

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Bachelorarbeit in Physik

vorgelegt von

Steffen Hagstotz

Heidelberg, 2011

**Simulation von Elektronendynamik in
autoionisierenden Heliumniveaus
unter dem Einfluss ultrakurzer Laserpulse**

Die Arbeit wurde ausgeführt am

Max-Planck-Institut für Kernphysik

unter Betreuung von

Dr. Thomas Pfeifer

Zusammenfassung

In der vorgestellten Arbeit wurde ein Modell zur Simulation von Elektronendynamik unter dem Einfluss starker Femtosekundenpulse entwickelt. Als Beispielsystem wurde Helium gewählt. Bei den untersuchten Niveaus handelt es sich um Autoionisationszustände, deren Verhalten durch Interferenzen mit dem Kontinuum beeinflusst wird. Quanteninterferenzeffekte, die nach wenigen Rabi-Zyklen in starken Laserfeldern auftreten, spielen eine wichtige Rolle beim Verständnis der Licht-Materie-Wechselwirkung. Die Bildung von Fano-Resonanzlinien und der Stark-Effekt im elektrischen Feld wurden untersucht und mit Messungen verglichen.

Abstract

In this work, a model for simulating electron dynamics in strong femtosecond-laserfields was developed. Autoionizing states in helium were examined, where interference with the continuum plays a vital role. Quantum interference effects occurring after few Rabi cycles in strong laser fields also play an important role in understanding the light-matter-interaction. Fano-resonances and the Stark-shift in the laser field were observed and compared to measurements.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Fano-Formalismus	3
2.2	Stark-Effekt	5
2.3	Floquet-Bild	7
3	Simulation	10
3.1	Überblick über das simulierte System	10
3.2	Hamiltonoperator und Wechselwirkungsbild	11
3.3	Interaktion mit dem Laserfeld	12
3.4	Kontinuumswechselwirkung	13
3.5	XUV-Absorptionsspektrum	14
3.6	Ionisation im Laserfeld	15
3.7	Algorithmus im Überblick	16
4	Ergebnisse	17
4.1	Simulation ungestörter Fano-Resonanzen	17
4.2	Untersuchungen im monochromatischen IR-Feld	18
4.3	Untersuchungen mit kurzen IR-Pulsen	21
4.3.1	Absorptionsspektren in Abhängigkeit der Laserintensität	21
4.3.2	Absorptionsspektren in Abhängigkeit des Zeitversatzes	23
5	Zusammenfassung und Ausblick	26
	Literaturverzeichnis	28

Kapitel 1

Einleitung

Für die Untersuchung von Elektronendynamik in Atomen, Molekülen und Festkörpern sind spektroskopische Experimente mit Lasern das Mittel der Wahl. Die Licht-Materie Wechselwirkung gibt viel Information über das untersuchte System preis. Eine große Limitierung stellen hier vor allem die verfügbaren Laserquellen dar. Interessante Elektronenkorrelation spielt sich oft auf einer Zeitskala von Femtosekunden ab, dieser Bereich war lange Zeit nicht experimentell zugänglich.

Doch seit einiger Zeit sind Femtosekunden-Lasersysteme verfügbar. Durch die Erzeugung und den Einsatz hoher Harmonischer ist sogar der Attosekundenbereich für Experimente geöffnet worden. Diese neuen Techniken erlauben die Untersuchung von Elektronendynamik auf neuen, ultrakurzen Zeitskalen.

Dadurch werden auch neue Herausforderungen an theoretische Modelle gestellt. Die Interatto-Gruppe am Max-Planck-Institut für Kernphysik hat Experimente zur Untersuchung der Autoionisationsdynamik von Heliumzuständen in Laserfeldern durchgeführt. Ziel der vorgelegten Arbeit ist es, zum Verständnis der beobachteten Prozesse beizutragen.

Die numerische Lösung der zu Grunde liegenden Differentialgleichung, der zeitabhängigen Schrödingergleichung, ist dabei nicht immer hilfreich. Der nötige Rechenaufwand zur Simulation eines Heliumatoms steigt sehr schnell weit über alle praktischen Begrenzungen an, vor allem durch mögliche Superpositionen von Zuständen, deren Anzahl bei Wechselwirkungen untereinander exponentiell anwächst. Man kann so das Verhalten eines Systems zwar richtig berechnen, allerdings ist die Rolle, die verschiedene Prozesse spielen, nicht ohne weiteres ersichtlich. Eine analytische Lösung für Systeme mit drei oder mehr Teilchen unter gegenseitiger Wechselwirkung ist analog zum Dreikörperproblem der klassischen Mechanik im Allgemeinen nicht möglich. Einen Ausweg bieten nur Näherungen in bestimmten Grenzfällen, beispielsweise die Näherung starker Felder bei der Wechselwirkung von Elektronen mit intensiver Laserstrahlung oder die Born-Oppenheimer-Näherung unabhängiger Kern- und Elektronbewegung in der Molekülphysik.

Das hier vorgestellte Modell verzichtet auf diese Näherungsverfahren oder Störungsrechnung. Statt dessen wird die echte Zeitentwicklung des Systems durchgeführt. Natürlich

ist auch diese Rechnung nicht exakt, aus praktischen Gründen muss ein Kompromiss zwischen numerischer Genauigkeit und Rechenzeit gefunden werden. Zwar erfordert die Simulation viele Eingabeparameter für die Rechnungen, allerdings stellt dies auch eine Stärke des Modells dar. So ist es ein Leichtes, einzelne Zustände oder Kopplungen zu verändern und damit den Einfluss von bestimmten Teilsystemen auf die Gesamtdynamik zu verstehen. Die gesamte Simulation ist stark an die durchgeführten Experimente angelehnt, um einen besseren Vergleich mit den Messdaten zu ermöglichen.

In dieser Arbeit wird zunächst auf die theoretischen Grundlagen eingegangen. Die Fano-Theorie zur Beschreibung von Interferenzeffekten zwischen gebundenen und freien Niveaus wird vorgestellt, ebenso der Stark-Effekt im elektrischen Wechselfeld. Außerdem wird der Floquet-Formalismus eingeführt, der eine Betrachtung von Atom-Laser-Wechselwirkungen über bekleidete Zustände (engl. Dressed States) erlaubt.

Thema des dritten Kapitels ist die Funktionsweise der Simulation. Die Aufspaltung des Hamiltonoperators in verschiedene Beiträge und ihre separate Zeitentwicklung ist hier der Schlüssel zur Lösung des Problems. Die Simulation der verschiedenen Wechselwirkungen wird detailliert erklärt.

Zuletzt werden im vierten Kapitel die Ergebnisse vorgestellt. Die Simulation von Effekten von monochromatischen Lichtwellen auf das Modellsystem erlaubt es, das Rechenverfahren für einige gut erforschte Effekte zu testen. Anschließend folgt die Dynamik bei Femtosekundenpulsen, die Gegenstand aktueller Forschung ist. Wo immer es möglich ist, werden Messdaten den simulierten Daten gegenüber gestellt.

In der gesamten Arbeit werden atomare Einheiten verwendet, d.h. $\hbar = e = m_e = 1$. Ausgenommen davon sind vor allem Energien, die in der gebräuchlicheren Einheit eV angegeben werden. Auch Zeitangaben werden zur besseren Lesbarkeit meistens in Atto- oder Femtosekunden gemacht. Für die Umrechnung gilt $1 \text{ a.u.} = 27.21 \text{ eV}$ beziehungsweise $1 \text{ a.u.} = 24.19 \cdot 10^{-18} \text{ s}$.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

2.1 Fano-Formalismus

Die Beschreibung von Mehrelektronensystemen stellt zunächst eine große Herausforderung dar. Im Allgemeinen wird sich ein System aus mehreren Elektronen grundlegend anders verhalten als die Summe einzelner, unabhängiger Elektronen. Wechselwirkung und Korrelation müssen beachtet werden und der Ansatz eines Produktzustands mehrerer Elektronenwellenfunktionen ohne die Interaktion zu berücksichtigen kann nur in künstlichen Spezialfällen Erfolg haben. Das Verständnis realer Atome erfordert andere Verfahren.

Eine Möglichkeit ist der Ansatz einer Superposition verschiedener Elektronenkonfigurationen. Im Spektrum der einzelnen Elektronen tauchen jedoch sowohl gebundene diskrete Niveaus als auch kontinuierliche freie Zustände auf. Eine Überlagerung zwischen diesen kann entstehen, sobald gebundene Zustände energetisch im Kontinuum eingebettet sind. Klassische Beispiele hierfür sind Doppelanregungen in Mehrelektronensystemen wie Helium, die oberhalb der Schwelle für Einfachionisation liegen.

Die Überlagerung von diskreten Zuständen mit einem kontinuierlichen Spektrum freier Zustände ist Ursache von Autoionisation. Dabei wechselwirken gebundene und freie Anteile der Wellenfunktion, was effektiv zu einem Zerfall des Zustands führt.

Ein theoretisches Modell zur Beschreibung dieser Autoionisationszustände wurde 1961 von Ugo Fano vorgestellt [1]. Im Folgenden wird weitgehend die Notation der ursprünglichen Publikation verwendet.

Zur Herleitung betrachtet man ein System aus einem gebundenen Zustand $|\alpha\rangle$ und einem Spektrum kontinuierlicher Zustände $|\beta_E\rangle$, die miteinander wechselwirken. Der Hamiltonoperator des Systems lautet:

$$\langle\alpha|\mathbf{H}|\alpha\rangle = E_r \tag{2.1}$$

$$\langle\beta_E|\mathbf{H}|\alpha\rangle = V_E \tag{2.2}$$

$$\langle\beta_{E'}|\mathbf{H}|\beta_E\rangle = E\delta(E' - E) \tag{2.3}$$

Die Nebendiagonalelemente $V_E = V$ beschreiben die Wechselwirkung, E_r und E sind die Energien der Zustände. Die neuen Eigenzustände des Atoms erhält man durch Diagonalisieren des Hamiltonoperators. Sie sind Überlagerungen aus $|\alpha\rangle$ und $|\beta_E\rangle$ und lauten nach [1]:

$$|\Psi_E\rangle = a_E |\alpha\rangle + \int b_{EE'} |\beta_{E'}\rangle dE' \quad (2.4)$$

Die Entwicklungskoeffizienten a_E und $b_{EE'}$ lassen sich über E , E_r und V_E ausdrücken. Nach Fano führt diese Überlagerung zu asymmetrischen Resonanzlinien. Der Wirkungsquerschnitt für Absorptionen aus dem Grundzustand nimmt folgende Form an:

$$\sigma(\epsilon) = \frac{(q + \epsilon)^2}{1 + \epsilon^2} \quad (2.5)$$

$$\epsilon = \frac{E - E_r}{\Gamma/2} \quad (2.6)$$

$$\Gamma = 2\pi V^2 \quad (2.7)$$

$$q = \frac{\langle \alpha | T | g \rangle}{\pi V \langle \beta_E | T | g \rangle} \quad (2.8)$$

ϵ bezeichnet die Energie in Einheiten der spektralen Breite Γ . Diese ist verursacht durch die begrenzte Lebensdauer der autoionisierenden Zustände und abhängig von der Kontinuumswechselwirkung V . Der q -Parameter gibt das Verhältnis zwischen den Übergangswahrscheinlichkeiten vom Grundzustand $|g\rangle$ in den diskreten und in den kontinuierlichen Anteil an. Dabei ist T der Übergangoperator.

In Dipolnäherung $T \propto d$ kann man somit auch schreiben:

$$q = \frac{d_\alpha}{\pi V d_{\beta_E}} \quad (2.9)$$

mit den Übergangsdipolmomenten aus dem Grundzustand d_α und d_{β_E} . Die Resonanzkurven für verschiedene Werte des Asymmetrie-Parameters q sind in Abbildung 2.1 dargestellt.

Die Fanotheorie ist eine verallgemeinerte Beschreibung von atomaren Anregungen. Für einfach angeregte Zustände ohne Kontinuumswechselwirkung, d.h. $d_{\beta_E} \rightarrow 0$ beziehungsweise $q \rightarrow \pm\infty$, geht die Fanolinie in eine normale Lorentzform über.

Es ist nun möglich, den q -Parameter für Übergänge zwischen beliebigen Niveaus $|a\rangle$ und $|b\rangle$ zu erweitern [2]. Analog zu obiger Definition erhält man:

$$q_{ab} = \frac{\langle b | T | a \rangle}{\pi V \langle \beta_b | T | a \rangle} \quad (2.10)$$

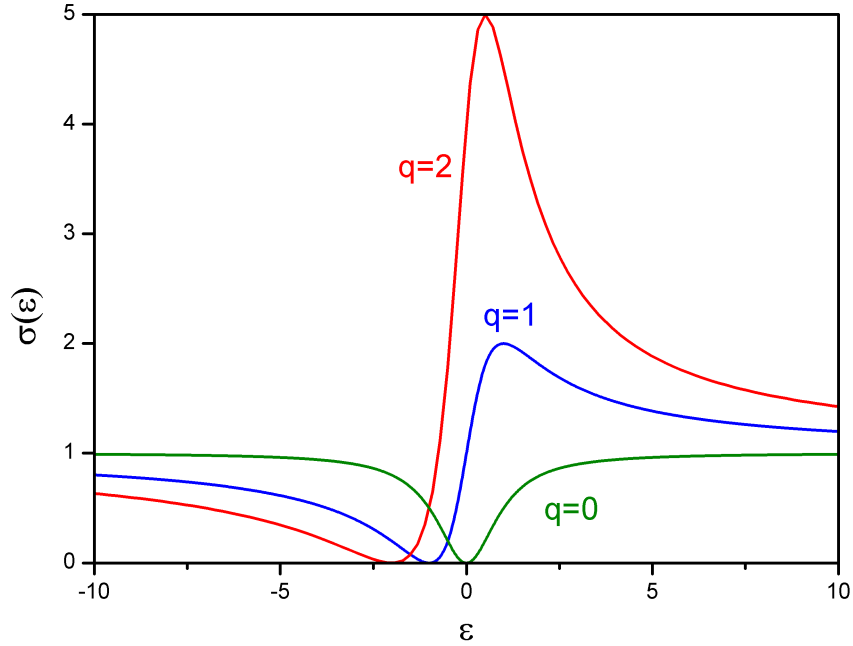


Abbildung 2.1: Asymmetrische Fano-Resonanzlinien für verschiedene Werte des q -Parameters. Der Wirkungsquerschnitt ist in beliebigen Einheiten abhängig von der normierten Energie ϵ aufgetragen. Für große q -Parameter wandert das Absorptionsminimum zu kleineren Energien und das Maximum wird ausgeprägter. Für $q \rightarrow \pm\infty$ geht die Linienform in eine Lorentzkurve über.

2.2 Stark-Effekt

Der Stark-Effekt beschreibt den Einfluss von elektrischen Feldern auf atomare Energieniveaus und ist somit das Analogon zum magnetischen Zeeman-Effekt.

Betrachten wir den Spezialfall eines zwei-Niveau-Systems $|1\rangle$ und $|2\rangle$ mit den dazugehörigen Energieeigenwerten zum feldfreien Hamiltonoperator ϵ_1 und ϵ_2 . Im Fall einer Kopplung zwischen den Zuständen wird der Hamiltonoperator mit Feld im Allgemeinen nicht mehr diagonal sein, sondern feldabhängige Elemente auf der Nebendiagonalen enthalten. In Dipolnäherung spricht man vom linearen Stark-Effekt. Man erhält mit dem Übergangsdipolmoment der Zustände $d_{12} = \langle 1|e \cdot \vec{r}|2\rangle$ und einem zeitabhängigen elektrischen Feld $E(t) = E_0 \cos(\omega_L t)$ für die Wechselwirkung \mathbf{V}_{Int} :

$$\langle 1|\mathbf{V}_{\text{Int}}|2\rangle = \langle 2|\mathbf{V}_{\text{Int}}|1\rangle = d \cdot E(t) \quad (2.11)$$

Die zeitabhängige Schrödingergleichung lautet dann

$$i \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} |1\rangle \\ |2\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_1 & d \cdot E_0 \cos(\omega_L t) \\ d \cdot E_0 \cos(\omega_L t) & \epsilon_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |1\rangle \\ |2\rangle \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

Nun kann man die stationäre Zeitentwicklung in die Definition der Zustände einschließen. Mit der Transformation

$$|n\rangle' = e^{-i\epsilon_n t} |n\rangle \quad (2.13)$$

betrachtet man ausschließlich die Zeitentwicklung durch \mathbf{V}_{Int} . Einsetzen führt zusammen mit $E(t) = E_0 \cos(\omega_L t) = \frac{E_0}{2} (e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t})$ auf

$$i \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} |1\rangle \\ |2\rangle \end{pmatrix} = \frac{d \cdot E_0}{2} \begin{pmatrix} (e^{i(\omega_L - \omega_0)t} + e^{i(\omega_L + \omega_0)t}) \cdot |2\rangle \\ (e^{i(\omega_L - \omega_0)t} + e^{i(\omega_L + \omega_0)t}) \cdot |1\rangle \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

wobei die Resonanzfrequenz $\omega_0 = \epsilon_2 - \epsilon_1$ eingeführt wurde. In der Näherung rotierender Phasen (engl. Rotating Wave Approximation) geht man davon aus, dass der Laser nahe der Resonanzfrequenz einstrahlt. Integriert man Gleichung (2.14), so wird der Beitrag der mit $\omega_L + \omega_0$ schnell rotierenden Faktoren im Mittel verschwinden. Im Gegensatz dazu gilt $e^{i(\omega_L - \omega_0)t} \approx 1$. Effektiv bleibt also nur der Teil der monochromatischen Welle übrig, der gegen die Phasenentwicklung des Systems rotiert.

Innerhalb dieser Näherung löst man die separable Differentialgleichung und erhält

$$\mathbf{V}_{\text{Int}} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega_R}{2} \\ \frac{\Omega_R}{2} & 0 \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

mit der Rabifrequenz $\Omega_R = \frac{E_0 \cdot d}{\hbar} = E_0 \cdot d$ (in atomaren Einheiten). Der Hamiltonoperator des Gesamtsystems lautet dann

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{V}_{\text{RWA}} = \begin{pmatrix} \epsilon_1 & \frac{\Omega_R}{2} \\ \frac{\Omega_R}{2} & \epsilon_2 \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

$|1\rangle$ und $|2\rangle$ sind nun keine Eigenzustände dieses Hamiltonoperators mehr. Die neuen Basiszustände $|\phi_i\rangle$ erhält man durch Diagonalisierung von \mathbf{H} . Ihre Energieeigenwerte im elektrischen Feld lauten:

$$\mathbf{H} |\phi_{1/2}\rangle = \frac{1}{2} \left(\epsilon_1 + \epsilon_2 \pm \sqrt{(\epsilon_1 - \epsilon_2)^2 + \Omega_R^2} \right) |\phi_{1/2}\rangle \quad (2.17)$$

Asymptotisch erhält man eine zusätzliche Aufspaltung, die gerade der Rabifrequenz Ω_R entspricht (siehe Abbildung 2.2).

Analog erhält man in zweiter Ordnung den quadratischen Stark-Effekt. Hier koppelt das Feld an die Polarisierbarkeit α der Zustände. Der nächste Term in der störungstheoretischen Reihenentwicklung lautet dann:

$$V_{\text{Int}}^{(2)} = \alpha \cdot E^2 \quad (2.18)$$

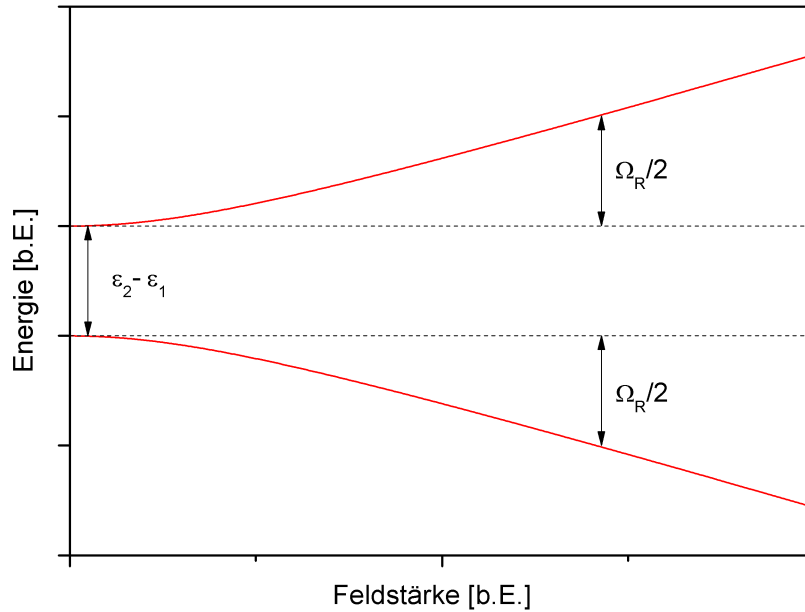


Abbildung 2.2: Stark-Verschiebung im elektrischen Feld für zwei benachbarte Zustände mit der Dipolkopplung $\mathbf{V}_{\text{Int}} = d \cdot E(t)$ in der Rotating Wave Approximation. Die zusätzliche Abstoßung der Linien beträgt $\Omega_R \cdot \hbar$. Beide Achsen sind in beliebigen Einheiten aufgetragen.

Im Allgemeinen ist α ein Tensor und für reale Atome aufwändig zu berechnen, insbesondere bei stark korrelierten Elektronenniveaus. Für die folgenden Analysen wird nur die erste Ordnung berücksichtigt. Für moderate Feldstärken ist dies ausreichend. Später wird sich herausstellen, dass bei kurzen Laserpulsen diese Behandlung versagt. Dann wird es nötig, die spektrale Breite der Pulse in die Behandlung einzubeziehen.

2.3 Floquet-Bild

Der Floquet-Formalismus erlaubt die exakte Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung bei einer Interaktion mit einem Laserfeld. Eine ausführlichere Behandlung kann in [3] gefunden werden. Die grundlegende Idee ist, die zeitliche Periodizität des Hamiltonoperators zu nutzen, um einen Lösungsansatz zu machen. Für die Wechselwirkung gilt

$$\mathbf{H}(t + T) = \mathbf{H}(t) \quad (2.19)$$

wobei $T = 2\pi/\omega$ die Laserperiode bezeichnet. Dies ermöglicht es, die Wellenfunktionen ψ anzusetzen:

$$\psi(\vec{x}, t) = \exp(-iEt/\hbar)F(\vec{x}, t) \quad (2.20)$$

Die Funktion $F(\vec{x}, t)$ muss auch in T periodisch sein und kann deshalb als Fourierreihe entwickelt werden:

$$F(\vec{x}, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{-in\omega t} F_n(\vec{x}, t) \quad (2.21)$$

Die Lösungen der Schrödingergleichung hängen somit von den Parametern E und n ab. Eine volle quantenfeldtheoretische Betrachtung [4] zeigt, dass n gerade dem Erwartungswert des Photonenzahloperators entspricht, also einer Absorption beziehungsweise Emission im Laserfeld. E wird als die Quasi-Energie des Zustands bezeichnet. Es gilt

$$E = E_i + \Delta - i\frac{\Gamma}{2} \quad (2.22)$$

mit der Energie E_i des ungestörten Zustands und der Stark-Verschiebung Δ des Energieniveaus im Feld. Der Parameter Γ drückt eine Abnahme der Zustandsamplitude aus und stellt somit eine Ionisationsrate dar.

In der Literatur spricht man bei den neuen Niveaus auch von bekleideten Zuständen (engl. dressed states). Die Vorgehensweise ist entsprechend als Dressed-State-Picture bekannt.

Anschaulich dargestellt sind die Dressed States in Abbildung 2.3. Koppelt nun ein weiterer Laser $|e, N\rangle$ und $|g, N+1\rangle$ mit einem dritten, ungestörten Zustand, so beobachtet man im Spektrum eine Doppellinie (Autler-Townes-Dublett). Bei Kopplung der aufgespaltenen Niveaus untereinander mit einem schwachen Abfragestrahl sind insgesamt drei energetisch unterscheidbare Übergänge zu sehen (Mollow-Triplett).

Bei resonanter Einstrahlung $\omega = E_e - E_g$ werden beide Zustände energetisch überlagert und stoßen sich durch den Stark-Effekt ab. Genau an der Position der alten Linie findet hingegen keine Absorption mehr statt und das Medium wird vollständig transparent. Dieses Phänomen wird als elektromagnetisch induzierte Transparenz (EIT) bezeichnet. Zur Beobachtung koppelt ein schwacher Abfragelaser die aufgespaltene Linie mit einem dritten Zustand. Die Breite des Transparenzsignals entspricht gerade der Aufspaltung $\Delta = \Omega_R$.

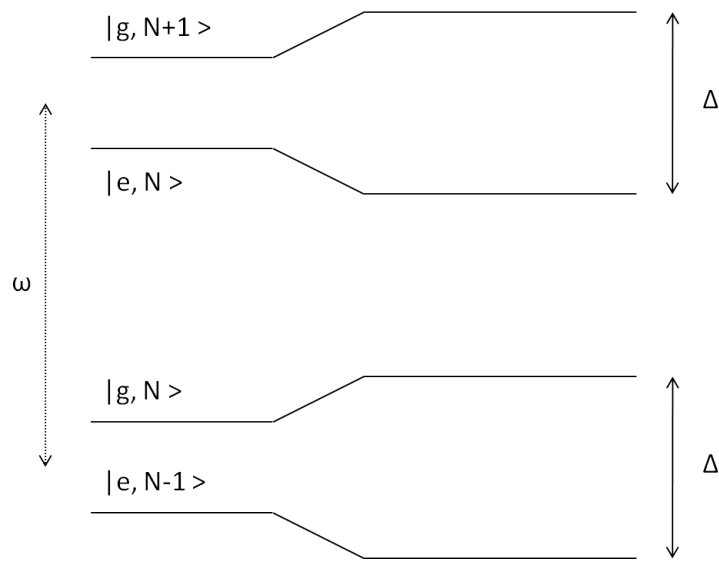


Abbildung 2.3: Lösung der Schrödingergleichung im Laserfeld für ein zwei-Niveau-System $|g\rangle$ und $|e\rangle$ im Floquet-Formalismus unter dem Einfluss eines monochromatischen Laserfeldes mit Frequenz ω . Die neuen Eigenzustände bestehen aus einer Kombination der alten Niveaus und der Photonenzahl N . Der Stark-Effekt sorgt für eine Abstoßung der neuen Zustände. Der Energieabstand im Feld beträgt $\Delta = \epsilon_2 - \epsilon_1 + \Omega_R$.

Kapitel 3

Simulation

3.1 Überblick über das simulierte System

Wie in der Einleitung beschrieben war die Motivation der hier vorgestellten Simulation, experimentelle Ergebnisse in autoionisierenden Heliumzuständen besser zu verstehen. Deshalb wurde versucht, alle relevanten Bestandteile des untersuchten Heliumsystems in die Rechnungen miteinzubeziehen.

Von besonderem Interesse sind hier vor allem doppelt angeregte Zustände der $N = 2$ Serie. Sie sind energetisch entartet mit dem $1s$ -Kontinuum und zerfallen somit in dieses per Autoionisation. Gleichzeitig liegen sie energetisch nahe genug aneinander, um über einen IR-Laser miteinander gekoppelt zu werden. Die Interferenz zwischen Kontinuumsanteil der Wellenfunktion und gebundenen Zuständen sorgt für die Ausbildung von Fanoprofilen (siehe [1]). Das gesamte simulierte System ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Im Folgenden werden die Zustände $|2s2p\rangle$, $|2p^2\rangle$ und $\frac{1}{\sqrt{2}}(|2s3p\rangle + |3s2p\rangle)$ mit $|a\rangle$, $|b\rangle$ und $|c\rangle$ bezeichnet.

In der Simulation wird analog zu den durchgeführten Experimenten das System mit einem intensiven Infrarot-Femtosekundenpuls mit 755 nm beeinflusst und die Zeitentwicklung durch die Messung des Absorptionsspektrums eines XUV-Attosekundenpulses abgefragt. Der XUV-Puls besitzt eine spektrale Breite, die eine Untersuchung aller Zustände zwischen 50 eV und 70 eV gleichzeitig erlaubt. Die gesamte Dynamik des Systems kann also zu einem einzelnen Zeitpunkt abgefragt werden. Das $|b\rangle$ -Niveau besitzt die gleiche Parität wie der $|1s^2\rangle$ Grundzustand, Übergänge sind also nicht möglich. Allerdings kann es über die anderen Zustände durch IR-Kopplung besetzt werden. Alle Zustände sind an das $1s$ -Kontinuum gekoppelt. Dabei autoionisieren $|a\rangle$ und $|c\rangle$ in das gleiche $1s\epsilon p$ -Kontinuum, der dunkle Zustand $|b\rangle$ hingegen in das $1s\epsilon d$ -Kontinuum mit anderem Drehimpuls. Eine Wechselwirkung der Kontinua wurde nicht berücksichtigt.

Fraglich bleibt noch, ob es eine Wechselwirkung zwischen den sichtbaren Zuständen $|a\rangle$ und $|b\rangle$ und dem $1s\epsilon d$ -Kontinuum gibt - oder umgekehrt vom Zustand $|b\rangle$ in die freien $1s\epsilon p$ -Niveaus. Rechnungen von Themelis und Lambropoulos [6] ergeben in diesem Zusammenhang für den verallgemeinerten Übergangsparameter $q_{ab} = 320$. Daraus folgt

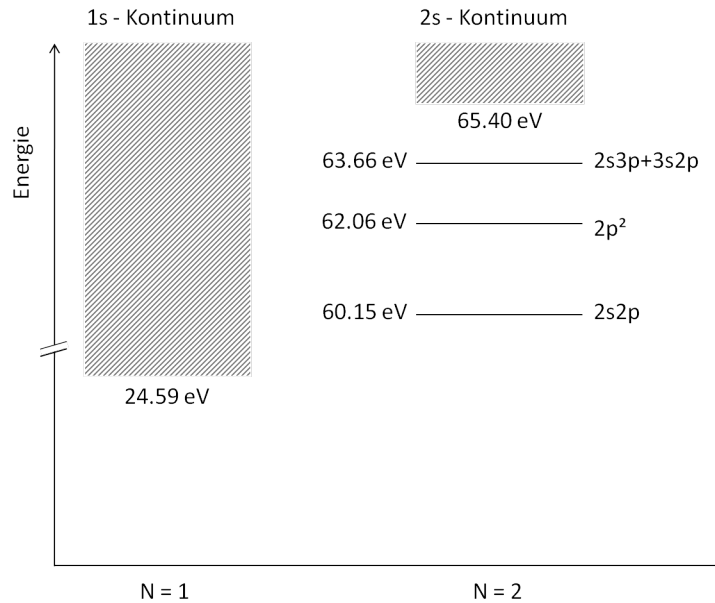


Abbildung 3.1: Übersicht über die simulierten Heliumniveaus und Kontinua. Alle Energien sind vom Grundzustand $|1s^2\rangle$ aus angegeben. Die doppelt angeregten $|2s, nl\rangle$ Zustände sind energetisch entartet mit dem 1s-Kontinuum. Die Energien der Zustände sind Synchrotronmessungen von [5] entnommen. Es hat sich herausgestellt, dass die Linie bei 63.66 eV einer Überlagerung der eng benachbarten $|2s3p\rangle$ und $|3s2p\rangle$ entspricht.

ein sehr kleines Übergangsdipolmoment zwischen dem gebundenen Zustand $|a\rangle$ und dem Kontinuum, mit dem $|b\rangle$ interferiert. Nimmt man ähnliche q_{bc} -Werte an, so kann die Autoionisation als einzige Wechselwirkung der Zustände mit den Kontinua angenommen werden.

3.2 Hamiltonoperator und Wechselwirkungsbild

„Divide et impera“

Niccolo Machiavelli, 1532

Grundlage jeder Simulation atomarer Prozesse ist die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung. Sie lautet in atomaren Einheiten:

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi = \mathbf{H}\psi \quad (3.1)$$

Der Hamiltonoperator des Gesamtsystems unter Einfluss von Kontinuumswechselwirkung und Laserfeld kann sehr komplex werden. Der Schlüssel zur Durchführung der

Zeitentwicklung liegt in der Separierung der einzelnen Komponenten, deren Einfluss auf das System dann getrennt behandelt wird. Man erhält:

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_E + \mathbf{V} \quad (3.2)$$

mit dem ungestörten Hamiltonoperator \mathbf{H}_0 , der Feld-Wechselwirkung \mathbf{H}_E und der Kontinuumswechselwirkung \mathbf{V} . Die Zeitentwicklung des Systems ist gegeben durch den Zeitentwicklungsoperator:

$$\psi(t) = e^{-i\mathbf{H}t} \cdot \psi(t=0) \quad (3.3)$$

Dieses Operatorexponential ist numerisch nicht auszuwerten. Deshalb werden Basiszustände ψ_j gesucht, in denen die einzelnen Beiträge \mathbf{H}_j des Hamiltonoperators diagonal sind. Für diesen Fall wird die Zeitentwicklung auf eine einfache Phasenentwicklung $e^{-i\omega_j t}$ reduziert. Die komplette Zeitentwicklung wird dann durch Basistransformationen und stationäre Zeitentwicklung mit den jeweiligen Eigenwerten ω_j durchgeführt:

$$\psi(t) = \sum_j T^{-1} \cdot e^{-i\omega_j t} T \cdot \psi_j \quad (3.4)$$

Dabei sind T und T^{-1} geeignete Transformationsmatrizen. Die Vorgehensweise wird auch als Split-Step-Operator-Methode bezeichnet. Sie ist nicht exakt, da die Zeitentwicklung der einzelnen Komponenten des Hamiltonoperators getrennt ausgeführt wird und zu jedem Zeitschritt dt der nicht diagonale Teil vernachlässigt wird. Es muss also sicher gestellt werden, dass $dt \ll \tau$ gilt, wobei τ die typische Zeitskala der untersuchten Prozesse bezeichnet. Für den Grenzfall $dt \rightarrow 0$ erhält man wieder den analytisch korrekten Ausdruck.

Die Simulation umfasst insgesamt einen Zeitraum von 32000 a.u. (ca. 790 fs). Die bekannte Lebensdauer der autoionisierenden $|2s2p\rangle$ -Resonanz beträgt hingegen 17 fs [5], andere Zeitskalen sind von vergleichbarer Größenordnung. Ein Simulationszeitschritt entspricht einer atomaren Einheit in der Zeit. Der Split-Step-Ansatz ist somit gerechtfertigt.

Für die Simulation wurde zwischen Basissystemen gewechselt, in denen jeweils \mathbf{H}_0 oder \mathbf{H}_E diagonal sind. Die Zeitentwicklung in der Eigenbasis zu \mathbf{H}_0 lautet einfach $e^{-iE_n t}$ mit den Energieeigenwerten der Zustände E_n (siehe Abbildung 3.1). Die Entwicklung des Systems im Laserfeld wird im nächsten Abschnitt behandelt.

3.3 Interaktion mit dem Laserfeld

Das elektrische Feld des IR-Lasers sorgt für eine Kopplung der Zustände untereinander. In Matrixform lautet der Operator:

$$\mathbf{H}_E = E(t) \cdot d_{ij} = E(t) \cdot \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} \end{pmatrix} = E(t) \cdot \begin{pmatrix} 0 & d_{ab} & 0 \\ d_{ba} & 0 & d_{bc} \\ 0 & d_{cb} & 0 \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

Viele mögliche Dipolelemente entfallen aus Paritätsgründen, da alle Integrale $\langle \psi | \vec{r} | \phi \rangle$ mit Zuständen gleicher Parität ψ und ϕ verschwinden. Des weiteren gilt $d_{ab} = d_{ba}^*$, die

Kopplung ist also nur noch abhängig von zwei freien Parametern. Die Bestimmung dieser Dipolmomente ist alles andere als einfach. Glücklicherweise gibt es viele Modellrechnungen zum $|2s2p\rangle$ -Zustand, für den $d_{ab} = 2.17$ a.u. angenommen wird [7]. Vergleichbare Rechnungen zum $1/\sqrt{2} \cdot (|2s3p\rangle + |3s2p\rangle)$ -Zustand existieren leider nicht. Allerdings lässt sich das Dipolmoment mit der bekannten anderen Kopplung abschätzen: Der Übergang von $|2p^2\rangle \rightarrow |2s3p\rangle$ ist sehr unwahrscheinlich. Da beide Elektronen einen geänderten Endzustand besitzen, handelt es sich um einen Prozess zweiter Ordnung. Im Vergleich zur Anregung erster Ordnung $|2p^2\rangle \rightarrow |3s2p\rangle$, bei dem ein einzelnes $2p$ -Elektron in das $3p$ -Orbital übergeht, kann ersterer vernachlässigt werden. Man erhält:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\sqrt{2}} \langle 2p^2 | \vec{r} (|2s3p\rangle + |3s2p\rangle) &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\langle 2p^2 | \vec{r} |2s3p\rangle + \langle 2p^2 | \vec{r} |3s2p\rangle) \\ &\approx \frac{1}{\sqrt{2}} \langle 2p^2 | \vec{r} |3s2p\rangle \\ &\approx \frac{2.17 \text{ a.u.}}{\sqrt{2}} \approx 1.54 \text{ a.u.} \end{aligned} \quad (3.6)$$

Bei dieser Abschätzung wurde $\langle 2s2p | \vec{r} |2p^2\rangle \approx \langle 2p^2 | \vec{r} |3s2p\rangle$ angenommen. Das kann sicherlich nur eine grobe Näherung sein, weil alle Übergänge erster Ordnung gleichgesetzt werden. Bei einem Prozess ändert sich jedoch die Hauptquantenzahl, bei dem anderen der Drehimpuls. Allerdings ist zumindest davon auszugehen, dass die Größenordnung der Übergangsamplituden gleich ist. Die Kopplungsmatrix für den konkreten Fall nimmt damit folgende Form an:

$$\mathbf{H}_{\mathbf{E}} = E(t) \cdot \begin{pmatrix} 0 & 2.17 & 0 \\ 2.17 & 0 & 1.54 \\ 0 & 1.54 & 0 \end{pmatrix} \text{ a.u.} \quad (3.7)$$

Die Zeitentwicklung im IR Laserfeld (unter Vernachlässigung der Kontinuumswechselwirkung) für einen Eigenzustand ψ_n zum atomaren Hamiltonoperator \mathbf{H}_0 lautet dann:

$$\psi_n(t_0 + dt) = e^{-iE_n dt} \psi_n(t_0) + T^{-1} \cdot e^{-iE(t)\lambda_n dt} \cdot T \cdot \psi_n(t_0) \quad (3.8)$$

Dabei sind λ_n die neuen Eigenwerte der diagonalisierten Kopplungsmatrix $\mathbf{H}_{\mathbf{E}}$, $E(t)$ bezeichnet das zeitabhängige IR-Feld.

Der XUV-Puls spielt für die Zeitentwicklung des Systems keine Rolle. Er besetzt lediglich alle Zustände und ihre Kontinua proportional zu den jeweiligen Übergangsmatrixelementen und legt somit den Startzeitpunkt für die Entwicklung fest.

3.4 Kontinuumswechselwirkung

Die Simulation eines kontinuierlichen Spektrums von freien Zuständen ist numerisch nicht möglich. Statt dessen wurden viele, eng liegende, diskrete Zustände ϵ implementiert. Die Wechselwirkung der gebundenen Zustände mit diesem freien Spektrum führt

dann zur Autoionisation. Das Übergangsmatrixelement zwischen den einzelnen diskreten Niveaus ψ_n mit Besetzungsamplitude c_n und einem freien Zustand ϵ ist gegeben durch:

$$\langle \psi_n | \mathbf{V} | \epsilon \rangle = V \quad (3.9)$$

$$\langle \psi_i | \mathbf{V} | \psi_j \rangle = \langle \epsilon_i | \mathbf{V} | \epsilon_j \rangle = 0 \quad (3.10)$$

Eine weitere Diagonalisierung der Matrix für jedes Zustandspaar ψ_n und ϵ ermöglicht es, die Zeitentwicklung mit den Eigenwerten V und $-V$ durchzuführen:

$$\begin{pmatrix} c_n \\ c_\epsilon \end{pmatrix} (t + dt) = T^{-1} \cdot \begin{pmatrix} e^{iVdt} & 0 \\ 0 & e^{-iVdt} \end{pmatrix} \cdot T \begin{pmatrix} c_n \\ c_\epsilon \end{pmatrix} (t) \quad (3.11)$$

wobei T wieder die geeignete Transformationsmatrix darstellt. Löst man das Gleichungssystem, so erhält man:

$$\begin{pmatrix} c_n \\ c_\epsilon \end{pmatrix} (t + dt) = \begin{pmatrix} -\sinh(iVdt) \cdot c_n(t) - \cosh(iVdt) \cdot c_\epsilon(t) \\ \sinh(iVdt) \cdot c_n(t) - \cosh(iVdt) \cdot c_\epsilon(t) \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

Diese Operation wird dann nacheinander für alle Kontinuumszustände ϵ ausgeführt. Die Kontinuumszustände entwickeln sich außerdem stationär mit ihrer jeweiligen freien Energie E_ϵ .

Zusammen mit der Zeitentwicklung in Eigenbasis zu \mathbf{H}_0 und \mathbf{H}_E wird somit die komplette Dynamik des Systems simuliert. Als einzige Näherung geht der Split-Step-Mechanismus bei den Basistransformationen ein. Durch Wahl eines geeigneten Zeitschritts dt und entsprechende Rechenleistung steht damit ein leistungsfähiges Werkzeug zur Berechnung von Wechselwirkungen zwischen gebundenen Elektronen und Licht zur Verfügung.

3.5 XUV-Absorptionsspektrum

Zu jedem Zeitschritt kann die Dipolantwort des Systems aus den momentanen Besetzungsamplituden von gebundenen Zuständen und dem Kontinuum gewichtet mit den jeweiligen Dipolmomenten gewonnen werden:

$$D(t) = \sum_n c_n(t) d_{gn} + \sum_j \epsilon_j(t) d_{gj} \quad (3.13)$$

mit den Besetzungsamplituden c_n für diskrete Niveaus und ϵ_j für das Kontinuum. Der $|2p^2\rangle$ -Zustand und das dazugehörige $1s\epsilon d$ -Kontinuum tragen hier nicht bei, da das Übergangsdipolmoment aus dem Grundzustand verschwindet.

Die Fouriertransformation der zeitabhängigen Dipolantwort normiert mit dem Spektrum des Attosekundenpulses $A_{\text{atto}}(\omega)$ ergibt dann den komplexen Brechungsindex $n(\omega)$ des Systems

$$n(\omega) = \frac{\mathcal{F}[D(t)]}{A_{\text{atto}}(\omega)} \quad (3.14)$$

dessen Imaginärteil $\text{Im } n(\omega)$ das Absorptionsspektrum darstellt.

3.6 Ionisation im Laserfeld

Nicht berücksichtigt wird in der Simulation die Photoionisation von Elektronen im Laserfeld. Gängige theoretische Modelle für Ionisationsraten stammen von Ammosov, Delone und Krainov (ADK-Modell [8]) oder Yudin und Ivanov [9]. Das Coulomb-Potential des Kerns wird im Laserfeld stark gestört und Elektronen können das Kernpotential durch den Tunneleffekt verlassen.

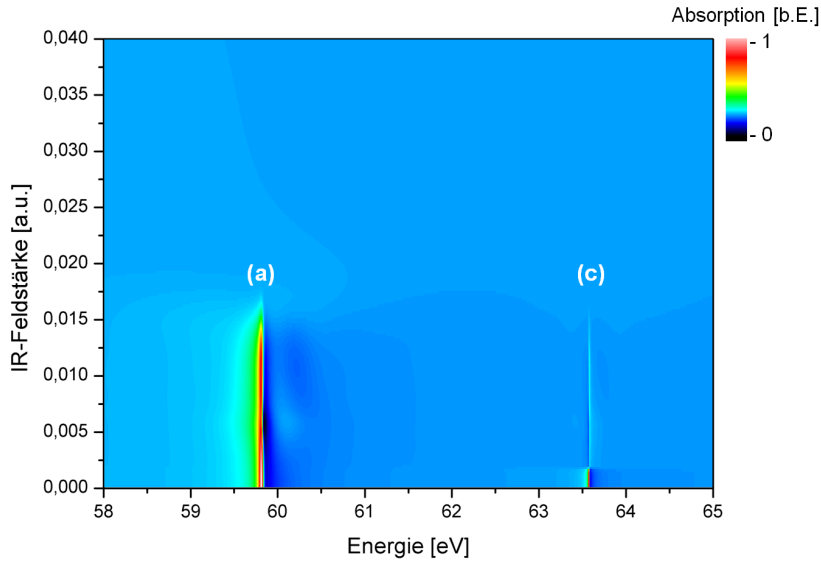


Abbildung 3.2: 2D-Absorptionsplot der $|a\rangle$ und $|c\rangle$ Resonanzlinien unter Einbeziehung der ADK-Ionisationsrate. Aufgetragen ist die normierte Absorption abhängig von der IR-Feldstärke. Die Dauer des IR-Pulses beträgt 7.25 fs. Beide Linien ionisieren vollständig, bevor eine Stark-Verschiebung beobachtet werden kann. Dies widerspricht eigenen experimentellen Daten. Das Modell von Yudin und Ivanov gibt für das simulierte System noch größere Ionisationsraten an.

Beide theoretischen Modelle betrachten eigentlich Valenzelektronen ohne Korrelation. Sie wurden allerdings auch schon für die Berechnung von Ionisationsraten für Mehrelektronensysteme wie Helium eingesetzt [10].

Ein Vergleich von Simulationsdaten unter Einbeziehung des ADK-Modells ergab jedoch, dass die Photoionisationsrate stark überschätzt wurde (Abbildung 3.2). Beide

Resonanzen ionisieren vollständig, bevor es zu den experimentell beobachteten Stark-Verschiebungen kommen kann. Vor allem die $|c\rangle$ -Resonanz ionisiert schon bei moderaten Feldstärken von 0.002 a.u., anschließend ist sie nur noch zu erkennen, weil Besetzung aus den anderen Niveaus nachgeliefert wird. Das Modell von Yudin und Ivanov ergibt sogar eine noch frühere Ionisation der Linien. Dies lässt die Vermutung zu, dass korrelierte Mehrelektronensysteme im Laserfeld länger stabil bleiben als Valenzelektronen mit ähnlichem Ionisierungspotential. Den Messdaten nach zu urteilen ist Autoionisation der dominierende Zerfallskanal der Zustände. Bevor Ionisation für die hier simulierten Zustände wichtig wird, muss zunächst die höher gelegene $N = 2$ Rydbergserie verschwinden. Sie ist jedoch in den Messdaten noch deutlich zu erkennen.

In den durchgeführten Simulationen wurde deshalb die Photoionisation vernachlässigt und die Zustände zerfallen nur über die Kontinuumswechselwirkung. Für hohe Laserintensitäten ist diese Näherung sicherlich problematisch. Solange der dominierende Einfluss des IR-Feldes jedoch die Kopplung der Zustände ist, spielt Ionisierung für die untersuchten Effekte keine Rolle.

3.7 Algorithmus im Überblick

Nachdem gezeigt wurde, wie die Zeitentwicklung jeder Komponente des Hamiltonoperators durchgeführt wird, ist hier der Ablauf des Algorithmus zusammengefasst:

1. Zustände und Kontinua werden proportional zu ihren Dipolelementen zum Grundzustand vom XUV-Puls besetzt
2. Simulation der Dynamik des Systems
 - (a) \mathbf{H}_0 : Stationäre Phasenentwicklung der gebundenen Zustände und des Kontinuums mit den ungestörten Energieeigenwerten $e^{iE_n dt}$
 - (b) \mathbf{H}_E : Transformation in Diagonalebasis der IR-Kopplungsmatrix, Zeitentwicklung der gebundenen Niveaus mit $e^{i\lambda_n E(t) dt}$
 - (c) \mathbf{V} : Transformation in Diagonalebasis der Kontinuumswechselwirkung, Wechselwirkung jedes gebundenen Zustands mit allen freien Niveaus und Zeitentwicklung um einen Zeitschritt dt
 - (d) Wiederholung von (a), (b) und (c) bis der Abbruchzeitpunkt erreicht wird
3. Erstellung des Absorptionsspektrums aus der Fouriertransformation der zeitabhängigen Dipolantwort des Systems

Kapitel 4

Ergebnisse

4.1 Simulation ungestörter Fano-Resonanzen

Die Simulation von ungestörten Fano-Resonanzlinien ohne IR-Puls bietet eine erste Möglichkeit, das Modell experimentell zu testen. Die Autoionisationszustände von Helium sind sehr gut untersucht, da sie für Theorien ein einfaches Modellsystem darstellen. Auch vor der Verfügbarkeit von Laserquellen mit dem entsprechenden Spektralbereich wurden schon Messungen mit Synchrotronstrahlung durchgeführt [5].

Referenz	E_a [eV]	E_c [eV]	Γ_a [meV]	Γ_c [meV]	q_a	q_c
Simulation	60.147	63.656	37.2	8.6	-2.76	-2.47
[5]	60.147	63.658	37	10	-2.75	-2.5
[11]	60.123(15)	63.652(7)	38(4)	8(4)	-2.80(25)	-2(1)

Tabelle 4.1: Fitparameter für die Fano-Resonanzen $|2s2p\rangle$ (a) und $\frac{1}{\sqrt{2}}(|2s3p\rangle + |3s2p\rangle)$ (c) aus der vorgestellten Simulation sowie aus Messungen mit Synchrotronstrahlung. Fits an die Simulationsdaten wurden mit einem evolutionären Algorithmus durchgeführt. Sofern nicht anders angegeben betragen die Fehler ± 1 in der letzten Stelle. Der dunkle $|2p^2\rangle$ -Zustand ist für direkte Messungen nicht zugänglich und taucht auch im simulierten Absorptionsspektrum nicht auf.

Der Vergleich mit experimentellen Daten bietet die Möglichkeit, die Simulation zu kalibrieren. Es werden viele Parameter für die Rechnungen benötigt, die quantitativ nicht bekannt sind. So sind beispielsweise die Dipolübergangsmomente aus dem Grundzustand in die angeregten Niveaus und die Kontinuumswechselwirkung V nur sehr aufwändig zu berechnen. Aus den gemessenen Fano-Parametern lassen sich jedoch die richtigen

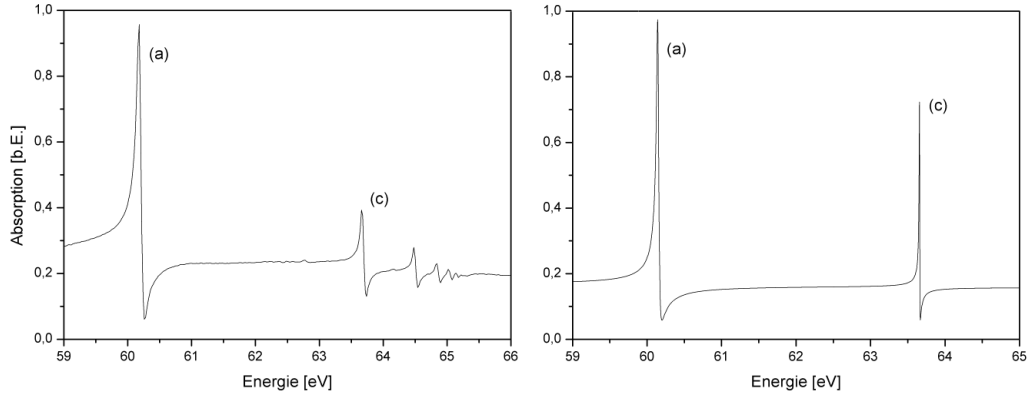


Abbildung 4.1: Messung (links) und Simulation (rechts) der ungestörten Fano-Resonanzen $|2s2p\rangle$ (a) und $\frac{1}{\sqrt{2}}(|2s3p\rangle + |3s2p\rangle)$ (c). In den experimentellen Daten ist die gesamte $N = 2$ Rydberg-Serie bis zum $2s$ -Kontinuum bei 65.40 eV zu erkennen. Gebundene Zustände oberhalb von (c) werden in der Simulation nicht berücksichtigt. Der dazwischenliegende $|2p^2\rangle$ -Zustand (b) ist aus Paritätsgründen aus dem Grundzustand nicht zu erreichen und taucht daher im XUV-Absorptionsspektrum nicht auf. Die schmalen Absorptionsmaxima von (a) und (c) können bedingt durch die Energieauflösung bei der Messung nicht vollständig abgebildet werden und erscheinen in den Messdaten weniger ausgeprägt.

Verhältnisse zwischen den Übergangsdipolmomenten in das Kontinuum und in die gebundenen Zustände sowie die Kontinuumswechselwirkung gewinnen (siehe Abschnitt 2.1). Nun kann getestet werden, ob die Simulation mit dem richtigen Verhältnis aus $d_{g-\alpha}$, $d_{g-\beta E}$ und V die korrekten Resonanzlinien reproduziert. Zur Berechnung der Eingabeparameter wurden die Messungen von [5] benutzt. Die simulierten Linien sind zusammen mit Messdaten der Interatto-Gruppe in Abbildung 4.1 dargestellt.

An beide Resonanzen wurde durch einen evolutionären Algorithmus ein Fano-Profil angepasst. Die gefundenen Parameter nach 5000 Iterationen im Vergleich mit den Messergebnissen von [5] und [11] sind in Tabelle 4.1 aufgeführt.

4.2 Untersuchungen im monochromatischen IR-Feld

Ein Ziel der Simulation besteht darin, die Auswirkung der Kopplung verschiedener Zustände genauer zu untersuchen. Ausserdem soll über den beobachteten Stark-Effekt im Experiment eine Intensitätskalibrierung der Messdaten durchgeführt werden. Eine direkte Überprüfung der Berechnungen ist so natürlich nicht möglich. Allerdings lassen sich auch Grenzfälle simulieren, für die analytische Modelle existieren. Das erlaubt den quantitativen Test der Simulationsergebnisse für bekannte Situationen und somit die

Extrapolation der Ergebnisse für den Stark-Effekt in Bereiche, in denen keine anderen theoretischen Modelle existieren.

Viele analytische Lösungen für Feld-Atom-Wechselwirkungen gehen von einem monochromatischen elektrischen Feld aus. In Bereichen, in denen die Pulsdauer wesentlich größer ist als die Dauer eines Rabi-Zyklus des Systems, ist diese Näherung durchaus gerechtfertigt. Deshalb wurden für diesen Fall einige Simulationen mit 60 fs-Pulsen durchgeführt. Der IR-Laser besitzt in Anlehnung an eigene Experimente eine zentrale Wellenlänge von $\lambda = 755$ nm (das entspricht einer Photonenenergie von 1.65 eV).

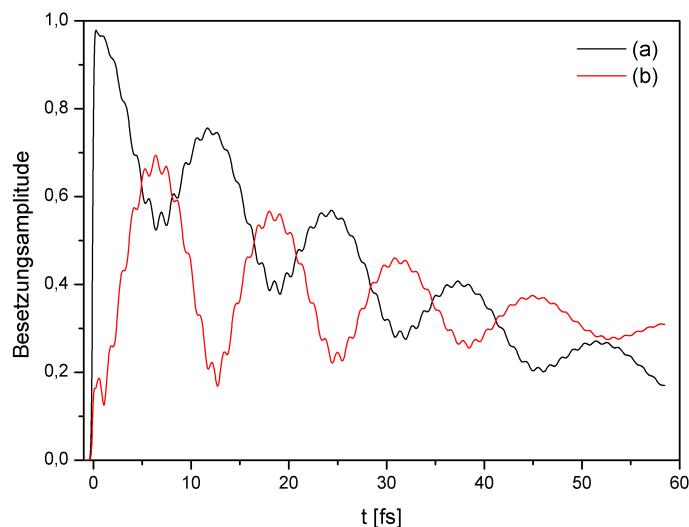


Abbildung 4.2: Zeitlicher Verlauf der Besetzungsamplituden der Zustände $|2s2p\rangle$ (a) und $|2p^2\rangle$ (b). Zum Zeitpunkt $t = 0$ werden die Zustände vom XUV-Puls besetzt. Der simulierte IR-Laserpuls ($4 \cdot 10^{-3}$ a.u.) besitzt eine Dauer (FWHM) von ca. 60 fs und eine Wellenlänge von 755 nm, es besteht keine Zeitverzögerung zwischen den Pulsen. Gut zu erkennen ist die Rabi-Oszillation der Populationen. Die schnelle Modulation entspricht der IR-Frequenz. Die Autoionisation führt zu einem exponentiellen Abfall der Amplituden.

Bei der Interaktion von Laserfeldern mit einem zwei-Niveau-System kommt es zur Rabi-Oszillation der Zustandsbesetzungen (Abbildung 4.2). Die entsprechende Modulation in der Besetzungsamplitude ist in Abbildung 4.2 deutlich zu erkennen, ebenso wie die schnelle Modulation mit der IR-Frequenz. Abweichungen für kurze Pulse sind allerdings zu erwarten, insbesondere wenn die Pulsdauer in Größenordnung der Rabi-Frequenz kommt oder diese unterschreitet.

Darüber hinaus bietet sich die Möglichkeit, den Stark-Effekt mit monochromatischen Lichtwellen zu untersuchen. Der Zustand $|2p^2\rangle$ wird dabei im Laserfeld zu einem bekleideten Zustand, die nahe liegenden $|2s2p, N\rangle$ und $|2p^2, N - 1\rangle$ Niveaus stoßen sich dann entsprechend ihrer Dipolwechselwirkung ab. Simulationsdaten im Vergleich mit

der theoretischen Stark-Verschiebung sind in Abbildung 4.3 gezeigt. Leichte systematische Abweichungen ergeben sich durch den verwendeten Auswertungsalgorithmus, der das Absorptionsmaximum statt der zentralen Energie des Fano-Profiles findet. Abgesehen davon folgen die Zustände genau den theoretischen Vorhersagen.

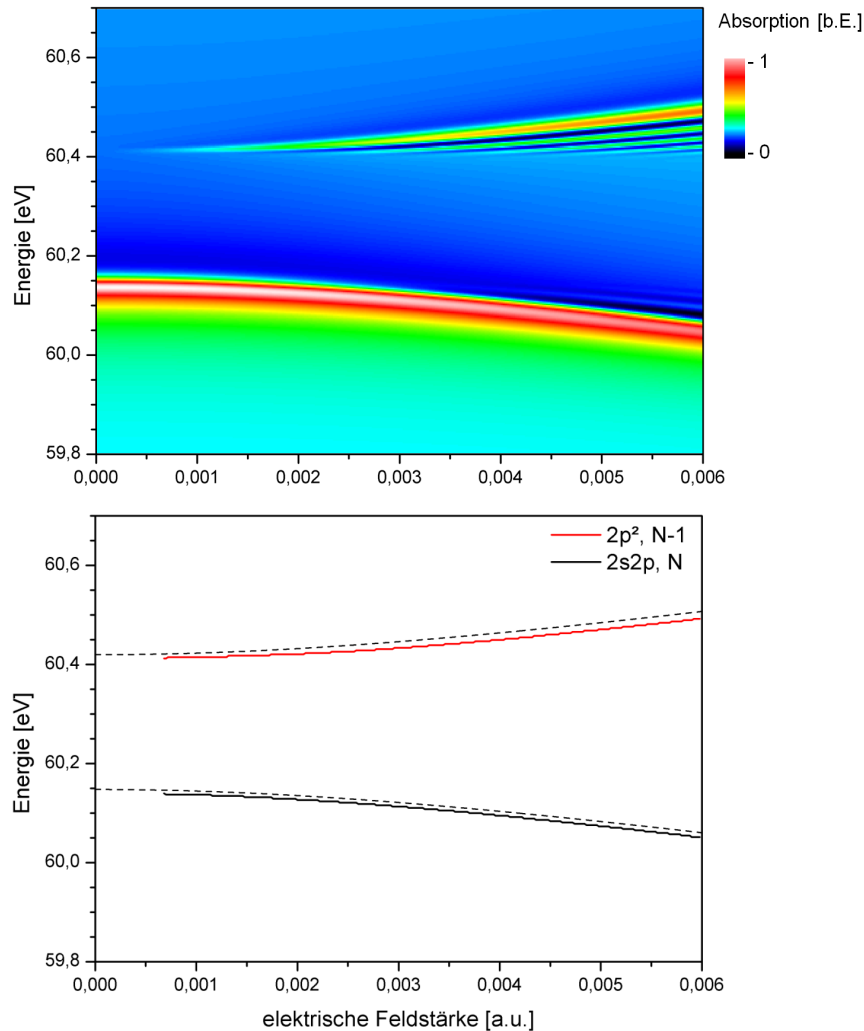


Abbildung 4.3: Stark-Verschiebung der Zustände $|2s2p, N\rangle$ und $|2p^2, N-1\rangle$ im IR-Laserfeld. Oben ist der simulierte 2D-Absorptionsplot gezeigt. Nebeninterferenzen treten durch unterschiedliche Phasenentwicklung der beiden Zustände auf. Unten ist der Verlauf der Linien zusammen mit der theoretische Verschiebung nach Gleichung 2.17 (gestrichelten Linien) aufgetragen. Der Auswertungsalgorithmus verursacht eine leichte systematische Abweichung von der Theorie, da das Absorptionsmaximum statt der zentralen Fano-Energie dargestellt wird.

4.3 Untersuchungen mit kurzen IR-Pulsen

Am interessantesten ist die Simulation von Elektronendynamik mit kurzen IR-Pulsen. Die experimentellen Messdaten sind bei Messungen mit verschiedenen IR-Intensitäten entstanden, während die beiden Laserpulse zeitlich überlappen. Alternativ kann bei konstanter Intensität der Zeitversatz variiert werden.

4.3.1 Absorptionsspektren in Abhängigkeit der Laserintensität

Ergebnisse für simulierte Resonanzlinien in Abhängigkeit von der Feldstärke mit IR-Pulslängen von 7.25 fs und 14.50 fs sind in Abbildung 4.4 gezeigt. Die Dynamik des Systems mit kurzen Pulsen unterscheidet sich stark von den zuvor analysierten monochromatischen Grenzfällen.

Die lichtinduzierten $|b, N \pm 1\rangle$ Zustände erscheinen bei kurzen Laserpulsen deutlich verbreitert, da die Dauer des Pulses die Lebenszeit der Zustände nach oben begrenzt. Außerdem besitzt der kürzere Puls ein breiteres Spektrum und eine weniger scharf definierte Photonenenergie. Das führt zu einer ganzen Bandbreite von möglichen $|b, N \pm 1\rangle$ -Niveaus.

Die Verschiebung des $|b, N + 1\rangle$ -Niveaus ist ein Abbild der $|b, N - 1\rangle$ -Verschiebung im Laserfeld. Der dunkle $|b\rangle$ -Zustand ist stärker an $|a\rangle$ gekoppelt, sodass deren Abstoßung die Lage der $|b, N\rangle$ -Resonanzen dominiert.

Interessant ist das periodische Auftreten weiterer Linien mit ansteigender Intensität. Vermutlich besteht ein enger Zusammenhang zur Anzahl der durchlaufenen Rabi-Zyklen. Während des kurzen IR-Pulses verschiebt sich die Lage der Niveaus proportional zur Einhüllenden der Feldstärke. Oszilliert die Besetzung nun, so liegen die Resonanzlinien bei jedem Halbzyklus an einer anderen Position. Die Population findet also die Resonanzen immer bei verschiedenen Energien, und es kommt genau dort zur Bildung eines Absorptionssignals.

Passend zu dieser Vermutung treten bei doppelter Pulslänge auch doppelt so viele zusätzliche Nebenlinien auf. Allerdings sind noch detailliertere Untersuchungen nötig, um das Phänomen genauer zu verstehen.

In Abbildung 4.4 ist auch periodisch auftretend Transparenz an der Position der ungestörten Linien zu erkennen. Der Effekt kann als EIT-Signal interpretiert werden, das auftreten kann, wenn die Rabi-Oszillation zusammen mit der unterschiedlichen Phasenentwicklung in den einzelnen Niveaus destruktiv interferiert. In den simulierten Daten fällt die Absorption sogar nicht nur auf 0 ab sondern wird negativ, das System verstärkt also kohärent den XUV-Puls (Lasing without Inversion [12]).

Eigene Experimente bei vergleichbaren Intensitäten wurden noch nicht durchgeführt. Es ist ebenfalls möglich, dass Ionisierung eine praktische Beobachtung der zusätzlichen Nebenlinien verhindert. Allerdings könnte es durchaus lohnend sein, nach entsprechenden Signaturen in neuen Experimenten Ausschau zu halten. Es bietet sich hier die Möglichkeit, die momentane Amplitudenbesetzung kurzlebiger Niveaus experimentell abzubilden und somit direkten Einblick in die Dynamik zu bekommen.

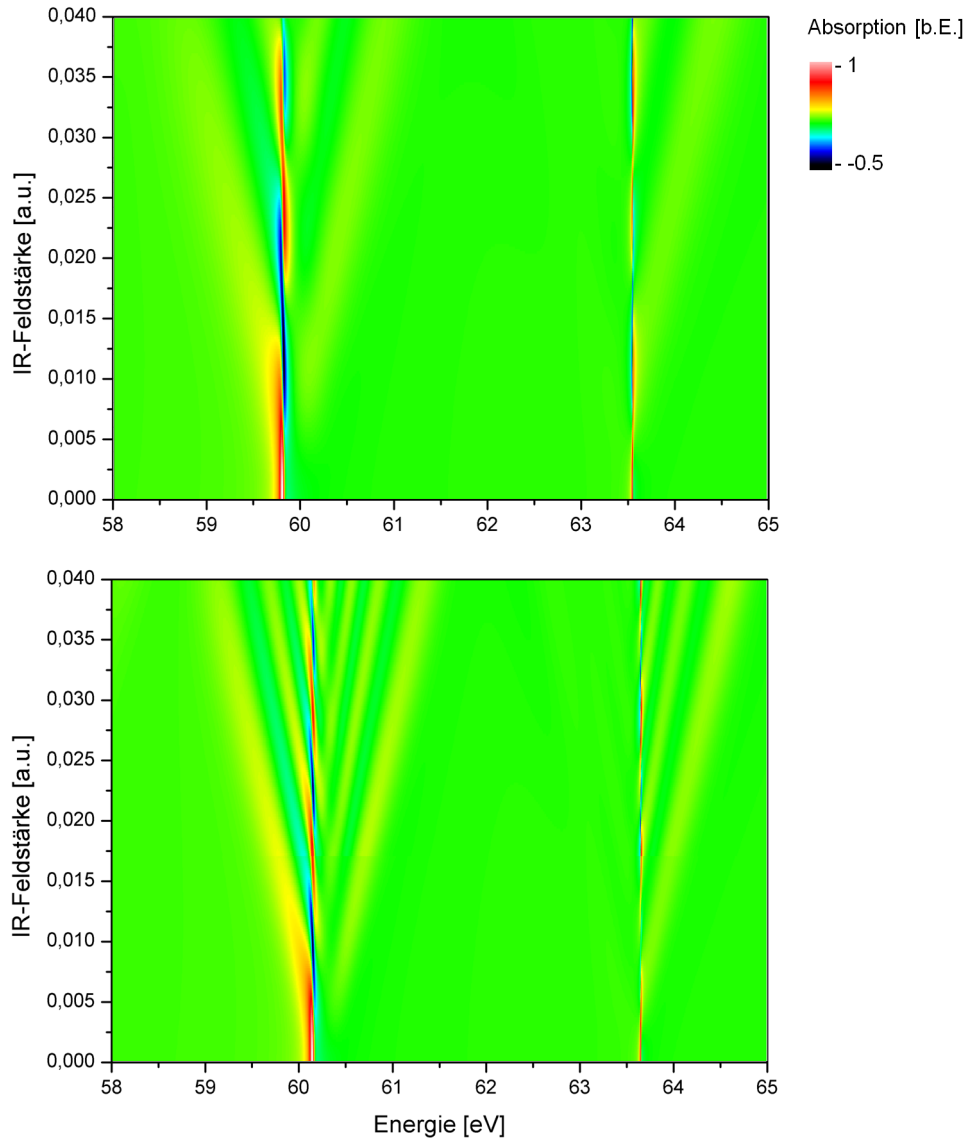


Abbildung 4.4: 2D-Absorptionsplot der Zustände $|a\rangle$ und $|c\rangle$ mit den bekleideten Zuständen $|b, N - 1\rangle$ und $|b, N + 1\rangle$. Die IR-Pulslänge beträgt 7.25 fs (oben) beziehungsweise 14.50 fs (unten). Die Lebenszeit der lichtinduzierten Zustände ist durch den Laserpuls begrenzt und somit erscheinen die entsprechenden Linien für 7.25 fs Pulsdauer deutlich verbreitert. Nahe gelegene Zustände stoßen sich mit wachsender Feldstärke über den Stark-Effekt ab. Rabi-Oszillation zwischen den gekoppelten Niveaus verursacht periodisch auftauchende zusätzliche Absorptionslinien. Bei doppelter Pulsdauer (\approx doppelte Anzahl von Rabi-Zyklen) treten doppelt so viele zusätzliche Linien auf.

4.3.2 Absorptionsspektren in Abhängigkeit des Zeitversatzes

Verschiebt man bei konstanter IR-Intensität beide Pulse im Zeitbereich, so ist es möglich, die Dynamik des Systems mit dem XUV-Puls zu verschiedenen Zeitpunkten abzufragen.

In den Abbildungen 4.5 und 4.6 sind Messergebnisse und simulierte Daten zusammen mit der Fouriertransformation entlang der Delay-Achse dargestellt. Bisher ist die Intensitätskalibrierung der Messdaten nicht bekannt, somit ist nur ein qualitativer Vergleich möglich. Nichtsdestotrotz gelingt es der Simulation, die wesentlichen Merkmale zu reproduzieren.

Die Position der schnellen Modulation in den Spektren tritt weitgehend unabhängig von der Feldstärke auf. Ein Zusammenhang mit der Stark-Verschiebung der Linien besteht also nicht. Stattdessen handelt es sich um einen zwei-Photonen Übergang mit Absorption und anschließender Reemission im Laserfeld. Der dabei auftretende Phasenunterschied führt zu Interferenzen, die abhängig vom Zeitversatz der Pulse zu verschiedenen Zeitpunkten abgefragt werden. Das Phänomen wird durch den dunklen $|b\rangle$ -Zustand resonant verstärkt, der statt virtueller Niveaus als Zwischenschritt verwendet werden kann. In den Fouriertransformationen erscheinen diese Übergänge auf einer Geraden.

Bei kleinen Zeitdifferenzen zwischen den Pulsen beobachtet man wieder den lichtinduzierten $|2p^2, N - 1\rangle$ -Zustand und die Abstoßung durch den Stark-Effekt von der $|2s2p, N\rangle$ Resonanz. Bei dem Absorptionsminimum in den Messdaten für große Zeitunterschiede handelt es sich um das Minimum der Fano-Resonanz. Bei vollem zeitlichen Überlapp ist jedoch darüber hinaus Elektromagnetisch Induzierte Transparenz zu beobachten, wie auch schon in den vorgestellten Simulationsdaten (Abbildung 4.4).

In den Messdaten ist die $N = 2$ Rydbergserie auch bei vollem zeitlichen Überlapp der Pulse noch erkennbar. Sogar die Zustände nah an der Ionisierungsschwelle von 65.40 eV bleiben stabil. Tunnelionisierung scheint überraschenderweise keine Rolle zu spielen. Sogar eine Absorption eines einzelnen IR-Photons sollte die Besetzungsamplitude dieser Zustände ins Kontinuum verlagern. Warum dies nicht geschieht, ist noch unklar.

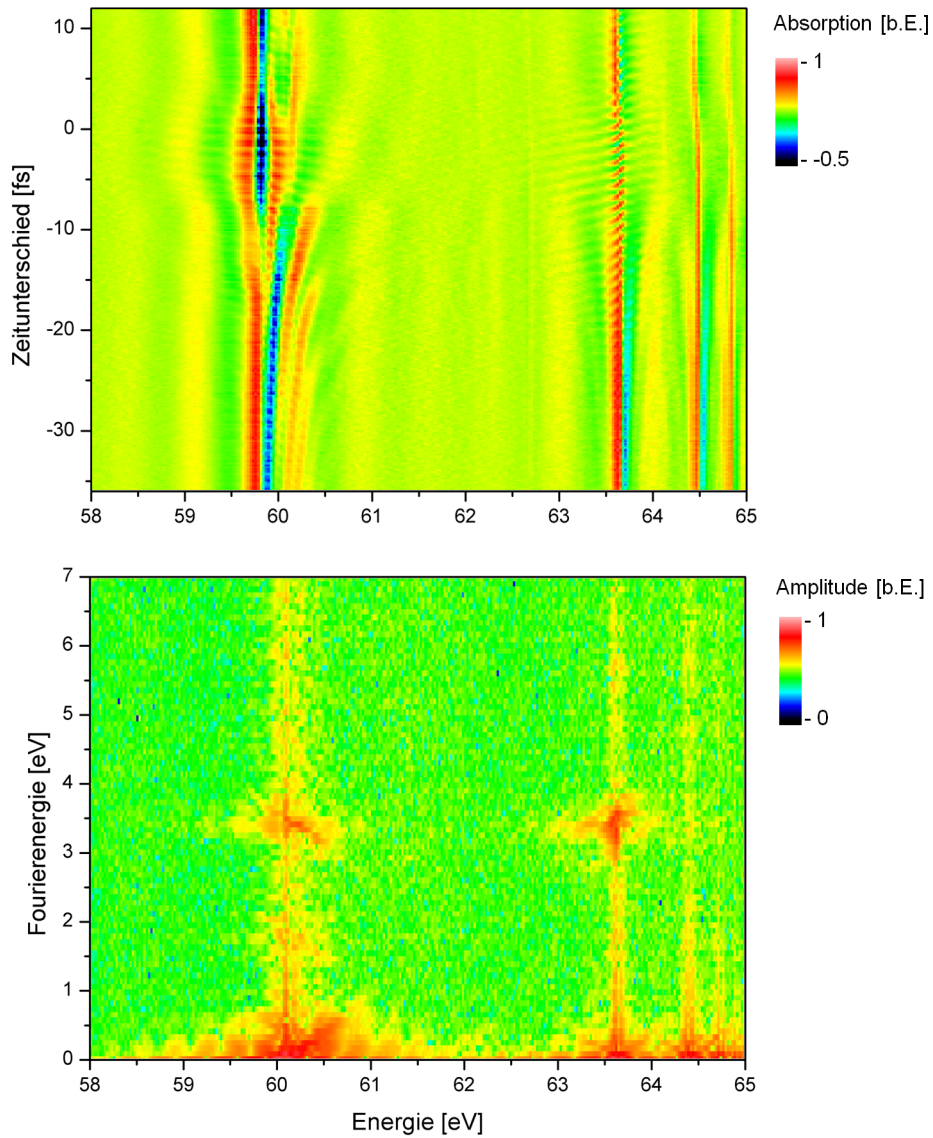


Abbildung 4.5: Oben: 2D-Absorptionsplot der $|a\rangle$ und $|c\rangle$ Resonanzlinien aus Messdaten. Aufgetragen ist die normierte Absorption in Abhängigkeit vom Zeitunterschied zwischen den Laserpulsen. Bei negativen Zeitunterschieden kommt der XUV-Puls vor dem IR-Puls. Bei hohen Energien sind weitere Fano-Resonanzen der $N = 2$ Serie zu sehen. Eine Intensitätskalibrierung wurde noch nicht durchgeführt. Unten: Fouriertransformation der Messdaten entlang der y-Achse. Zu erkennen sind Oszillationen mit den Resonanzenergien sowie Fourierpeaks bei vielfachen der Photonenenergie von ca. 1.65 eV.

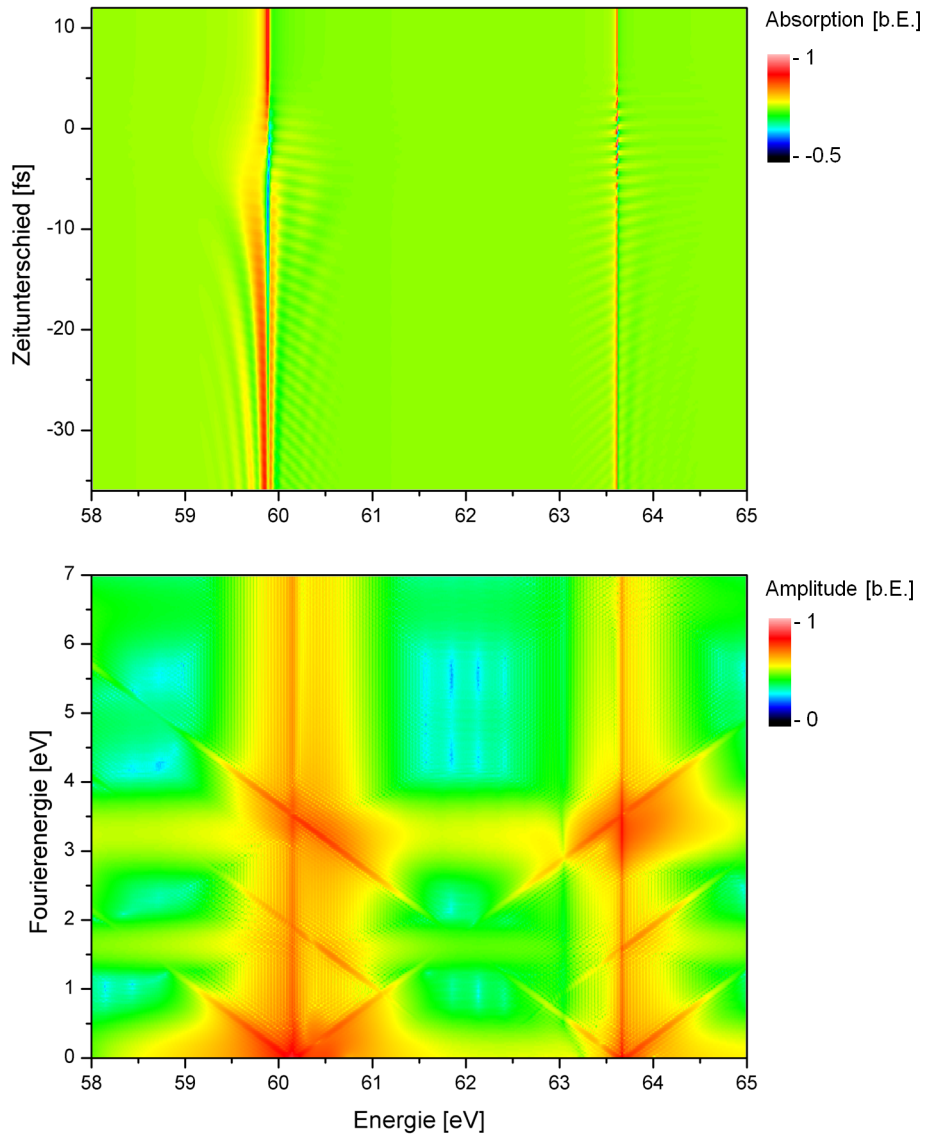


Abbildung 4.6: Oben: 2D-Absorptionsplot der $|a\rangle$ und $|c\rangle$ Resonanzlinien aus simulierten Daten. Aufgetragen ist die normierte Absorption in Abhängigkeit vom Zeitunterschied zwischen den Laserpulsen. Bei negativen Zeitunterschieden kommt der XUV-Puls vor dem IR-Puls. Die Berechnungen wurden für eine IR-Feldstärke von 0.01 a.u. bei $\lambda = 755$ nm durchgeführt. In der Simulation verschwindet jede Dynamik für positive Zeitunterschiede, die größer als die Pulsdauer sind, da die Zeitentwicklung erst mit der Besetzung der Niveaus anfängt. Ein vergangener IR-Puls hat keinen Effekt.

Unten: Fouriertransformation der Messdaten entlang der y-Achse. Die schnellen Modulationen im Absorptionsspektrum liegen im Fourierplot auf einer Geraden. Fourierpeaks sind bei ganzzahligen vielfachen der Photonenenergie 1.65 eV zu sehen.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

In der vorgestellten Arbeit ist es gelungen, ein vielversprechendes Modell zur Simulation elektronischer Dynamik zu entwickeln. Es wurden zunächst einige gut verstandene Effekte, wie die Ausbildung von Fano-Profilen durch Kontinuumswechselwirkung oder der Stark-Effekt in monochromatischen Feldern, reproduziert.

Der Vergleich der Stark-Verschiebung in Messdaten und in Simulationen kann für eigene Experimente eine Intensitätskalibrierung liefern. Ohne Vergleich mit Berechnungen ist das kaum möglich, da im Experiment die Feldstärke nicht direkt messbar ist.

Ausserdem wurden für die Dynamik unter Einfluss von kurzen Laserpulsen einige neue Beobachtungen gemacht. Der interessante Zeitbereich ist erreicht, wenn die Dauer des Pulses vergleichbar mit dem Rabizyklus wird. Dann wird es möglich, die Auswirkungen der momentanen Besetzungsamplituden auf Femtosekundenzeitskala direkt zu beobachten.

Auch wenn diese Beobachtungen noch nicht im Detail durch Messungen bestätigt sind, so erscheint das entsprechende Regime doch vielversprechend. Auch längere Pulse bei niedrigeren Intensitäten können den gleichen Bereich erschließen, jedoch ist dann die Stark-Verschiebung der Linien deutlich schwächer und es werden höhere Anforderungen an die spektrale Auflösung gestellt. Die Möglichkeit, in Autoionisationszuständen Elektromagnetisch induzierte Transparenz oder Lasing zu beobachten, bietet jedoch auf jeden Fall Anreiz für neue Experimente.

Die im Rahmen dieser Arbeit entstandene Simulation bietet noch vielfältige weitere Untersuchungsmöglichkeiten. Eine Fouriertransformation der 2D-Absorptionsspektren und die anschließende Rücktransformation ausgewählter Zeitbereiche erlaubt es, die Entstehung der Resonanzen zeitaufgelöst zu untersuchen. Ebenso sind die Möglichkeiten, den Verlauf der Besetzungsamplituden in Abhängigkeit von IR-Feldern zu beobachten, noch lange nicht ausgeschöpft.

Ein wichtiges Resultat ist die späte Ionisierung der Linien, vor allem bei einem Vergleich mit den theoretischen Modellen von ADK und Yudin und Ivanov. Offenbar bleiben stark korrelierte Elektronensysteme in Laserfeldern länger stabil, als man es von vergleichbaren unabhängigen Systemen erwarten würde. Die Gründe für dieses Verhalten sind noch unklar. Allerdings ist es wichtig, auf die Schwächen der etablierten Modelle

zur Berechnung der Ionisierungsraten hinzuweisen. Eine Anwendung im Falle von autoionisierenden Zuständen erscheint nach den Ergebnissen dieser Arbeit problematisch.

Interessant wäre es auch, den Einfluss von schwachen Feldern auf die Kontinuumswechselwirkung zu verstehen. Es ist durchaus wahrscheinlich, dass moderate IR-Felder den Autoionisationsvorgang beeinflussen. Experimentell wurden schon Veränderungen der Fano-Linienform abhängig von den angelegten Feldern beobachtet. Die Simulation kann dieses Verhalten reproduzieren und dabei helfen, die zugrunde liegenden Mechanismen zu verstehen.

Der verwendete Split-Step-Ansatz ist nicht spezifisch auf das untersuchte Problem zugeschnitten, sondern wesentlich allgemeiner. Die Simulation kann somit auch leicht auf andere Systeme angepasst werden und bietet großes Potential für weitere Untersuchungen.

Literaturverzeichnis

- [1] U. Fano. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts. *Phys. Rev.*, 124(6):1866–1878, Dec 1961.
- [2] L. B. Madsen, P. Schlagheck, and P. Lambropoulos. Laser-induced transitions between triply excited hollow states. *Phys. Rev. Lett.*, 85(1):42–45, Jul 2000.
- [3] B.H. Bransden and Charles Jean Joachain. *Physics of atoms and molecules*. 2003.
- [4] Jon H. Shirley. Solution of the schrödinger equation with a hamiltonian periodic in time. *Phys. Rev.*, 138(4B):B979–B987, May 1965.
- [5] M. Domke, K. Schulz, G. Remmers, G. Kaindl, and D. Wintgen. High-resolution study of $1po$ double-excitation states in helium. *Phys. Rev. A*, 53(3):1424–1438, Mar 1996.
- [6] S.I. Themelis, P. Lambropoulos, and M. Meyer. Ionization dynamics in double resonance involving autoionizing states in helium: the effect of pulse shapes. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 37(21):4281, 2004.
- [7] Mireille Aymar, Chris H. Greene, and Eliane Luc-Koenig. Multichannel rydberg spectroscopy of complex atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 68(4):1015–1123, Oct 1996.
- [8] M V Ammosov, N B Delone, and V P Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov Phys JETP*, 64(6):1191–1194, 1986.
- [9] Gennady L. Yudin and Misha Yu. Ivanov. Nonadiabatic tunnel ionization: Looking inside a laser cycle. *Phys. Rev. A*, 64(1):013409, Jun 2001.
- [10] Loh, Greene, and Leone. Femtosecond induced transparency and absorption in the extreme ultraviolet by coherent coupling of the he $2s2p$ ($1po$) and $2p2$ ($1se$) double excitation states with 800 nm light. *Chemical Physics*, 350(1-3):7 – 13, 2008.
- [11] R. P. Madden and K. Codrig. Two-electron excitation states in helium. *Phys. Rev. Lett.*, 10(516):516, 1963.
- [12] J Mompert and R Corbalan. Review article: Lasing without inversion. *J. Opt. B: Quantum Semiclass. Optics*, 2:R7–R24, 2000.

Danksagung

Zum Schluss will ich die Gelegenheit nutzen und allen Mitgliedern der Interatto-Gruppe am Max-Planck-Institut für Kernphysik für die freundliche Aufnahme und die schöne gemeinsame Zeit danken.

Thomas Pfeifer war eine große Hilfe bei Problemen physikalischer und sonstiger Natur und hat die Arbeit vorbildlich betreut. Besonderer Dank gebührt Christian Ott für lange Diskussionen, bei denen ich immer viel gelernt habe. Ausserdem hatte er immer ein offenes Ohr für Fragen bezüglich der Programmierung. Andreas Kaldun war ebenfalls eine große Unterstützung, danke dafür.

Dank geht auch an Ludwig Rauch, der in vielen Gesprächen gute Anregungen gegeben hat.

Erklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 25.07.2011

Steffen Hagstotz