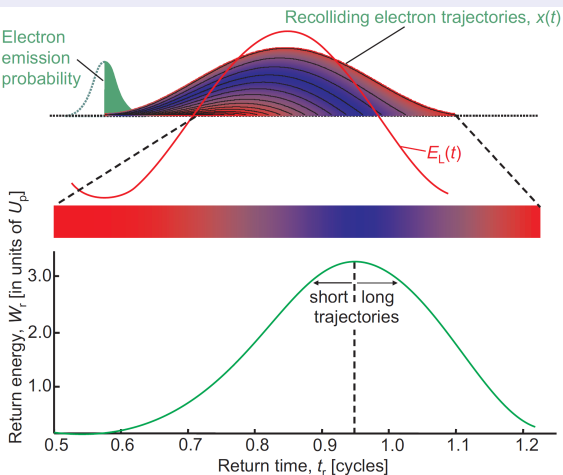
Publikation

'Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale', S. Baker et al., Science, Vol. 312, April 2006:
Vergleich der Dynamik von Wasserstoff- und Deuterium-Molekülen

Trajektorie der Elektronen \longleftrightarrow Harmonischen-Spektrum

- Atom/Molekül nahe E-Feldmaximum ionisiert
- Trajektorie abhängig vom Zeitpunkt der Ionisation
- Energie der Elektronen abhängig von Trajektorie

Abbildung: 'Attosecond physics', F. Krausz, M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. Vol. 81, 2009



Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

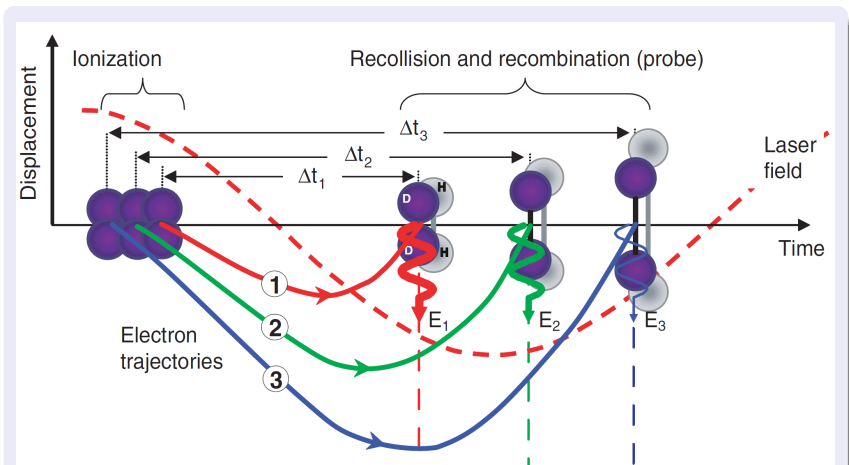
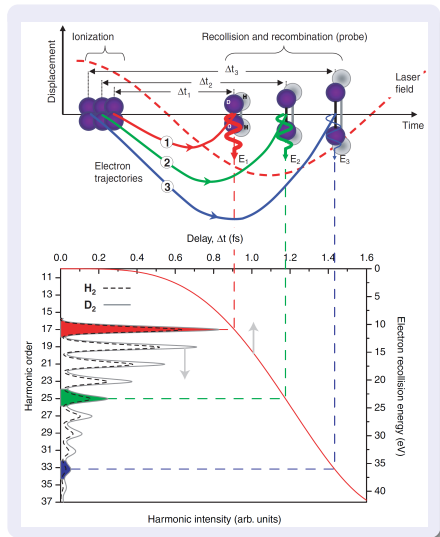


Abbildung: 'Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale',
S. Baker et al., Science, Vol. 312, April 2006

Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

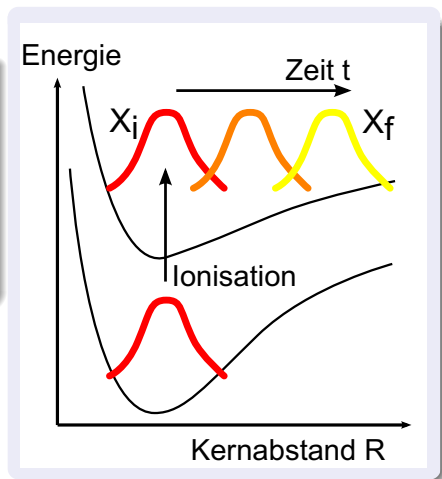
- Intensität der Harmonischen abhängig vom Abstand der Kerne
- Relative Intensitäten
→ Relative Kernabstände

Abbildung: 'Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale', S. Baker et al., Science, Vol. 312, April 2006



Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

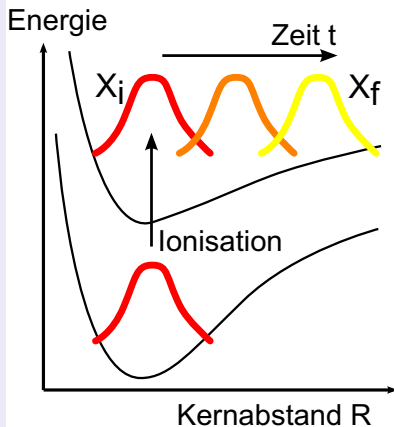
- Potentialkurven der Kernwellenfunktion in Born-Oppenheimer-Näherung
- unten: Kernwellenfunktion im Grundzustand
- oben: Kernwellenfunktion nach Ionisation mit zeitlicher Entwicklung



Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

- Potentialkurven der Kernwellenfunktion in Born-Oppenheimer-Näherung
- unten: Kernwellenfunktion im Grundzustand
- oben: Kernwellenfunktion nach Ionisation mit zeitlicher Entwicklung

Zeigen: Intensität der höheren Harmonischen proportional zu Autokorrelation der Kernwellenfunktion



Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

Φ : Elektronwellenfunktion

X : Kernwellenfunktion

Amplitude der höheren Harmonischen

Betrachte Atom:

$$A_{HHG}^{Atom} = A_{ion} \cdot A_{prop} \cdot A_{rek}$$

Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

Φ : Elektronwellenfunktion

X : Kernwellenfunktion

Amplitude der höheren Harmonischen

Betrachte Atom:

$$\begin{aligned} A_{HHG}^{Atom} &= A_{ion} \cdot A_{prop} \cdot A_{rek} \\ &= \langle \Phi_0 | \hat{A}_{ion} | \Phi_n \rangle \langle \Phi_n | \hat{A}_{prop} | \Phi_m \rangle \langle \Phi_m | \hat{A}_{rek} | \Phi_f \rangle \end{aligned}$$

Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

Φ : Elektronwellenfunktion

X : Kernwellenfunktion

Amplitude der höheren Harmonischen

Betrachte Atom:

$$\begin{aligned}
 A_{HHG}^{Atom} &= A_{ion} \cdot A_{prop} \cdot A_{rek} \\
 &= \langle \Phi_0 | \hat{A}_{ion} | \Phi_n \rangle \langle \Phi_n | \hat{A}_{prop} | \Phi_m \rangle \langle \Phi_m | \hat{A}_{rek} | \Phi_f \rangle
 \end{aligned}$$

Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

Φ : Elektronwellenfunktion

X : Kernwellenfunktion

Amplitude der höheren Harmonischen

Betrachte Atom:

$$\begin{aligned} A_{HHG}^{Atom} &= A_{ion} \cdot A_{prop} \cdot A_{rek} \\ &= \langle \Phi_0 | \hat{A}_{ion} | \Phi_n \rangle \langle \Phi_n | \hat{A}_{prop} | \Phi_m \rangle \langle \Phi_m | \hat{A}_{rek} | \Phi_f \rangle \end{aligned}$$

Betrachte Molekül:

$$A_{HHG}^{Molekül} = \langle X_i(t=0), \Phi_0 | \hat{A}_{ion} | \Phi_n \rangle \langle \Phi_n | \hat{A}_{prop} | \Phi_m \rangle \langle \Phi_m | \hat{A}_{rek} | \Phi_f, X_f(t') \rangle$$

Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

Φ : Elektronwellenfunktion

X : Kernwellenfunktion

Amplitude der höheren Harmonischen

Betrachte Atom:

$$\begin{aligned} A_{HHG}^{Atom} &= A_{ion} \cdot A_{prop} \cdot A_{rek} \\ &= \langle \Phi_0 | \hat{A}_{ion} | \Phi_n \rangle \langle \Phi_n | \hat{A}_{prop} | \Phi_m \rangle \langle \Phi_m | \hat{A}_{rek} | \Phi_f \rangle \end{aligned}$$

Betrachte Molekül:

$$\begin{aligned} A_{HHG}^{Molekül} &= \langle X_i(t=0), \Phi_0 | \hat{A}_{ion} | \Phi_n \rangle \langle \Phi_n | \hat{A}_{prop} | \Phi_m \rangle \langle \Phi_m | \hat{A}_{rek} | \Phi_f, X_f(t') \rangle \\ &= \langle X_i(t=0) | X_f(t') \rangle \cdot A_{HHG}^{Atom} \end{aligned}$$

Harmonischen-Spektrum \longleftrightarrow Kernbewegung

Amplitude der HHG skaliert durch Autokorrelation der Kernwellenfunktionen X_i und X_f :

$$A_{HHG}^{Molekül} = \langle X_i(t=0) | X_f(t') \rangle \cdot A_{HHG}^{Atom}$$

$$= \int X_i(R, 0) X_f(R, t') dR \cdot A_{HHG}^{Atom}$$

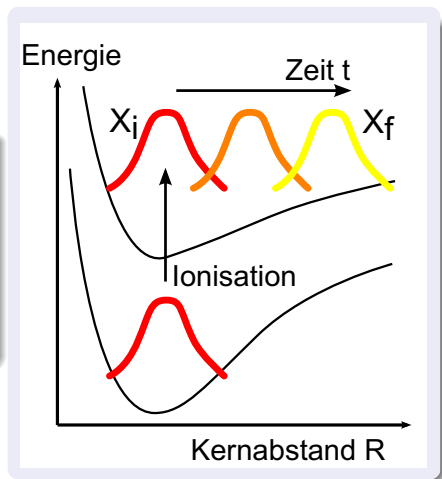


Abbildung von Kernbewegungen

Versuchsaufbau

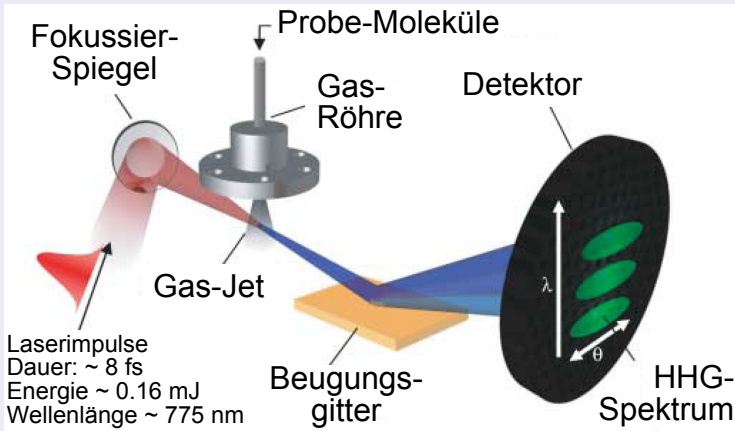
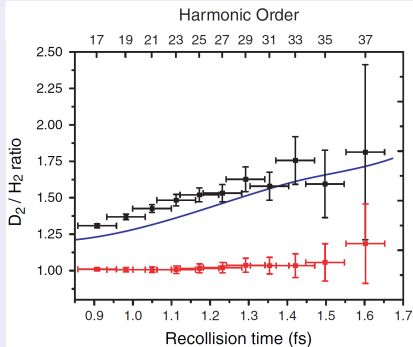


Abbildung: 'Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale', S. Baker et al., Science, Vol. 312, April 2006

Experimentelle Resultate

- Gute Übereinstimmung mit Erwartungen hinsichtlich der Kernmassen
 - Experiment ebenfalls gelungen für CH_4/CD_4
-
- schwarz: Verhältnis Harmonischen Intensität $\frac{D_2}{H_2}$
 - rot: Kontroll-Verhältnis einzelner H_2 -Messungen
 - blau: Berechnung nach Born-Oppenheimer-Näherung



'Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale',
S. Baker et al., Science, Vol. 312, April 2006

Zusammenfassung, Ausblick

- Wichtiges Prinzip der zeitaufgelösten Abbildung im fs- und as-Bereich: High-Harmonic Generation
- Untersuchungsmethode: Pump-Pulse Spektroskopie - Weiterentwicklung durch as-Impulse
- Untersuchungsmethode: Analyse Spektrum höherer Harmonischer
- Relative Kernbewegung abgebildet für H_2 und D_2 bzw. CH_4 und CD_4

Zusammenfassung, Ausblick

- Wichtiges Prinzip der zeitaufgelösten Abbildung im fs- und as-Bereich: High-Harmonic Generation
 - Untersuchungsmethode: Pump-Pulse Spektroskopie - Weiterentwicklung durch as-Impulse
 - Untersuchungsmethode: Analyse Spektrum höherer Harmonischer
 - Relative Kernbewegung abgebildet für H_2 und D_2 bzw. CH_4 und CD_4
-
- Keine genaue Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment
 - Überlegung: Vergrößerung des Zeitfensters der Beobachtung

Quellen

- 'Attosecond physics', F. Krausz, M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. Vol. 81, 2009
- 'Attosecond science', Corkum, Krausz, Nature, Vol. 3, 06/2007
- 'Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction', M. Meckel et al.: Science, Vol. 320, 2007
- 'Molecular imaging using recolliding electrons', M. Lein, J. Phys. B, Vol. 40, 2007
- 'Tomographic imaging of molecular orbitals', P. B. Corkum et al., Nature, Vol. 432, 2004
- 'Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale', S. Baker et al., Science, Vol. 312, April 2006
- 'Nuclear Dynamics in Polyatomic Molecules and High-Order Harmonic Generation', S. Patchkovskii, Phys. Rev. Lett., Vol. 102, 2009