

Kapitel 8

Zerfallsprozesse in starken Feldern: ATI

8.1 Above Threshold Ionization (ATI)

In diesem Kapitel betrachten wir die Multiphotonionisation von Atomen in starken Laserfeldern (es sei aber angemerkt, dass es ähnliche Prozesse auch in anderen Situationen gibt, wie zum Beispiel bei der Dissoziation von Molekülen). Typisch sind hier Photonen mit $\hbar\omega$ im eV Bereich und Laserintensitäten von etwa 10^{12} W/cm^2 . Wir haben es also mit feldinduzierten Übergängen aus einem gebundenen Zustand in das Kontinuum zu tun, bei denen n Photonen absorbiert werden. Bei niedrigeren Feldintensitäten findet man eine monoton abfallende Energieverteilung der ausgelösten Elektronen. Ein solches Beispiel ist in Abbildung 8.2 gezeigt. Experimente zur Multiphoton Ionisation von Xenon Atomen bei höheren Energien¹ zeigten zur damaligen Überraschung einen zweiten Peak, der um

¹ P. Agostini et al., Phys. Rev. Lett. 42 (1979) 1127

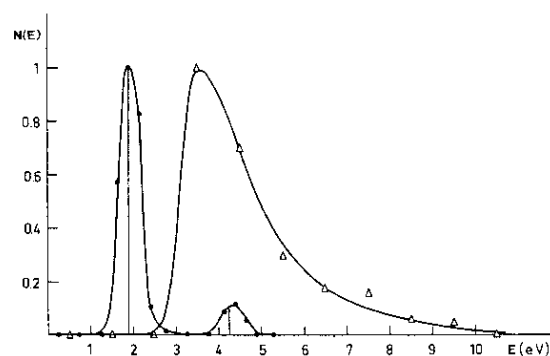


Abbildung 8.1: Experimentelle Energiespektren (P. Agostini et al, siehe Fußnote) der Elektronen bei Multiphoton Ionisation von Xenon Atomen für zwei Photonenenergien: $\hbar\omega = 1.17\text{eV}$, $I = 4 \cdot 10^{12}\text{W/cm}^2$ (Dreiecke) und $\hbar\omega = 2.34\text{eV}$, $I = 8 \cdot 10^{12}\text{W/cm}^2$ (Kreise).

die Energie eines Photons, $\hbar\omega$, höher lag. Das auslaufende Elektron absorbierte also im Kontinuum während des Auslaufens noch ein weiteres Photon. Aus diesem Grund wurde dafür der Begriff ‘Above Threshold Ionisation’ geprägt.

Nachfolgende Experimente mehrerer Arbeitsgruppen zeigten bald schon wesentlich mehr Strukturen². Ein Übersichtsartikel³ gibt einen guten Einblick in die weitere Entwicklung.

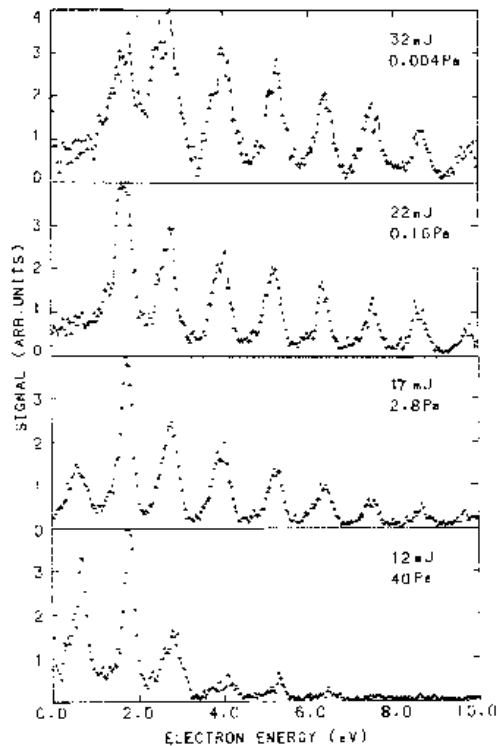


Abbildung 8.2: Experimentelle Energiespektren der Elektronen bei Multiphoton Ionisation von Xenon Atomen bei 1064 nm für verschiedenen Pulsenergien (K. Burnett et al, siehe Fussnote).

Im wesentlichen kann man die experimentellen Befunde wie folgt zusammenfassen:

- Die Elektronenspektren zeigen eine ausgeprägte Peakstruktur.
- Die Peakform ist gleich oder sehr ähnlich.
- Die Höhe der Peaks nimmt mit wachsender Energie ab.
- Bei höheren Feldintensitäten findet man eine Peakinversion, d.h. die ersten Peaks sind kleiner.
- Die Position der Peaks ist gegenüber der Energie $n\hbar\omega - E_{\text{ionisation}}$ verschoben (in der Regel eine Rotverschiebung). Dabei ist $E_{\text{ionisation}}$ die zur Ionisierung notwendige Energie und $n\hbar\omega$ die absorbierte Photonenenergie.

²Siehe z.B. P. Kruit et al, Phys. Rev. A 28 (1983) 248.

³K. Burnett, V. C. Reed, P. L. Knight, J. Phys. B 26 (1993) 561

8.2 Eine Modellstudie für ATI Prozesse

Um die Phänomene der Multiphoton Ionisation zu untersuchen, wählen wir ein eindimensionales Modell

$$\hat{H}\psi(x, t) = \left(\hat{H}_0 + V(x, t) \right) \psi(x, t) \quad (8.1)$$

mit einer Wechselwirkung

$$V(x, t) = V_0(x) + \lambda g(x) \cos \omega t \quad (8.2)$$

wobei wir zur Vereinfachung die x -abhängige Kopplung $g(x) = V_0(x)$ wählen sowie ein geeignetes Potential $V_0(x)$, das eine weitgehend analytische Behandlung erlaubt: das Rosen–Morse Potential

$$V_0(x) = -\frac{V_0}{\cosh^2 \alpha x} \quad (8.3)$$

mit den Energieeigenwerten

$$E_\nu = -\frac{(s - \nu)^2}{s(s + 1)} V_0, \quad \nu = 0, 1, \dots, \quad \text{mit } s = \frac{1}{2} \left(-1 + \sqrt{1 + \frac{8mV_0}{\alpha^2 \hbar^2}} \right) \quad (8.4)$$

(siehe z.B. Landau–Lifshitz, *Quantenmechanik*). Hier wählen wir Masse $m = 1$ und $\hbar = 1$, $\alpha^2 = 1/3$, $V_0 = 2$ mit $s = 3$ und den drei Eigenzuständen

$$E_0 = -\frac{3}{2}, \quad E_1 = -\frac{2}{3}, \quad E_2 = -\frac{1}{6}. \quad (8.5)$$

Die Eigenzustände $\psi_\nu^{(0)}$ haben positive ($\nu = 0, 2$) oder negative ($\nu = 1$) Parität. Auch die Wellenfunktionen gebundener Zustände sind analytisch bekannt, sowie die Kontinuumswellenfunktionen.

Unser Modell ist also ein oszillierendes Rosen–Morse Potential, dargestellt in Abbildung 8.3.

8.2.1 Floquet Resonanzen und ATI Spektren

Wir kombinieren jetzt die komplexe Skalierungs-Methode aus Abschnitt 2.4 mit der Floquet-Methode und berechnen (nach Transformation $x \rightarrow e^{i\theta} x$) die Quasienergien und Quasienergiezustände nach einer der in Kapitel 5 dargestellten Techniken. Hier wählen wir eine Diagonalisierung der Floquet Matrix in einer Basis von L^2 -Funktionen $\phi_m^{(0)} e^{in\omega t}$ mit $m \leq m_{\max}$, $-n_{\max} \leq n \leq n_{\max}$. Wir erhalten damit als Eigenwerte $m_{\max} \times (2n_{\max} + 1)$ Quasienergien, die in einer charakteristischen Weise in $(2n_{\max} + 1)$ Bändern angeordnet sind. Diese Bänder entsprechen natürlich den Brillouin Zonen der Breite $\hbar\omega$ (die Quasienergien sind nur modulo $\hbar\omega$ definiert). Wegen der endlichen Basis in n sind aber die numerischen Ergebnisse von Band zu Band etwas unterschiedlich; diese Unterschiede verschwinden für großes n_{\max} .

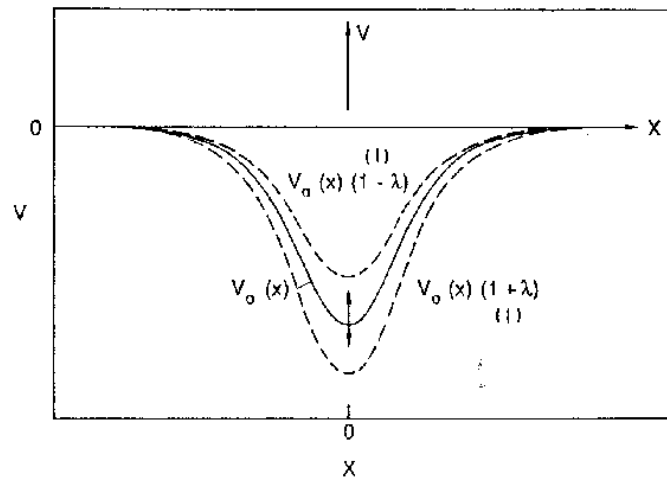


Abbildung 8.3: Modellsystem: oszillierender Potentialtopf mit maximaler Tiefe $V_0(x)(1 + \lambda)$, minimaler Tiefe $V_0(x)(1 - \lambda)$ und Mittelwert Tiefe $V_0(x)$.

Zur Demonstration der Wirkung der komplexen Skalierung zeigt Abbildung 8.4 das Quasienergiespektrum des Modellsystems (8.2) für $\lambda = 0.2$ ohne und mit komplexer Skalierung. Zum Verständnis dieser Resultate muß man sich klarmachen, dass das Modellsystem ohne Feld drei gebundene Zustände $E_m < 0$ besitzt sowie ein Kontinuum für $E > 0$. Mit Feld erhalten wir numerisch diskrete Eigenwerte die den Resonanzen und dem diskretisierten Kontinuum entsprechen. Ohne komplexe Skalierung ist es unmöglich, die Resonanzen von dem Kontinuum zu unterscheiden (Bild (a)). Mit Skalierung ($\theta = 0.45$)

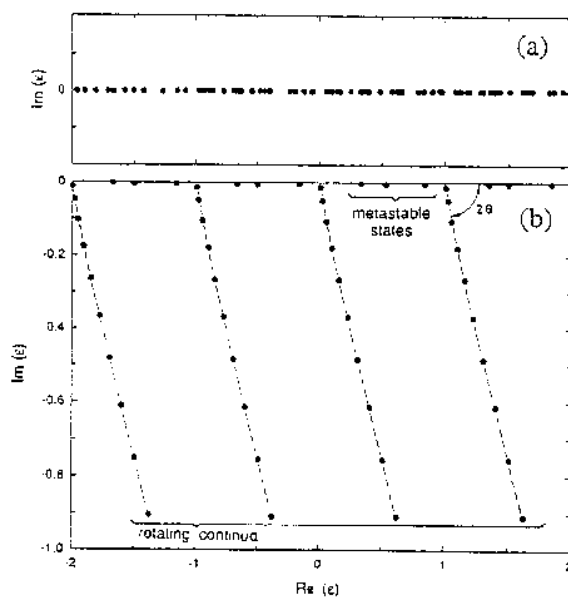


Abbildung 8.4: Quasienergiespektrum des Modellsystems (8.2) für $\lambda = 0.2$ ohne (a) und mit (b) komplexer Skalierung.

θ_{opt}	$E_m^{(0)}$	E_R	Γ	τ/T
0.44	-1.500	-1.50278	$1.214 \cdot 10^{-5}$	~ 13110
0.46	-0.667	-0.665703	$1.08894 \cdot 10^{-2}$	~ 15
0.35	-0.167	-0.163364	$0.5986 \cdot 10^{-2}$	~ 27

Tabelle 8.1: Resonanzenergien $E_R - i\Gamma/2$ des Rosen–Morse Systems ($\lambda = 0.2$, $\omega = 1$). θ_{opt} ist der optimale Rotationswinkel, $E_m^{(0)}$ sind die Bindungsenergien der drei gebundenen Zustände des feldfreien Systems und τ/T ist die Lebensdauer in Einheiten der Feldperiode $T = 2\pi$.

werden jedoch die Kontinua (das Kontinuum des feldfreien Systems modulo $\hbar\omega$) weit nach unten in die komplexe Ebene gedreht (Bild (b)) und die Resonanzen werden freigelegt.

In den numerischen Rechnungen wurden 50 Basisfunktionen (in diesen Fall einfache Wellenfunktionen eines Kastenpotentials) und sechs Zerfallskanäle $-3 \leq n \leq 3$ benutzt. Die drei Resonanzen aus dem mittleren Kanal (sie sind wegen der numerischen Abschneideeffekte die genauesten) sind in der Tabelle 8.1 aufgelistet (die stabilste Resonanz ist dabei um $\hbar\omega$ nach unten verschoben, um die Zusammenhang zu den Bindungsenergien $E_m^{(0)}$ des feldfreien Systems zu verdeutlichen).

Man erhält also das folgende Bild: Die Zustände des feldfreien Potentials sind eingebettet in die Kontinua der um $n\hbar\omega$ verschobenen Potentiale, die n Photonen aus dem Feld aufgenommen haben. Mit angelegtem Feld ($\lambda > 0$) werden diese Zustände zu Resonanzen, die in diese Kontinua zerfallen können (siehe Abbildung 8.5).

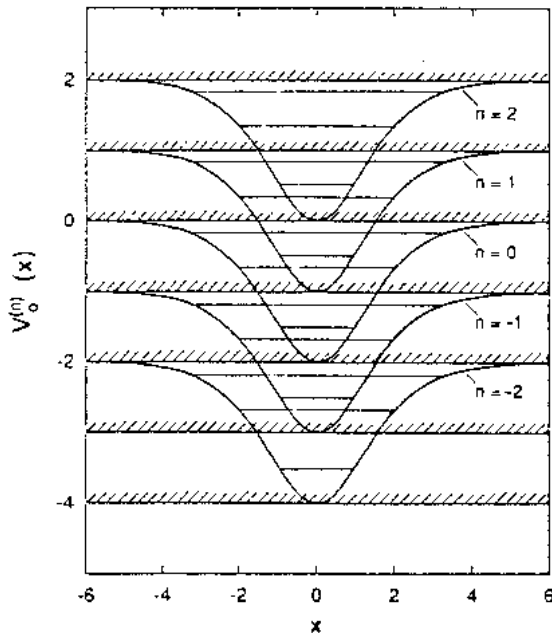


Abbildung 8.5: Die feldfreien Potentiale $V_n^{(0)}(x) = V^{(0)}(x) + n\hbar\omega$ für $n = -2, \dots, +2$.

Die Zerfallswahrscheinlichkeiten in diese Kanäle kann man aus den Quasienergiezuständen berechnen. Dazu die folgende Überlegung. Sei ψ_{res} ein solcher Resonanzzustand,

den wir durch Diagonalisierung der Floquet Matrix in der Basis $e^{in\omega t}$ erhalten haben, d.h.

$$\psi_{\text{res}}(x, t) = \sum_n \phi_n^{\text{res}}(x) e^{in\omega t}. \quad (8.6)$$

Wenn nun der Kanal n ein offener Kanal für den Zerfall ist, dann erwartet man für großes x ein Verhalten wie

$$\phi_n^{\text{res}}(x) \longrightarrow a_n \left[\frac{m}{\hbar k_n} \right]^{1/2} e^{ik_n x \exp(i\theta)}, \quad (8.7)$$

mit $k_n = [2m(E_{\text{res}} + n\hbar\omega)]^{1/2}/\hbar$. Der Faktor $(m/\hbar k_n)^{1/2}$ normiert auf eine Stromdichte von eins. Die Amplitude a_n gibt ein Maß für die Wahrscheinlichkeit des Zerfalls. Es ist zweckmäßig, die energieartige Größe

$$\Gamma_n = |a_n|^2 \hbar \quad (8.8)$$

einzuführen, die *partielle Breite*. Diese partiellen Breiten genügen der Summenregel

$$\sum_n \Gamma_n = \Gamma_{\text{res}}, \quad (8.9)$$

d.h. die Summe der Wahrscheinlichkeit der einzelnen Zerfälle ist gleich der Gesamtzerfallswahrscheinlichkeit des Resonanzzustandes, eben der Breite Γ_{res} .

Numerisch erhält man für unser Modellsystem durch Auswertung von

$$\Gamma_n = \lim_{x \rightarrow \infty} |\phi_n^{\text{res}} g_n(x)|^2 \hbar \quad (8.10)$$

mit $g_n(x) = \left[\frac{\hbar k_n}{m} \right]^{1/2} e^{-ik_n x \exp(i\theta)}$ für $\lambda = 0.2$ die Resultate $\Gamma_1 = 0.0107$ und $\Gamma_2 = 0.00019$ für die Zerfälle des ersten angeregten Resonanzzustandes bei $E_{\text{R}} = -0.665703$ durch Aufnahme eines oder zweier Photonen mit Energie $\hbar\omega = 1$ aus dem Feld. Die partiellen Breiten summieren zu 0.0109, was mit der Gesamtbreite von 0.0108894 aus Tabelle 8.1 übereinstimmt.

Weiterhin ist es möglich aus diesem Ansatz des Zerfalls eines Resonanzzustandes die Energieverteilung der auslaufenden Teilchen zu berechnen. Die Herleitung findet man in der Literatur⁴. Man erhält das einfache Resultat

$$P_\alpha(E) = \frac{1}{2\pi} \sum_{n \geq n_0} \frac{\Gamma_n^{(\alpha)}}{|E - [E_\alpha^{(0)} + \Delta_\alpha + n\hbar\omega - i\Gamma_\alpha/2]|^2}. \quad (8.11)$$

Dabei ist E_α die komplexe Resonanzenergie mit Breite Γ_α , deren Position (der Realteil) um Δ_α von der Lage eines gebundenen Zustandes $E_\alpha^{(0)}$ des feldfreien Systems verschoben ist (meist numeriert man die Resonanzzustände wie im feldfreien Fall). n_0 ist die minimale Anzahl der Photonen, die für den Übergang erforderlich sind. Die partiellen Breiten summieren zu der Gesamtbreite

$$\Gamma_\alpha = \sum_{n \geq n_0} \Gamma_n^{(\alpha)}. \quad (8.12)$$

⁴F. Bensch, H. J. Korsch, N. Moiseyev, Phys. Rev. A 43 (1991) 5145.

Wir erwarten also eine Folge von Lorentz Peaks gleicher Breite Γ_α mit Abstand $\hbar\omega$, deren Position um Δ_α gegenüber der Lage des Grundzustandes verschoben ist (man kann argumentieren, dass dies für den Grundzustand in der Regel eine Absenkung ist, also ein Rotverschiebung bei den Spektren). Das Gewicht der einzelnen Peaks ist gegeben durch die partielle Breite. Abbildung 8.6 zeigt ein auf diese Weise gewonnenes ATI Spektrum, das die wesentlichen Eigenschaften der experimentellen Spektren wiedergibt (vgl. Abbildung 8.2).

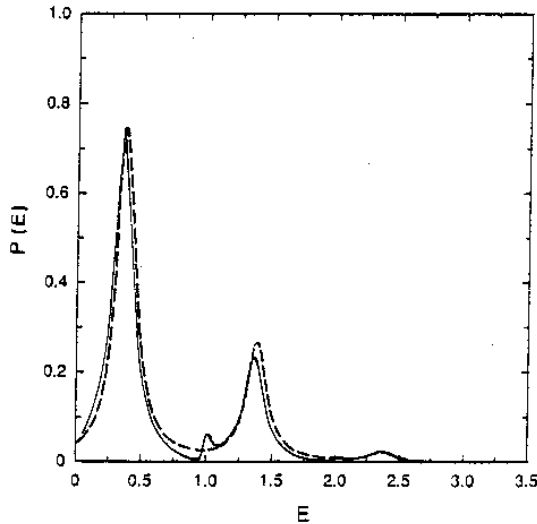


Abbildung 8.6: ATI Spektren berechnet aus der Wellenpaketpropagation (—) und aus den komplexen Floquet Resonanzen (- - -) für $\lambda = 0.8$.

Wenn man die Intensität des Feldes erhöht, also in unserem Modell den Parameter λ , so wächst der zweite Peak stärker als der erste (man kann zeigen, dass das Verhältnis der partiellen Breiten Γ_2/Γ_1 proportional zu λ^2 ist⁵). Bei einem kritischen Feldstärkeparameter λ_c sind die Peakhöhen invertiert und ein Übergang, der ein weiteres Photon erfordert, ist wahrscheinlicher als der einfachste Prozess. Abbildung 8.7 zeigt λ_c als Funktion der Frequenz ω des Feldes für den Anfangszustand $|\phi_1(0)\rangle$. Oberhalb der Kurve beobachtet man Inversion der Peakhöhen, d.h. $\Gamma_2 > \Gamma_1$.

8.2.2 Wellenpaketpropagation

In diesem Abschnitt soll kurz auf die Möglichkeiten einer Untersuchung von Multiphotonprozessen mit Hilfe einer Zeitpropagation der Wellenfunktion eingegangen werden⁶.

Abbildung 8.8 zeigt als Beispiel den Realteil der Wellenfunktion $\phi_1(x, t)$, propagiert mit der Anfangsbedingung $\phi_1(x, 0) = \phi_1^{(0)}(x)$, d.h. im ersten angeregten Zustand des feldfreien Systems, für $\lambda = 0.8$ nach zehn Zyklen ($t = 10T$). Zu dieser Zeit hat das Wellenpaket die Potentialregion schon fast vollständig verlassen (siehe Abbildung 8.8). Man beobachtet

⁵N. Moiseyev, F. Bensch, H. J. Korsch, Phys. Rev. A 42 (1990) 4045.

⁶Eine ausführliche Darstellung findet man in F. Bensch, H. J. Korsch, N. Moiseyev, J. Phys. B 24 (1991) 1321 und in F. Bensch, Dissertation Univ. Kaiserslautern, 1993.

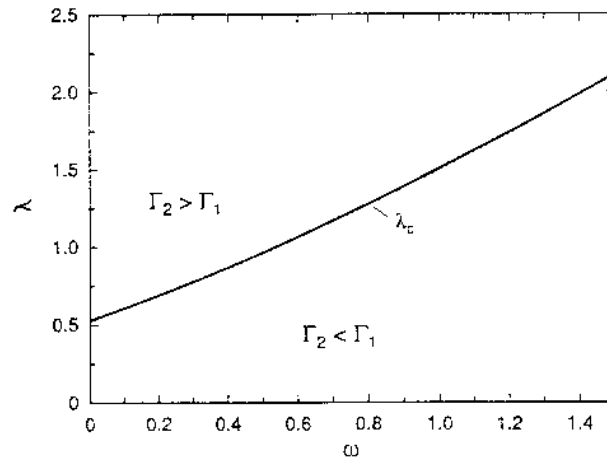


Abbildung 8.7: Kritischer Feldstärkeparameter λ_c als Funktion der Frequenz ω des Feldes für den Anfangszustand $\phi_1(0)$. Oberhalb der Kurve beobachtet man Inversion der Peakhöhen, d.h. $\Gamma_2 > \Gamma_1$.

die Ausbildung von Teilpaketen. Die Wellenzahlen in den Zentren dieser Pakete entsprechen den Positionen der ATI Peaks in Abbildung 8.6. Durch Fouriertransformation kann man die Energieverteilung bestimmen. Ein solches Spektrum ist in Abbildung 8.6 dargestellt und zeigt gute Übereinstimmung mit den Resonanzspektrum. Weitere Resultate zeigt Abbildung 8.9.

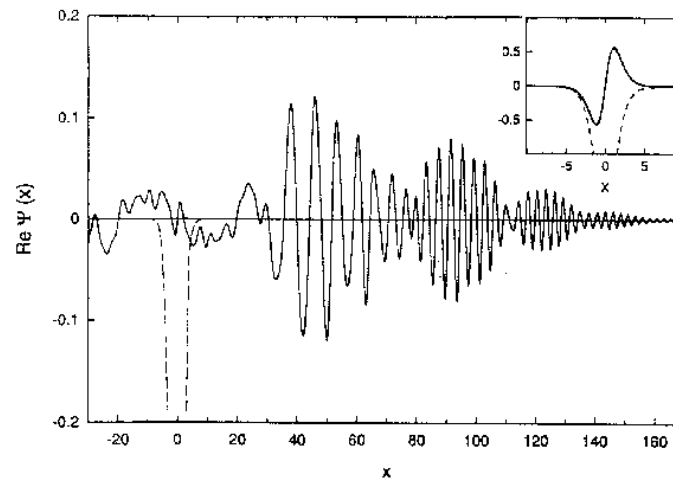


Abbildung 8.8: Realteil der Wellenfunktion $\phi_1(x, t)$ für $\lambda = 0.8$ nach zehn Zyklen ($t = 10T$). Die gestrichelte Kurve markiert den Potentialtopf.

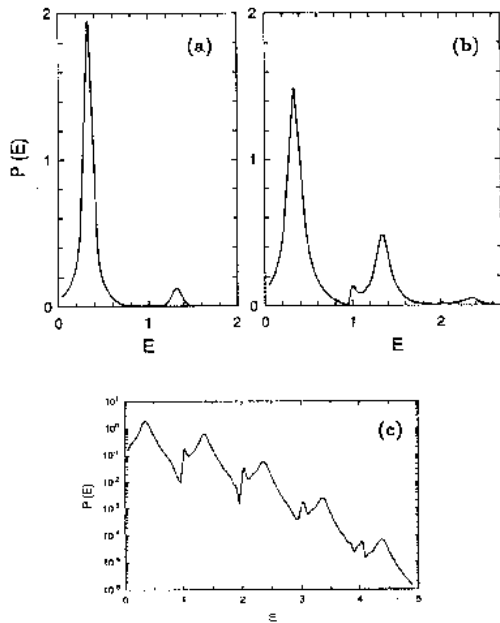


Abbildung 8.9: ATI Spektren des Anfangszustandes $|\phi_1^{(0)}\rangle$ für $\lambda = 0.4$ (a) und $\lambda = 0.8$ (b). Bild (c) zeigt (b) auf einer logarithmischen Skala.

Man kann das Zeitverhalten eines Zustandes verfolgen durch die Rekurrenzwahrscheinlichkeit

$$S(t) = |\langle \psi(t=0) | \psi(t) \rangle|^2, \quad (8.13)$$

also der Wahrscheinlichkeit für die Rückkehr des (normierten) Wellenpaketes zu seinem Ausgangszustand (vgl. auch Abbildung 7.14). In Abbildung 8.10 ist das numerisch ermittelte $S(t)$ für den Zerfall der Zustände $|\phi_1^{(0)}\rangle$ und $|\phi_2^{(0)}\rangle$ für $\lambda = 0.2$ und $\lambda = 0.4$ dargestellt. Man beobachtet eine exponentielle Abnahme überlagert von Oszillationen. Das exponentielle Abklingen beruht auf dem Zerfall, mehr und mehr wandert in den Außenbereich ohne Möglichkeit eine Rückkehr. Ermittelt man aus den Steigungen die Lebensdauern, so findet man Übereinstimmung mit den Breiten Γ_α der Resonanzzustände bei komplexen Energien. Die Oszillationen sind Rabi Oszillationen zwischen den Zuständen 0 und 2 (besonders ausgeprägt) oder dem Zustand 1 und einem Zustand direkt an der Kontinuumsschwelle.

Zum Abschluß soll in Abbildung 8.11 noch der zeitliche Aufbau der ATI Spektren illustriert sein.

8.2.3 Ein Zweizustandsmodell

Um die Dynamik des Systems genauer zu verstehen wollen wir es einmal in einer einfachen Zweizustandsnäherung untersuchen. Wenn sich das System zur Zeit $t = 0$ im Grundzustand φ_0 des feldfreien Systems H_0 befindet, dann erwartet man (neben dem langsamen Zerfall) zunächst eine Bevölkung des Zustandes φ_2 . Der Zustand φ_1 hat andere Parität. Wir reduzieren daher die volle Dynamik auf die beiden Zustände φ_0 und φ_2 . Da dies gebundene Zustände sind, ist es klar, dass dabei der Zerfall in das Kontinuum (zunächst) vernachlässigt wird.

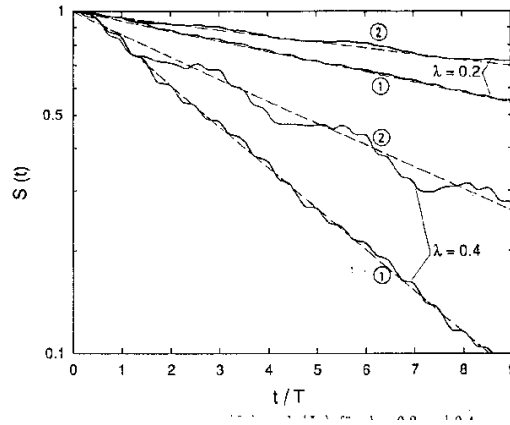


Abbildung 8.10: Rekurrenzwahrscheinlichkeiten $S(t)$ für den Zerfall der Zustände $|\phi_1^{(0)}\rangle$ und $|\phi_2^{(0)}\rangle$ für $\lambda = 0.2$ und $\lambda = 0.4$.

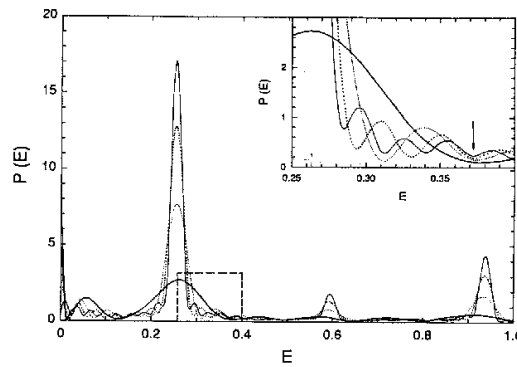


Abbildung 8.11: Zeitlicher Aufbau des ATI Spektrums für $\lambda = 0.85$, $\omega = 0.34$ und $t = 3T$ (—), $t = 6T$ (...), $t = 9T$ (...), $t = 12T$ (—). Der Ausschnitt zeigt eine Vergrößerung des markierten Rechtecks.

Im Zweizustandsmodell hat der Hamilton Operator die Form

$$H = \begin{pmatrix} E_0 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix} + \lambda \cos \omega t \begin{pmatrix} V_{00} & V_{02} \\ V_{20} & V_{22} \end{pmatrix} \quad (8.14)$$

mit den Matrixelemente $V_{jk} = \langle \varphi_j | V_0 | \varphi_k \rangle$.

Zur Lösung der dynamischen Gleichungen gehen wir ähnlich vor wie in Abschnitt 3.2, nur ist die Situation hier etwas komplizierter, denn auch die Diagonalelemente sind zeitabhängig. Die Bewegungsgleichungen

$$i\hbar \dot{\vec{a}} = H \vec{a} \quad (8.15)$$

transformiert man mit der Transformation $\vec{c} = U\vec{a}$.

$$U = \begin{pmatrix} U_{00} & 0 \\ 0 & U_{22} \end{pmatrix}, \quad U_{kk} = \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t (E_k + \lambda V_{kk} \cos \omega t) dt \right\} \quad (8.16)$$

auf die Form

$$i\hbar \dot{\vec{c}} = U H^{\text{nd}} U^\dagger \vec{c} = H' \vec{c}. \quad (8.17)$$

Durch diese Transformation werden die Diagonalelemente beseitigt; H^{nd} bezeichnet die Matrix H ohne Diagonalelemente und H' hat die Form

$$H' = \begin{pmatrix} 0 & H'_{02} \\ H'_{20} & 0 \end{pmatrix}. \quad (8.18)$$

Mit den Abkürzungen

$$\omega_{jk} = \frac{1}{2}(E_j - E_k), \quad v_{jk} = \frac{1}{\hbar\omega}(V_{jj} - V_{kk}) \quad (8.19)$$

und der Fourier-Entwicklung

$$e^{iu \sin \omega t} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(u) e^{in\omega t} \quad (8.20)$$

(die $J_n(u)$ sind die Bessel-Funktionen) erhält man für die Nichtdiagonalelemente von H'

$$H'_{jk} = \frac{\lambda V_{jk}}{2} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left\{ J_{n-1}(\lambda v_{jk}) + J_{n+1}(\lambda v_{jk}) \right\} e^{i(\omega_{jk} - n\omega)t}. \quad (8.21)$$

Eine Lösung in geschlossener Form erhält man mit einer leicht abgewandelten Form der Rotating-Wave-Approximation: Man berücksichtigt in der Reihe nur den Term mit der langsamsten Oszillation, also den mit

$$\Delta\omega | \omega_{jk} - n\omega | = \text{Minimum}. \quad (8.22)$$

Hier ist $\omega = 1$ und $\omega_{20} = -1/6 - (-3/2) = 4/3$, also nehmen wir nur den Term $n = 1$ mit, Dann ist $\Delta\omega = 1/3$ und es folgt

$$H'_{20} = H'^*_{02} = \frac{\lambda V_{20}}{2} \left\{ J_0(\lambda v_{20}) + J_2(\lambda v_{20}) \right\} = -\frac{1}{2} R_{20} e^{i\Delta\omega t} \quad (8.23)$$

und ($\hbar = 1$)

$$\begin{pmatrix} \dot{c}_0 \\ \dot{c}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{i}{2} R_{20} e^{-i\Delta\omega t} \\ \frac{i}{2} R_{20} e^{i\Delta\omega t} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix}. \quad (8.24)$$

Als letzten Schritt berücksichtigen wir jetzt noch die Zerfallsmöglichkeiten der beiden Zustände, indem wir einfach die E_ν durch die komplexen Werte $E_\nu - i\Gamma_\nu/2$ ersetzen, d.h. aus der letzten Gleichung wird

$$\begin{pmatrix} \dot{c}_0 \\ \dot{c}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\Gamma_0/2 & \frac{i}{2} R_{20} e^{-i\Delta\omega t} \\ \frac{i}{2} R_{20} e^{i\Delta\omega t} & -\Gamma_2/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix}. \quad (8.25)$$

Das liefert dann in der bekannten Weise (vgl. Abschnitt 3.2 einen geschlossenen Ausdruck für die Besetzungswahrscheinlichkeit $P_2(t)$ des oberen Zustands ($P_2(0) = 0$):

$$P_2(t) = \frac{R_{20}^2}{\delta^2 + (\gamma/2)^2 + R_{20}^2} \exp\left(-\frac{\gamma_{20}t}{2}\right) |\sin(\Omega t/2)|^2, \quad (8.26)$$

also eine gedämpfte Oszillation mit Dämpfungskonstanten

$$\gamma_{20} = (\Gamma_0 + \Gamma_2)/(2\hbar) \quad , \quad \gamma = (\Gamma_0 - \Gamma_2)/(2\hbar). \quad (8.27)$$

Die Verstimmung und die Rabi-Frequenz sind gegeben durch

$$\delta = \omega_{20} - \omega \quad , \quad \Omega = \sqrt{(\delta - i\gamma/2)^2 + R_{20}^2}. \quad (8.28)$$

Abbildung 8.12 zeigt einen Vergleich der Zweizustandsnäherung mit exakten numerischen Daten für $\lambda = 0.4$ (nach F. Bensch *et al.* (siehe Fußnote 6 auf Seite 101)). Man sieht, dass das Zweizustandsmodell die Zeitentwicklung korrekt beschreibt.

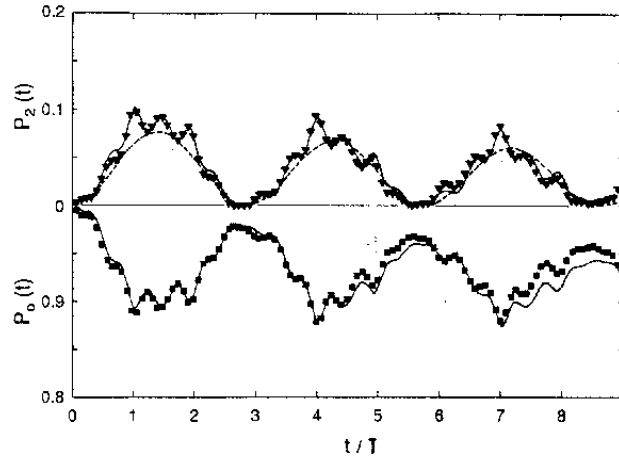


Abbildung 8.12: Rabi-Oszillationen der Besetzungszahlen $P_0(t)$ und $P_1(t)$ der Zustände 0 und 2 für $\lambda = 0.4$. Die Punkte markieren Daten aus der exakten Zeitpropagation, die durchgezogenen Kurven sind die Resultate des Zweizustandsmodells und die gestrichelten Kurven die geschlossenen Ausdrücke in der Rotating-Wave-Approximation (8.26).

Kapitel 9

Erzeugung hoher Harmonischer (HHG)

In Experimenten mit Gasen (z.B. Edelgasen), die mit intensiven Laserfeldern einer Frequenz ω (typische Intensitäten sind $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ und Wellenlängen bei 1000nm) wechselwirken, hat man die Emission von Strahlung mit wesentlich kürzeren Wellenlängen beobachtet, die Erzeugung *Höherer Harmonischer*¹. Dies ist ohne Zweifel von großem Interesse, z.B. in Hinblick auf mögliche Laser im Röntgenbereich.

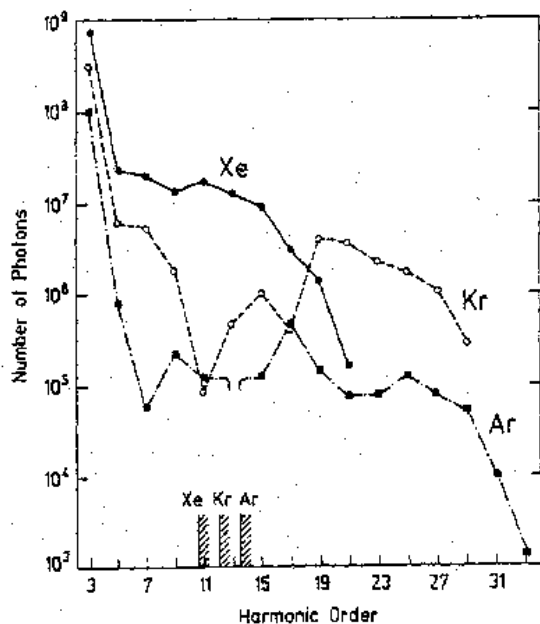


Abbildung 9.1: Anzahl der emittierten Photonen mit einer Frequenz Ω für Xe, Kr und Ar bei Anregung mit 1064nm und $3 \cdot 10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ als Funktion von Ω/ω im Experiment (siehe Fußnote). Beobachtet wird eine diskrete Verteilung bei ungeraden Vielfachen von ω .

¹Einen Überblick der Arbeiten über die Erzeugung hoher Harmonischer findet man in A. L'Huillier, K. J. Schafer, K. C. Kulander, J. Phys. B24 (1991) 3315.

Abbildung 9.1 zeigt ein Beispiel einer solchen Emission (aus 1). Dort ist die Anzahl der mit Frequenz Ω emittierten Photonen als Funktion des Frequenzverhältnisses Ω/ω zur eingestrahlichten Laserfrequenz aufgetragen. Man findet eine Vervielfachung der Frequenz bis zu einem Faktor 30. In kurzer Zeit war man in der Lage durch Abänderung der experimentellen Bedingungen eine Frequenzvervielfachung um den Faktor 100 und höher zu erreichen² (siehe Abbildung 9.2).

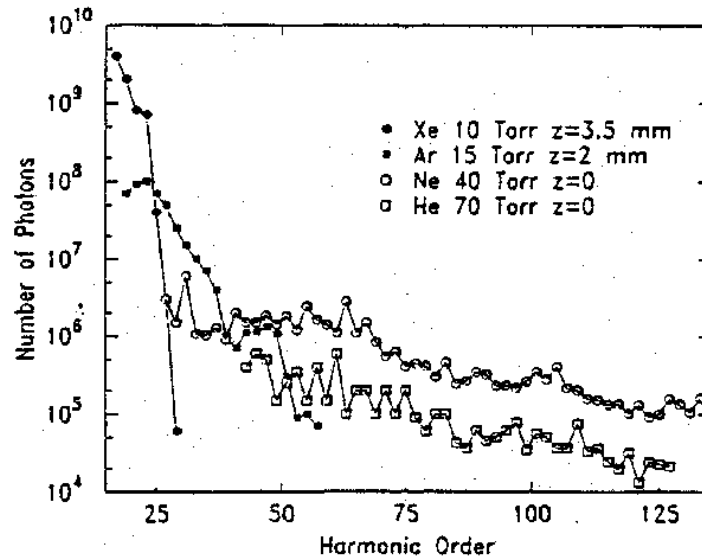


Abbildung 9.2: Wie Abbildung 9.1, jedoch unter anderen Bedingungen (siehe Fußnote).

Die folgenden Punkte charakterisieren die experimentellen Befunde:

- Nur harmonische Vielfache $\Omega = n\omega$ der Einstrahlungsfrequenz ω werden abgestrahlt.
- n kann groß sein ($n \approx 30, \dots 100, \dots$ wurden beobachtet).
- n ist ungerade.
- Die Anzahl der emittierten Photonen mit $\Omega = n\omega$, $n = 0, 1, \dots$, zeigt:
 - einen exponentiellen Abfall bei kleinen Zeiten;
 - ein mehr oder weniger ausgedehntes Plateau;
 - einen exponentiellen Abfall für große Zeiten.
- In manchen Fällen werden auch Subharmonische beobachtet.

²A. L'Huillier, P. Balcao, Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 774

Ein ähnliches Bild fand man auch bei der Anregung von Molekülen.

Die Erklärung dieser Beobachtungen ist vergleichsweise einfach. Nach anfänglichen Vermutungen anderer Art (kohärente Emission vieler Atome, oder vieler Elektronen,...) hat sich herausgestellt, dass man es hier in der Hauptsache mit einem Ein-Atom- und sogar einem Ein-Elektron-Problem zu tun hat, das in seinen wesentlichen Zügen beschrieben werden kann als ein Übergang, wie er bei der Mehrphotonen Ionisation im vorangehenden Kapitel zur Above Threshold Ionisation (ATI) auftrat. Wir haben gesehen, dass dort ein Resonanzzustand des Atoms im Laserfeld angeregt wurde, der in die multiplen Kontinua des um $n\hbar\omega$ verschobenen Systems eingebettet ist und in die er dann zerfallen kann unter Emission eines Elektrons mit kinetischer Energie $\approx n\hbar\omega - E_{\text{ion}}$. Es ist jedoch auch ein Übergang des Systems in einen gebundenen Zustand möglich unter Emission eines Photons der Energie $n\hbar\omega$. Genau dieser Prozess ist verantwortlich für die Erzeugung hoher Harmonischer (vgl. Abbildung 9.3).

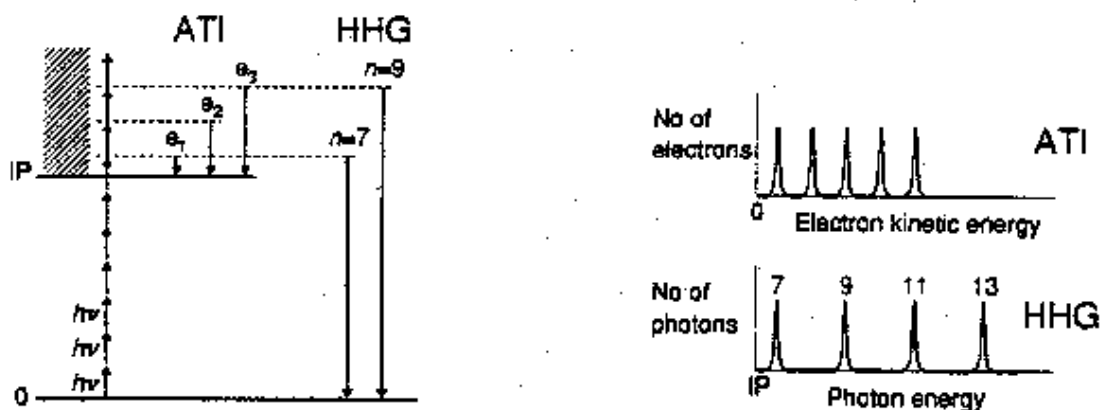


Abbildung 9.3: Schematische Darstellung von Multiphoton Ionisation (ATI) und Erzeugung hoher Harmonischer (HHG).

Die Abstrahlung eines atomaren Elektrons im Zustand $|\psi(t)\rangle$ läßt sich beschreiben durch den Erwartungswert des zeitabhängigen Dipolmoments $\hat{\mu}$

$$D(t) = \langle \psi(t) | \hat{\mu} | \psi(t) \rangle. \quad (9.1)$$

Die Wahrscheinlichkeit für die Emission von Strahlung der Frequenz Ω ist dann gegeben durch die Fouriertransformierte

$$\sigma(\Omega) \sim \left| \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\Omega t} D(t) dt \right|^2. \quad (9.2)$$

9.1 Das Rückstreu-Modell

Eine ganz einfache Modellierung der Strahlungsemission liefert das folgende Modell, das auf K. C. Kulander zurückgeht. Wir folgen hier der ausführlichen Darstellung von W. Becker *et al.*³. In dieser Arbeit findet man eine wesentliche Erweiterung des Modells im Rahmen der Quantenmechanik; wir beschränken und hier aber auf rein klassische Betrachtungen.

Zunächst unterstellen wir, dass ein einzelnes Elektron an dem Vorgang beteiligt ist (was nicht selbstverständlich ist!); außerdem berücksichtigen wir nur einen einzigen Freiheitsgrad. Das Elektron ist anfangs im Grundzustand (Ionisierungsenergie I_p). Wenn auf das Elektron *nur* das oszillierende Feld

$$F = -eE \sin \omega t \quad (9.3)$$

wirkt, so gilt für die Geschwindigkeit

$$m\dot{v} = eE \sin \omega t \quad \Longrightarrow \quad v(t) = -\frac{eE}{m\omega} \cos \omega t + a \quad (9.4)$$

(mit $a = v(t_0) + \frac{eE}{m\omega} \cos \omega t_0$), und die Bahn ist durch

$$x(t) = -\frac{eE}{m\omega^2} \sin \omega t + at + b \quad (9.5)$$

gegeben (mit $b = x(t_0) + \frac{eE}{m\omega^2} \sin \omega t_0$). Es ergibt sich also die Überlagerung einer gerichteten Bewegung ($x \sim at$) und einer 'Zitterbewegung' im Takt des Feldes mit der frequenzabhängigen Amplitude $eE/(m\omega^2)$. Die mittlere kinetische Energie dieser Zitterbewegung ist

$$U_p = \langle E_{\text{kin}} \rangle = \frac{1}{2} \frac{e^2 E^2}{m\omega^2} \langle \cos^2 \omega t \rangle = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}, \quad (9.6)$$

das sogenannte *ponderomotive Potential*.

Empirisch wurde in den Experimenten die folgende Relation gefunden: Das Plateau der HHG-Spektren erstreckt sich bis zu einer maximalen Energie der emittierten Photonen E_{max} , die wie

$$E_{\text{max}} \approx I_p + 3U_p \quad (9.7)$$

von den wesentlichen Systemparametern abhängt. Wie kann man das erklären?

Das Rückstreu-Modell nimmt an, dass das Elektron durch die Feldbarriere tunnelt und zur Zeit t_0 mit einer Geschwindigkeit $v(t_0) = 0$ aus der Barriere austritt. Danach vernachlässigt man die Wechselwirkung mit dem ionisierten Atom und propagiert nur in dem Wechselfeld. Wenn man $x(t_0) = 0$ annimmt (Begründung z.Zt. noch unklar), dann ist die Position des Elektrons zu einer Zeit t_1 durch

$$x(t_1) = -\frac{eE}{m\omega^2} (\sin \omega t_1 - \sin \omega t_0) + \frac{eE}{m\omega} (t_1 - t_0) \cos \omega t_0 \quad (9.8)$$

³W. Becker., S. Long, J. K. Mciver, Phys. Rev. A 50 (1994) 1540.

gegeben. Die Photonenemission findet in der Nähe des Kerns statt, also muss sich das Elektron durch die oszillierende Bewegung wieder zurück bewegt haben. Die Emissionzeit t_1 ist also näherungsweise durch $x(t_1) = 0$ festgelegt, eine Gleichung, die natürlich mehrere Lösungen $t_1 = t_1(t_0)$ haben kann. Bei dieser Emission wird die kinetische Energie des Elektrons und die Ionisationsenergie I_p frei.

Das weitere Vorgehen ist klar. Man bestimmt aus $E_{\text{kin}}(t_1) = E_{\text{kin}}(t_1(t_0))$ durch die Bedingung $dE_{\text{kin}}/dt = 0$ die maximal mögliche Energie (natürlich für alle möglichen t_1) und erhält nach längerer und z.T. numerischer Rechnung $E_{\text{max}} = 3.173 U_p$ und damit eine Bestätigung des experimentellen Befundes.

9.2 Ein Modellsystem

Wir beschreiben die Dynamik eines Elektrons in einem Laserfeld durch den Hamilton-Operator⁴

$$\hat{H}(x, t) = \hat{H}_0(x) - \epsilon_0 \hat{x} \cos(\omega t) = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\hat{x}) - \epsilon_0 \hat{x} \cos(\omega t). \quad (9.9)$$

(Wir verwenden atomare Einheiten, in denen Masse und \hbar den Wert eins haben.) Das Dipolmoment ist in dieser Darstellung (man spricht auch von der *Längeneichung*) gegeben durch $\hat{\mu} = \hat{x}$. Es ist nützlich, an dieser Stelle auf zwei andere oft benutzte Darstellungen hinzuweisen. In der *Impuls-* oder *Strahlungseichung* hat der Hamilton Operator nach einer Transformation

$$|\psi\rangle \longrightarrow |\tilde{\psi}\rangle = e^{-\frac{i}{\hbar} \epsilon_0 x \cos \omega t} |\psi\rangle \quad (9.10)$$

die Form

$$\hat{H}(x, t) = \frac{1}{2m} \left(\hat{p} + \frac{\epsilon_0}{m\omega} \sin(\omega t) \right)^2 + V(\hat{x}). \quad (9.11)$$

Sehr nützlich ist es, zusätzlich noch auf ein zeitlich bewegtes Koordinatensystem zu transformieren, indem man die Dynamik des Elektrons relativ zu einer klassischen Bewegung allein im Strahlungsfeld beschreibt:

$$x \longrightarrow x - x_{\text{cl}} \quad , \quad x_{\text{cl}} = -\frac{\epsilon_0}{m\omega^2} \cos(\omega t) = -x_m \cos(\omega t). \quad (9.12)$$

Dies ist die *Kramers-Henneberger Transformation*⁵, in der der Hamilton-Operator besonders einfach wird:

$$\hat{H}(x, t) = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V\left(x + \frac{\epsilon_0}{m\omega^2} \cos(\omega t)\right). \quad (9.13)$$

Dieser Darstellung liefert also eine Bewegung in einem lateral oszillierenden Potential. Es ist für das Verständnis der Dynamik wichtig, dass sich das System vorwiegend in den Extremsituationen, also bei $x \pm x_m$, befindet. mit relativ schnellen Übergängen.

⁴siehe N. Ben-Tal, N. Moiseyev, R. Kosloff, C. Cerjan, J. Phys. B26 (1993) 1445.

⁵H. A. Kramers (1950; W. C. Henneberger, Phys. Rev. Lett. 21 (1968) 838.

Die einzelnen Darstellungen ermöglichen unterschiedliche approximative Zugänge, z.B. liefert die Kramers–Henneberger Darstellung (9.13) nach Fourier Entwicklung des zeitperiodischen Potentials

$$V(x, t) = \sum_k V_k(x) e^{-ik\omega t}, \quad V_k(x) = \frac{1}{T} \int_0^T V(x, t) e^{ik\omega t} dt \quad (9.14)$$

in nullter Näherung eine Bewegung in dem Potential $V_0(x)$. Falls $V(x)$ ein Potential mit einem Minimum bei $x = 0$ ist, besitzt $V_0(x)$ zwei Minima bei $\approx \pm x_m$.

In einer Modellstudie wurde ein Gauß–Potential

$$V(x) = -V_0 e^{-(x/x_0)^2}, \quad (9.15)$$

benutzt, dessen Parameter V_0 und x_0 so angepasst sind, dass die Bindungsenergien der beiden tiefsten Zustände des Xe Atoms wiedergegeben werden ($E_0 = -0.4451$, $E_1 = -0.1400$, $E_2 = -0.00014$) und ein Laserfeld mit einer Frequenz von $\omega = 0.095$ (damit ist $E_1 - E_0 \approx 3\hbar\omega$) und einer Intensität $I_0 = (c/8\pi) \epsilon_0^2$ im Bereich $10^{13} - 10^{15} \text{W/cm}^2$. Damit wurde die zeitabhängige Schrödingergleichung (9.9) numerisch gelöst, das zeitabhängige Dipolmoment $D(t)$ berechnet sowie das Emissionsspektrum (9.2). Das Resultat in Abbildung 9.4 zeigt ein Spektrum, das in allen wesentlichen Strukturen mit den experimentellen Befunden der HHG Spektren übereinstimmt. Insbesondere findet man Maxima bei den ungeraden Vielfachen der eingestrahelten Frequenz und das Plateau.

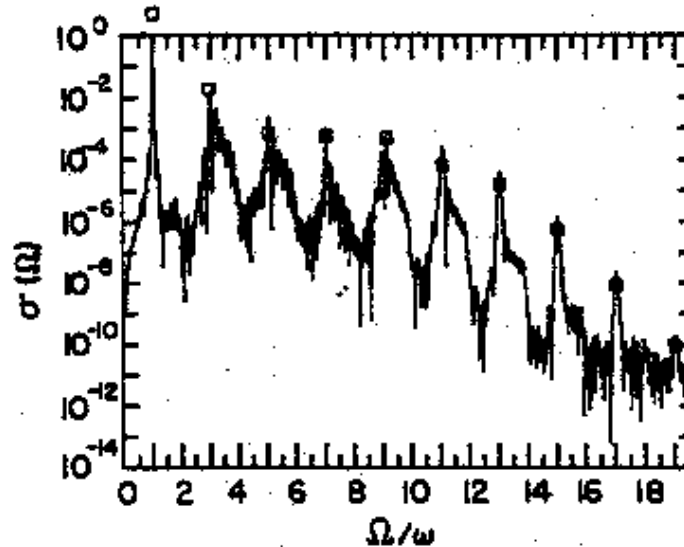


Abbildung 9.4: HHG Spektrum für das Modellsystem mit einer Feldintensität $I_0 = 21 \cdot 10^{13} \text{W cm}^2$ (nach N. Ben-Tal *et al.* (siehe Fußnote auf Seite 111)).

9.3 HHG Spektren und Floquet Resonanzen

In diesem Abschnitt soll eine approximative Analyse der Emissionsspektren mit Hilfe der Floquet Resonanzen gegeben werden. Wie in dem Fall der ATI Resonanzen kombiniert man die Floquet Theorie mit einer komplexen Skalierung. Entwickelt man die (komplex skalierte) Wellenfunktion nach den Quasienergiezuständen

$$\psi(xe^{i\theta}) = \sum_{\alpha} c_{\alpha} e^{-i\epsilon_{\alpha} t} u_{\alpha}(xe^{i\theta}, t) \quad (9.16)$$

mit $\epsilon_{\alpha} = E_{\alpha} + \omega + i\Gamma_{\alpha}/2$, $k = 0, \pm 1, \dots$, so bleibt für größere Zeiten nur die langlebigste Resonanz übrig:

$$\psi(xe^{i\theta}) \longrightarrow \sim e^{-iE_{\text{res}} t} e^{-\Gamma_{\text{res}} t} u_{\alpha}(xe^{i\theta}, t). \quad (9.17)$$

Wenn man nur diese eine Resonanz berücksichtigt, ergibt sich das Frequenzspektrum als

$$\sigma(\Omega) \sim \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-i\Omega t} \langle u_{\text{res}}(t) | \hat{\mu} | u_{\text{res}} \rangle_c \right|^2. \quad (9.18)$$

Setzt man hier die Fourier Entwicklung

$$u_{\text{res}}(xe^{i\theta}, t) = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{ik\omega t} u_k^{\text{res}}(xe^{i\theta}) \quad (9.19)$$

der T -periodischen Quasienergiezustände ein, so erhält man mit $\int_0^T e^{i(k-k')\omega t} dt = T\delta_{k,k'}$ das Ergebnis

$$\sigma(\Omega = n\omega) \sim \left| \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \langle u_k^{\text{res}} | \hat{\mu} | uk + n^{\text{res}} \rangle_c \right|^2, \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (9.20)$$

und $\sigma(\Omega) = 0$ für $\Omega \neq n\omega$. Wegen der Symmetrie des Hamilton-Operators bezüglich der Transformation

$$x \longrightarrow -x, \quad t \longrightarrow t + T/2 \quad (9.21)$$

haben die $u_k^{\text{res}}(x, t)$ gerade oder ungerade Symmetrie. Der Dipoloperator ist ungerade ($\mu \sim x$) und folglich ist $\langle u_k^{\text{res}} | \hat{\mu} | uk + n^{\text{res}} \rangle_c = 0$ für gerades n , da dann u_k und u_{k+n} die gleiche Parität haben. Es folgt also die Auswahlregel

$$\Omega = n\omega, \quad n \text{ ungerade}. \quad (9.22)$$

Abbildung 9.5 zeigt die komplexen Resonanzpole in der komplexen $\lambda_\alpha = e^{-i\epsilon_\alpha}$ -Ebene (das komplex rotierte Kontinuum erscheint hier wegen der Entwicklung nach einer endlichen Basis als diskretisierter String von Punkten). Im rechten Teil der Abbildung ist das aus Gleichung (9.20) wiedergegeben, das das Plateau und die alleinige Population der ganzzahligen Harmonischen wiedergibt. Die geradzahligen Vielfachen von ω sind stark unterdrückt, aber nicht Null wegen der endlichen Basis in den numerischen Rechnungen. Resultate für eine anderer Intensität sind in Abbildung 9.4 eingetragen und zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit den Wellenpaket-Rechnungen.

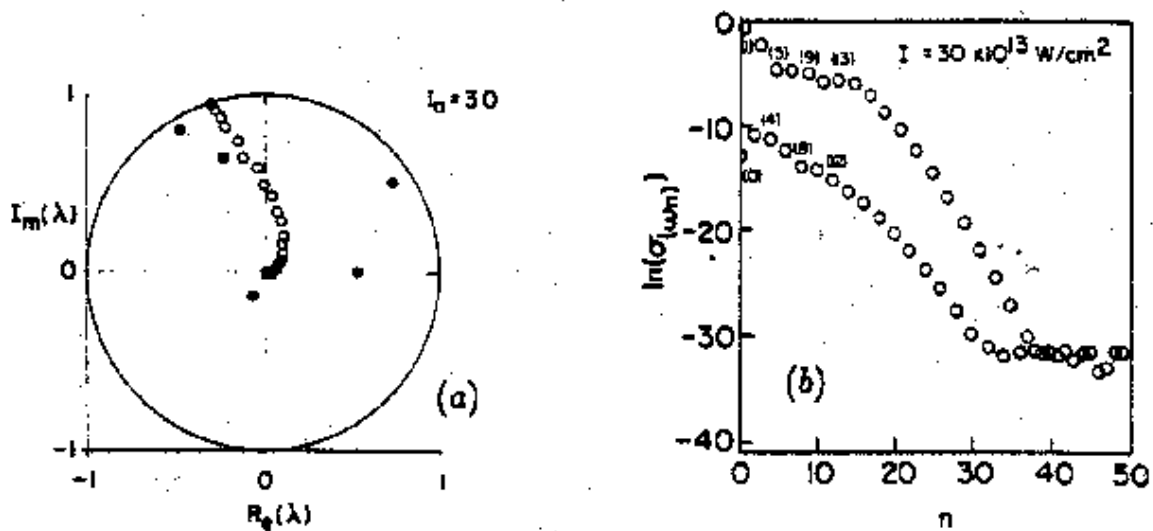


Abbildung 9.5: Komplexe Quasienergie Resonanzen λ_α und HHG Spektrum für das Modellsystem mit einer Feldintensität $I_0 = 30 \cdot 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ (nach N. Ben-Tal *et al.* (siehe Fußnote 4 auf Seite 111).

Kapitel 10

Kontrolle von Quantenprozessen

In diesem Kapitel soll eine kurze Einführung in ein sehr wichtiges Gebiet aktueller Forschung gegeben werden, der gezielten externen Kontrolle quantenmechanischer Prozesse. Als anschauliches einfaches Beispiel wollen wir die Anregung eines (anharmonischen) Oszillators durch ein Laserfeld diskutieren, etwa zur Beschreibung der Vibrationsanregung eines zweiatomigen Moleküls. Die theoretischen Überlegungen sind aber allgemeiner Natur. Unsere Aufgabe sei es, das Molekül aus dem Grundzustand in einen vorgeschriebenen Vibrationszustand n zu bringen, und zwar mit möglichst hundertprozentiger Effizienz.

Zur Verfügung steht uns beispielsweise ein Laserfeld mit einer zeitlich konstanten (aber in einem gewissen Bereich wählbaren) Frequenz ω und einer kontrollierbaren Amplitude, zum Beispiel ein Puls, der bei der Zeit $t = 0$ beginnt, bis zu einem maximalen Wert f_{\max} ansteigt, diesen Wert eine gewisse Zeit beibehält und dann wieder auf Null zur Zeit $t = T_p$ abfällt. Die Zeit T_p ist die Pulsdauer. Eine einfache Art, einen solchen ‘Puls’ auf ein Molekül zu realisieren, wäre zum Beispiel das Durchfliegen eines Atoms durch einen Laserstrahl.

Ein solcher Puls kann also beispielsweise beschrieben werden durch

$$f(t) \cos \omega t \tag{10.1}$$

mit einer konstanten¹ Frequenz ω und einer Pulsamplitude

$$f(t) = \begin{cases} f_{\max} & (0 < t < T_p) \\ 0 & (\text{sonst}) \end{cases} \tag{10.2}$$

(ein so genannter π -Puls) oder ein glatter Puls, der in einem definierten Zeitintervall stetig und sogar differenzierbar bis zu einem Maximum ansteigt und dann wieder abfällt:

$$f(t) = \begin{cases} f_{\max} \sin^2(\pi t/T_p) & (0 < t < T_p) \\ 0 & (\text{sonst}) \end{cases} . \tag{10.3}$$

¹Es gibt jedoch auch interessante Anwendungen von so genannten ‘*gechirpten*’ Pulsen, bei denen die Frequenz während des Pulses anwächst oder abfällt.

10.1 Zwei–Niveau Systeme: π –Pulse

In Abschnitt 3.2 haben wir im Rahmen der RWA das Zweizustandssystem (Energiedifferenz $E_2 - E_1 = \hbar\omega$) gelöst. Mit der Anfangsbedingung, dass sich das System zur Zeit $t = 0$ im Zustand 1 befindet, ergab sich für die Besetzungswahrscheinlichkeit des Zustandes 2 die Wahrscheinlichkeit

$$p_2(t) = \left(\frac{2\lambda}{\Omega}\right)^2 \sin^2 \frac{\Omega t}{2}. \quad (10.4)$$

(vgl. Gl. (3.34)) für ein konstantes $\lambda = \lambda_{\max}$, also für einen π –Puls. Dabei ist $\Omega = \sqrt{\delta^2 + 4\lambda_{\max}^2}$ die Rabi Frequenz und $\delta = \omega - \omega_0$ das Detuning. Man kann in dieser Näherung, d.h. also für nicht zu große Felder, die gestellte Aufgabe der Prozesskontrolle leicht lösen: Wählt man als Antriebsfrequenz $\omega = \omega_0$, so wird $\Omega = 2\lambda_{\max}$, und man erhält mit

$$p_2(t) = \sin^2 \lambda_{\max} t \quad (10.5)$$

den gewünschten vollständigen Transfer $p_2(T_p) = 1$ mit einer Amplitude

$$\lambda_{\max} = \pi(\ell + 1/2)/T_p, \quad \ell = 0, 1, \dots \quad (10.6)$$

Eine alternative Darstellung des gleichen Sachverhaltes basiert auf den Floquet Zuständen. Im Gegensatz zu der vorangehenden Behandlung ist dieser Ansatz aber weitaus flexibler.

Mit den Floquet Zuständen $|u_{\pm}(t)\rangle$ und den Quasienergien ϵ_{\pm} des Zweizustandssystems (vgl. Abschnitt 4.4) können wir einen beliebigen Zustandsvektor schreiben als

$$|\psi(t)\rangle = c_+ e^{-i\epsilon_+ t/\hbar} |u_+(t)\rangle + c_- e^{-i\epsilon_- t/\hbar} |u_-(t)\rangle \quad (10.7)$$

mit konstanten Koeffizienten c_{\pm} .

Wie oben erhalten wir in der RWA bei Abstimmung auf den Übergang, $\omega = \omega_0$

$$e^{-i\epsilon_{\pm} t/\hbar} |u_{\pm}(t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{\mp i\Omega t/2} \begin{pmatrix} \pm e^{-i\omega t/2} \\ e^{-i\omega t/2} \end{pmatrix} \quad (10.8)$$

mit $\Omega = 2\lambda_{\max}$. Die Anfangsbedingung

$$|\psi(0)\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (10.9)$$

erfüllt man mit $c_{\pm} = \pm 1/\sqrt{2}$, d.h. der Anfangszustand ist eine Linearkombination der beiden Floquet Zustände mit gleichen Gewichten. Mit wachsender Zeit sammeln die beiden Floquet Anteile unterschiedliche dynamische Phasen auf, die zu Interferenzen führen. Konstruktive Interferenz haben wir unter der Bedingung

$$\frac{1}{\hbar} (\epsilon_+ - \epsilon_-) T_p = \pi(2\ell + 1), \quad \ell = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (10.10)$$

Nun ist aber nach (4.61)

$$\epsilon_{\pm} = \frac{\hbar}{2}(\omega \pm \Omega) + k\hbar\omega \quad (10.11)$$

für ganzzahliges k , und damit

$$\epsilon_{+} - \epsilon_{-} = \hbar\omega = 2\hbar\lambda_{\max}. \quad (10.12)$$

Wir erhalten folglich für unseren optimalen π -Puls die Bedingung $\lambda_{\max} = \pi(\ell + 1/2)T_p$, in völliger Übereinstimmung mit (10.6).

10.2 Optimale Pulse

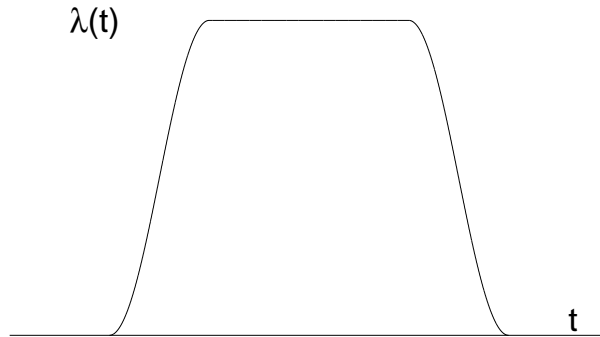


Abbildung 10.1: Adiabatische Veränderung der Pulsamplitude λ .

Bisher hatten wir einen Puls

$$f(t) = 2\hbar\lambda \cos \omega t = \hbar F \cos \omega t \quad (10.13)$$

angenommen, der während einer Zeit $0 < t < T$ wirkt (ein π -Puls). In diesem Abschnitt wollen wir eine langsame (‘adiabatische’) Variation von λ zulassen, durch die die Feldamplitude von dem Wert Null auf einen maximalen Wert λ_{\max} heraufgefahren und später wieder abgesenkt wird. Ein typisches Profil einer solchen Pulsflanke ist $\lambda_{\max} \sin^2(\pi t/2\tau)$. Abbildung 10.1 zeigt ein Beispiel einer solchen Pulsvariation.

Bei einer langsamen Änderung der Feldamplitude folgen nach dem Adiabatentheorem die Quasienergiezustände $|\psi_{\pm}\rangle$ adiabatisch und wir erhalten Quasienergien ϵ_{\pm} , die sich langsam zeitlich verändern, also $\epsilon_{\pm}(t)$, und die optimale Pulsbedingung (10.10) lautet jetzt

$$\frac{1}{\hbar} \int_0^{T_p} (\epsilon_{+}(t) - \epsilon_{-}(t)) dt = \pi(2\ell + 1), \quad \ell = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (10.14)$$

Dabei ist T_p die gesamte Pulsdauer. Weiterhin kann man mit Hilfe der RWA (vgl. Gl. (4.60)) die Differenz der Quasienergien durch die Rabi-Frequenz ausdrücken:

$$\begin{aligned} \epsilon_{+}(t) - \epsilon_{-}(t) &= \hbar\Omega(t) = \hbar\sqrt{\delta^2 + 4\lambda^2} \\ &= \hbar 2\lambda = \hbar F(t), \end{aligned} \quad (10.15)$$

für eine exakte Abstimmung auf den Übergang ($\delta = 0$). Damit erhält man die Bedingung

$$\int_0^{T_p} F(t) dt = (2\ell + 1)\pi \quad (10.16)$$

d.h. die Fläche unter dem Puls muss einer Quantisierungsbedingung genügen. Gleichung (10.16) bezeichnet man daher auch als das ‘*Flächentheorem*’ für einen optimalen Übergang.

Einige Bemerkungen dazu erscheinen angebracht:

- In den Kopplungsterm $f(t)$ des Zweizustandmodells geht auch das Matrixelement für den Übergang ein, d.h. $f(t) = \text{Puls}\langle 2|V|1\rangle$.
- Die Formel (10.14) ist wesentlich allgemeiner als die Gleichung (10.16), denn letztere gilt ja nur im Rahmen der RWA unter exakter Abstimmung $\omega = \omega_0$.
- Es ist in ähnlicher Weise auch möglich, Systeme mit mehr als zwei Niveaus zu beschreiben.

Ein Beispiel soll die obigen Überlegungen illustrieren. Es ist einer Arbeit von M. Holthaus² entnommen.

Wir betrachten einen angetriebenen Morse–Oszillator

$$H(t) = \frac{p^2}{2m} + D(1 - e^{-\beta x})^2 + dxF \cos \omega t \quad (10.17)$$

mit den Parametern $m = 1744.8a.e.$, $D = 0.2251a.e.$, $\beta = 1174a.e.$, $d = 0.3099a.e.$ (alle in atomaren Einheiten), die eine Streckschwingung im HF–Molekül modellieren.

Für den feldfreien Fall, $F = 0$, sind die Eigenwerte des Morse–Potentials durch

$$E_n = \hbar\omega_0 \left[(n + 1/2) - \frac{\hbar\omega_0}{4D}(n + 1/2)^2 \right] \quad (10.18)$$

gegeben, wobei $\omega_0 = \sqrt{2D\beta^2/m}$ die Frequenz im Potentialminimum ist. Die Anregungsfrequenz ω sei abgestimmt auf eine 5–Photonen Resonanz zwischen E_0 und E_5 , also

$$\omega = \frac{E_5 - E_0}{5\hbar}. \quad (10.19)$$

Als Puls wird in der Rechnung ein \sin^2 –Puls

$$F(t) = F_{\max} \sin^2 \frac{\pi t}{T_p} \quad (10.20)$$

mit einer Pulsdauer von $T_p = 100T$, $T = 2\pi/\omega$ benutzt.

²M. Holthaus, B. Just, Phys. Rev. A49 (1994) 1950..

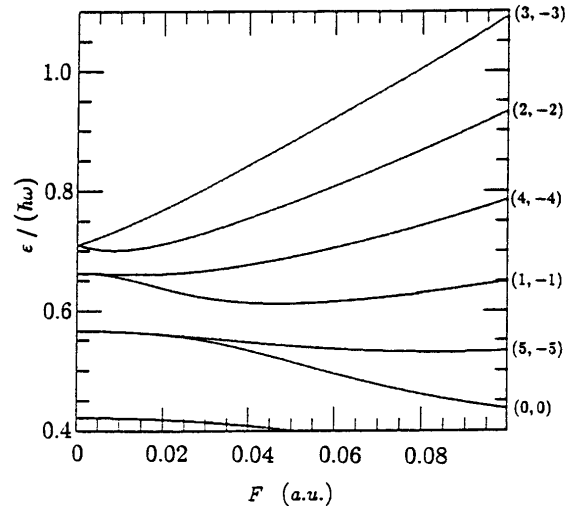


Abbildung 10.2: Quasienergien für den angetriebenen Morse-Oszillator (Holthaus et al, siehe Fußnote 2).

Abbildung 10.2 zeigt zunächst die Variation der Quasienergien $\epsilon_{(n,m)}^F = \epsilon_{(n,0)}^F + m\hbar\omega$, $m = 0, \pm 1, \dots$ der Anregungsamplitude F . Für $F = 0$ sind die $\epsilon_{(0,0)}^0 = \epsilon_{(5,-5)}^0$ entartet. In

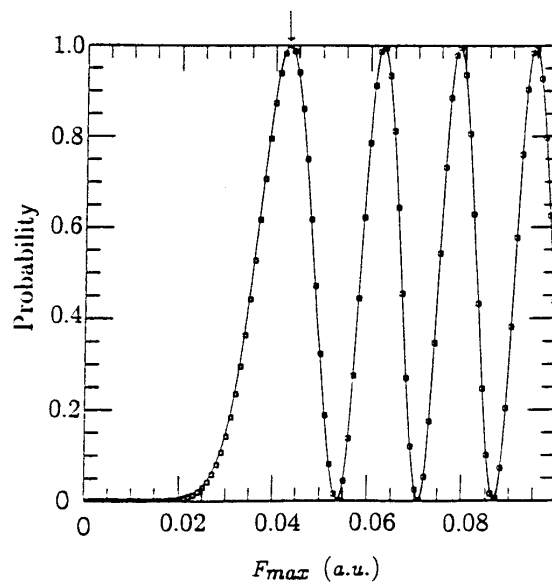


Abbildung 10.3: Wahrscheinlichkeit für den Übergang $0 \rightarrow 5$ für den angetriebenen Morse-Oszillator als Funktion der maximalen Feldamplitude F_{\max} . Die exakten numerischen Resultate (\bullet) sind verglichen mit der adiabatischen Näherung ($—$) (Holthaus et al, siehe Fußnote 2).

adiabatischer Näherung erhält man für den $0 \rightarrow 5$ Übergang die Wahrscheinlichkeit

$$P_{0 \rightarrow 5} = \sin^2 \left[\int_0^{T_p} \left(\epsilon_5^{F(t)} - \epsilon_0^{F(t)} \right) dt \right], \quad (10.21)$$

in guter Übereinstimmung mit den exakten numerischen Resultaten, wie in Abbildung 10.3 demonstriert. Für den Fall $F_{\max} = 0.0431$ ist die Bedingung (10.14) mit $\ell = 1$ erfüllt beobachten wir eine Übergangswahrscheinlichkeit $P_{0 \rightarrow 5} \approx 1$. Das Zeitverhalten der Übergangswahrscheinlichkeiten für diesen optimalen Fall zeigt Abbildung 10.4 einmal in der normalen Morse-Basis (a) (d.h. die $P_n(t) = |\langle n | \psi(t) \rangle|^2$) und in der Floquet-Basis (b). Man sieht, dass in der Floquet-Basis der Übergang wesentlich klarer beschrieben wird. Zum Abschluss sei noch angemerkt, dass bei den hier betrachteten Feldstärken die Kopplung an das Kontinuum noch vernachlässigt werden kann. Derartige Übergänge sind natürlich möglich (alle Floquet Zustände sind instabil!), erfolgen aber auf sehr viel längeren Zeitskalen.

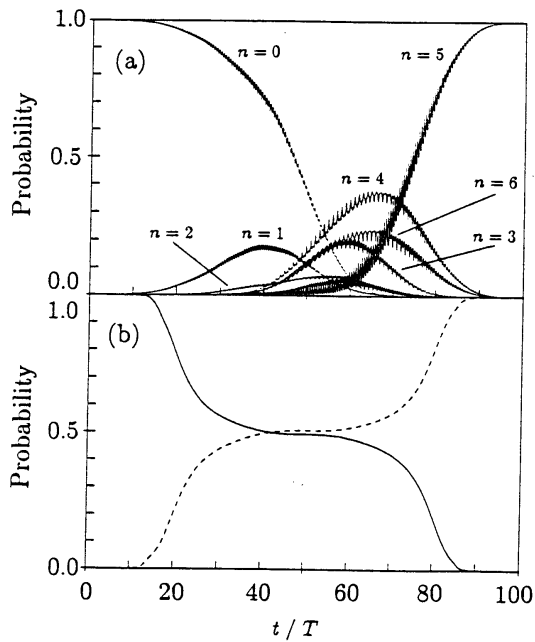


Abbildung 10.4: Zeitentwicklung der Besetzungswahrscheinlichkeiten für den angetriebenen Morse-Oszillator bei optimaler Feldamplitude. (a) Morse-Basis, (b) Floquet-Basis (Holthaus et al, siehe Fußnote 2).

10.3 Kontrolliertes Tunneln

In diesem Abschnitt werden wir die oben erarbeiteten Kenntnisse heranziehen, um ein kontrolliertes Tunneln zwischen zwei Potentialminima herbeizuführen. Als Modellsystem³

³Wir folgen hier der Arbeit M. Holthaus, Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 1596. .

betrachten wir dabei einen Duffing–Oszillator

$$H = \frac{p^2}{2m} - \frac{m\omega_0^2}{4}x^2 + \frac{m^2\omega_0^4}{64E_B}x^4 + fx \sin \tilde{\omega}t. \quad (10.22)$$

Dabei ist ω_0 die Frequenz für eine Schwingung in den beiden Potentialminima, E_B ist die Höhe der Potentialbarriere zwischen diesen Minima bei $x = 0$.

Durch Umskalieren $\sqrt{m\omega_0^2/\hbar}x \rightarrow x$ und $\omega_0 t \rightarrow t$ vereinfacht sich der Hamilton–Operator zu

$$H = \frac{p^2}{2} - \frac{1}{4}x^2 + \frac{1}{64D}x^4 + \lambda x \sin \omega t = H_0 + \lambda x \sin \omega t \quad (10.23)$$

mit Minima bei $x_m = \pm\sqrt{8D}$ mit einer Tiefe D .

Ohne Antrieb, $\lambda = 0$, spalten die Eigenzustände auf in Tunnel–Dubletts $E_n \approx E_{n+1}$, $n = 0, 2, \dots$ mit kleinem Splitting $\Delta E_n = E_{n+1} - E_n$. Wir unterdrücken den Index n und bezeichnen die beiden (normierten) Eigenzustände eines Dubletts als $|+\rangle$ und $|-\rangle$ mit positiver oder negativer Parität mit den Eigenwerten E_{\pm} . Durch Überlagerung

$$|R\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|-\rangle + |+\rangle) \quad , \quad |L\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|-\rangle - |+\rangle) \quad (10.24)$$

lassen sich Zustände konstruieren, die im rechten (R) oder linken (L) Potentialminimum lokalisiert sind. Die Zeitabhängigkeit dieser Zustände ist dann einfach gegeben durch

$$|\psi(t=0)\rangle = |R\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|-\rangle + |+\rangle) \quad (10.25)$$

und

$$|\psi(t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(e^{-\frac{i}{\hbar}E_-t}|-\rangle + e^{-\frac{i}{\hbar}E_+t}|+\rangle\right) \quad (10.26)$$

mit einer Rekurrenzwahrscheinlichkeit

$$p_R(t) = |\langle\psi(0)|\psi(t)\rangle|^2 = \frac{1}{2}\left(1 + \cos \frac{\Delta E t}{\hbar}\right) \quad (10.27)$$

mit einer periodischen Oszillation mit Periode $\tau = 2\pi\hbar/\Delta E$. Damit erhält man nach den Zeiten

$$\tau_\ell = \frac{2\pi\hbar}{\Delta E}(\ell + 1/2), \ell = 0, 1, \dots \quad (10.28)$$

einen vollständigen Übergang vom rechten in das linke Potentialminimum. Es sei angemerkt, dass man das Energiesplitting ΔE in semiklassischer Näherung durch Berechnen des Tunnelintegrals $\int |(p(x))|dx$ über die Barriere abschätzen kann zu

$$\Delta E \approx 8\sqrt{\frac{2D}{\pi}} e^{-16D/3}. \quad (10.29)$$

Mit dem zeitabhängigen Feld lassen sich zunächst die Quasienergien ϵ und ihre Aufspaltung $\epsilon_2 - \epsilon_1$ berechnen (siehe Abbildung 10.5) Verwendet man jetzt wieder einen

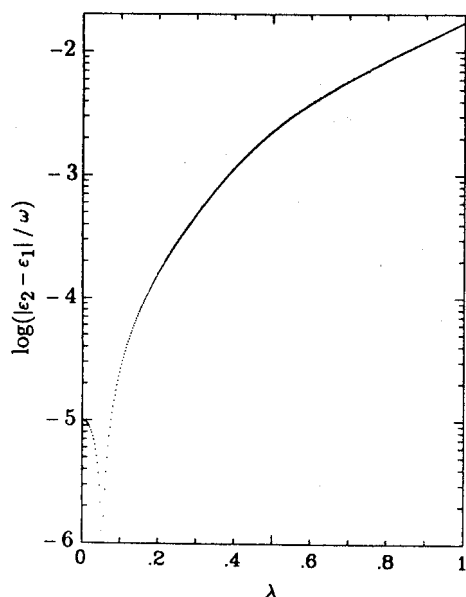


Abbildung 10.5: Quasienergiesplitting als Funktion der Feldamplitude λ (siehe Holthaus, Fußnote 3).

(adiabatischen) \sin^2 -Puls (vgl. (10.20)) mit Pulsdauer $T_p = 500 \cdot 2\pi/\omega$, so erwartet man einen vollständigen Transfer von $|R\rangle$ nach $|L\rangle$, wenn das Integral

$$\delta_T = \int_0^{T_p} [\epsilon_2(\lambda(t)) - \epsilon_1(\lambda(t))] dt \quad (10.30)$$

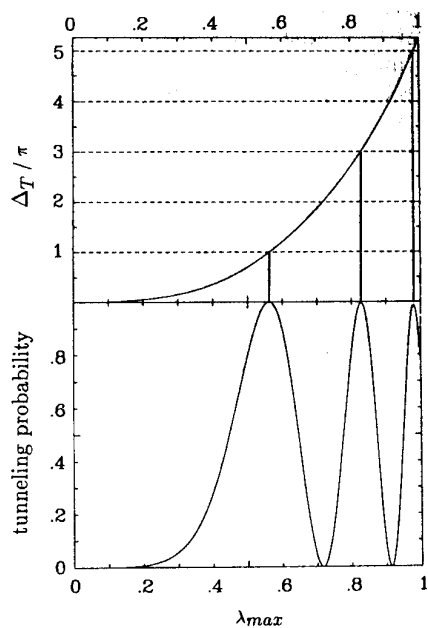


Abbildung 10.6: Tunnelwahrscheinlichkeit als Funktion der maximalen Feldamplitude λ_{\max} . Man erhält ein vollständiges Tunneln, wenn Δ_T (oberes Teilbild) ein ganzzahliges Vielfaches von π ist. (siehe Holthaus Fußnote 3).

ein ganzzahliges Vielfaches von π ist. Das ist in der Tat der Fall, wie Abbildung 10.6 belegt.

10.4 Stückelberg–Oszillationen bei Pulsexperimenten

Wie schon weiter oben ausgeführt, folgen die Quasienergiezustände bei einer langsamen (adiabatischen) Änderung eines Systemparameters (hier als F bezeichnet) eines zeitperiodischen Systems den ‘instantanen’ Quasienergiezuständen, d.h. denen bei einem jeweils festgehaltenen Wert von F . Abweichungen von diesem adiabatischen Verhalten treten in natürlicher Weise dann auf, wenn zwei solche Zustände sehr ähnlich sind. Die beiden Quasienergien liegen dann dicht beieinander. Typischerweise findet man bei einem Parameterwert F_x eine sogenannte *vermiedene Kreuzung*, wie in Abbildung 10.7 dargestellt ist⁴.

Man kann dieses Verhalten modellieren durch ein Zweiniveausystem mit dem Hamilton Operator

$$H = \begin{pmatrix} \epsilon_x + \zeta(F - F_x) & \delta\epsilon/2 \\ \delta\epsilon/2 & \epsilon_x - \zeta(F - F_x) \end{pmatrix} \quad (10.31)$$

⁴Es gibt auch *echte* Kreuzungen, jedoch typischerweise nur zwischen Zuständen verschiedener Symmetrieklassen.

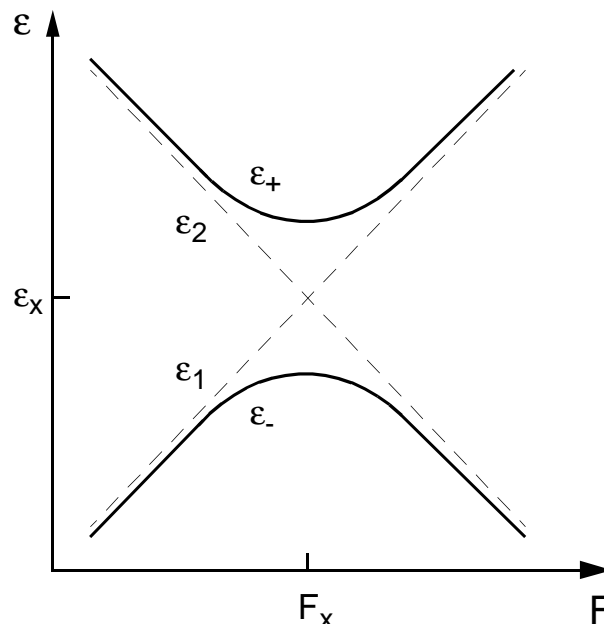


Abbildung 10.7: Vermiedene Kreuzung zweier Quasienergien ϵ_{\pm} (adiabatische Zustände) als Funktion eines Systemparameters F . Die diabatischen Zustände ϵ_1 und ϵ_2 kreuzen bei F_x .

(vgl. auch die Diskussion des Entartungstheorems in Abschnitt 4.2). Für verschwindende Kopplung $\delta\epsilon/2$ ist H diagonal mit den Eigenwerten

$$\epsilon_1 = \epsilon_\times + \zeta(F - F_\times) \quad , \quad \epsilon_2 = \epsilon_\times - \zeta(F - F_\times) \quad , \quad (10.32)$$

die hier linear von dem Parameter F abhängen. Bei F_\times kreuzen diese sogenannten *diabatischen* Kurven. Durch die Kopplung wird diese Kreuzung aufgehoben und die *adiabatischen* Eigenwerte

$$\epsilon_\pm = \epsilon_\times \pm \sqrt{\left(\frac{\delta\epsilon}{2}\right)^2 + \left(\zeta(F - F_\times)\right)^2} \quad (10.33)$$

haben bei F_\times einen Abstand

$$\epsilon_+ - \epsilon_- = \delta\epsilon \quad . \quad (10.34)$$

Variiert man jetzt zeitlich den Parameter F über den den Kreuzungsbereich hinweg, so werden Übergänge zwischen den Zuständen induziert. Für eine sehr langsame Variation ($|\dot{F}|$ klein) folgen die Zustände den adiabatischen Kurven, für eine schnelle Variation den diabatischen. Die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen den adiabatischen Zuständen kann man nach Landau und Zener⁵ in einer semiklassischen Näherung abschätzen als

$$p_{LZ} = \exp\left(-\frac{\pi(\delta\epsilon)^2}{4\hbar|\zeta\dot{F}|}\right) \quad , \quad (10.35)$$

der sogenannten *Landau–Zener Übergangswahrscheinlichkeit*. Dabei ist \dot{F} die Geschwindigkeit der F -Variation am Kreuzungspunkt. Es ist instruktiv, den Exponenten in (10.35) umzuschreiben als

$$\frac{\pi(\delta\epsilon)^2}{4\hbar|\zeta\dot{F}|} = \frac{\pi}{2} \frac{\delta\epsilon}{\hbar} \frac{\delta F}{|\dot{F}|} \quad , \quad (10.36)$$

wobei $\delta F = \delta\epsilon/2\zeta$ die Ausdehnung des Kreuzungsbereiches angibt. Der Term $\hbar/\Delta\epsilon$ ist die charakteristische Zeit für Übergänge zwischen den Zuständen und $\delta F/|\dot{F}|$ ist die Zeit für das Durchlaufen der Kreuzungsregion. Ist die letztere Zeit groß gegenüber der ersteren, so ist $p_{LZ} \approx 0$ und das System folgt den adiabatischen Zuständen ϵ_+ bzw. ϵ_- . Im umgekehrten Fall eines schnellen Durchlaufs ist $p_{LZ} \approx 1$ und das System ‘hat nicht mehr genug Zeit’, um sich auf die instantanen Eigenzustände einzustellen. Es folgt dann den diabatischen Zuständen ϵ_1 bzw. ϵ_2 .

Wenn nun der Parameter F von einem Wert deutlich unterhalb der Kreuzungsbereiches bis zu einem Wert deutlich oberhalb des Kreuzungsbereiches erhöht wird, so werden beispielsweise ein Zustand, der anfangs in dem unteren Niveau ist, mit einer Wahrscheinlichkeit p_{LZ} in den anderen Zustand übergehen und mit einer Wahrscheinlichkeit $1 - p_{LZ}$ verbleiben. Senkt man jetzt F wieder auf den alten Wert unterhalb der Kreuzung ab, so passiert das Gleiche noch einmal. In einem ersten groben Modell ist dann die Gesamtwahrscheinlichkeit für einen *Übergang* zwischen den beiden Zuständen bei einem solchen symmetrischen F -Puls gleich

$$p_{12} = 2p_{LZ}(1 - p_{LZ}) \quad , \quad (10.37)$$

⁵siehe z.B. M. S. Child: *Molecular Collision Theory* (Academic Press, 1974)

denn es gibt zwei Möglichkeiten: Kreuzen beim ersten Durchgang und Nichtkreuzen beim zweiten oder umgekehrt mit jeweils der gleichen Wahrscheinlichkeit $p_{LZ}(1 - p_{LZ})$, wie in Abbildung 10.8 illustriert.

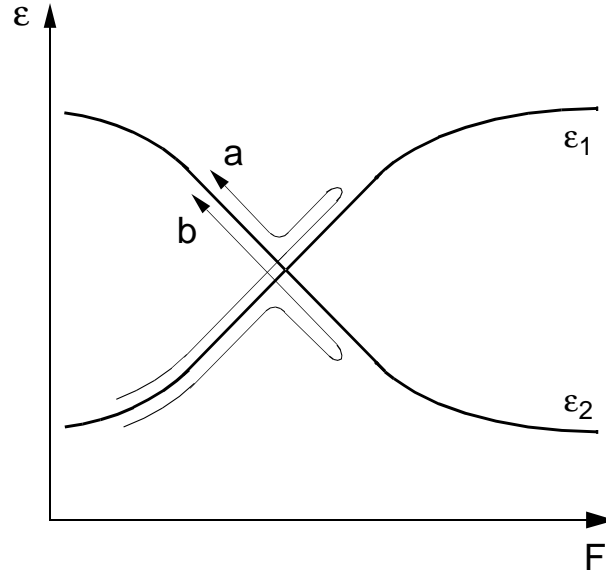


Abbildung 10.8: Zwei interferierende Wege für einen nichtadiabatischen Übergang.

Eine genauere Überlegung zeigt allerdings, dass quantenmechanisch diese beiden Wege interferieren können, was zu dem Ausdruck

$$p_{12} = 4p_{LZ}(1 - p_{LZ}) \sin^2(\Delta\Phi/2) \quad (10.38)$$

führt. Hierbei ist $\Delta\Phi$ die Phasendifferenz.

Wenn man jetzt ein Experiment mit einem Laserpuls (Frequenz ω und maximale Amplitude F_{\max}) durchführt, so hängt die Phasendifferenz $\Delta\Phi$ von der Pulsamplitude F_{\max} ab. Variiert man diese, so ergeben sich Oszillationen in den Übergangswahrscheinlichkeiten p_{12} . Man bezeichnet derartige Oszillationen in Kurvenkreuzungen als *Stückerberg Oszillationen* (siehe Bild, Fußnote auf Seite 124).

Experimentell wurden solche Stückerberg Oszillationen z.B. für Triplettzustände des einfach angeregten Helium–Rydbergatoms in einem Magnetfeld in der Gruppe von Peter Koch beobachtet⁶. Die Quasienergien der 28^3P - und 28^3S -Niveaus zeigen eine vermiedene Kreuzung (vgl. Abbildung 10.9). Die Messwerte für den Übergang $28^3P - 28^3S$ in Abbildung 10.10 zeigen deutlich die erwarteten Stückerberg Oszillationen. Man beachte außerdem, dass die Übergänge erst einsetzen wenn die maximale Pulsamplitude den Kreuzungsbereich erreicht (also etwa bei 34.5 V/cm für 29 GHz).

⁶ S. Yoakum, L. Sirko, P. Koch, Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 1919.

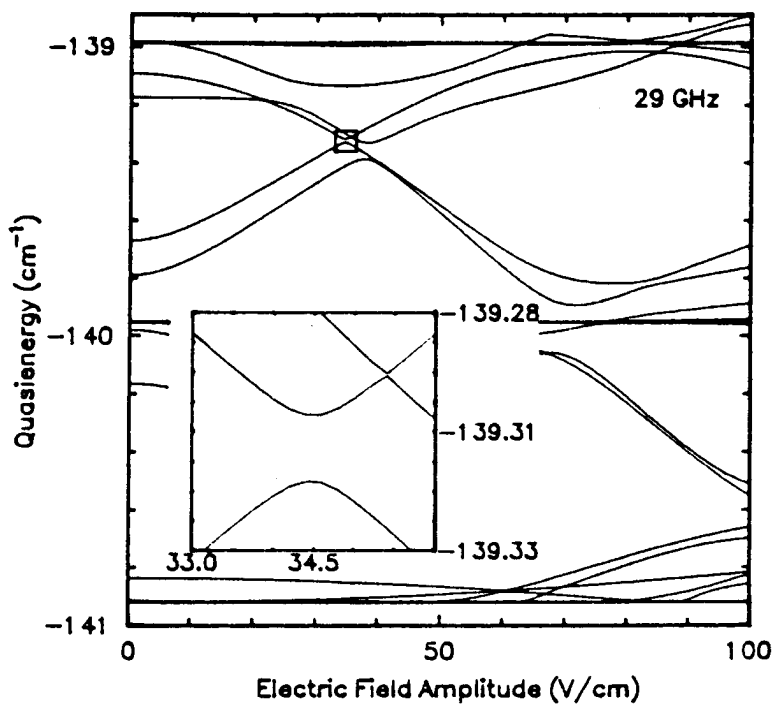


Abbildung 10.9: Quasienergien für Triplettzustände des einfach angeregten Helium-Rydbergatoms in einem Magnetfeld von 29 GHz in Abhängigkeit von der Feldamplitude (siehe Yoakum et al., Fußnote auf Seite 125).

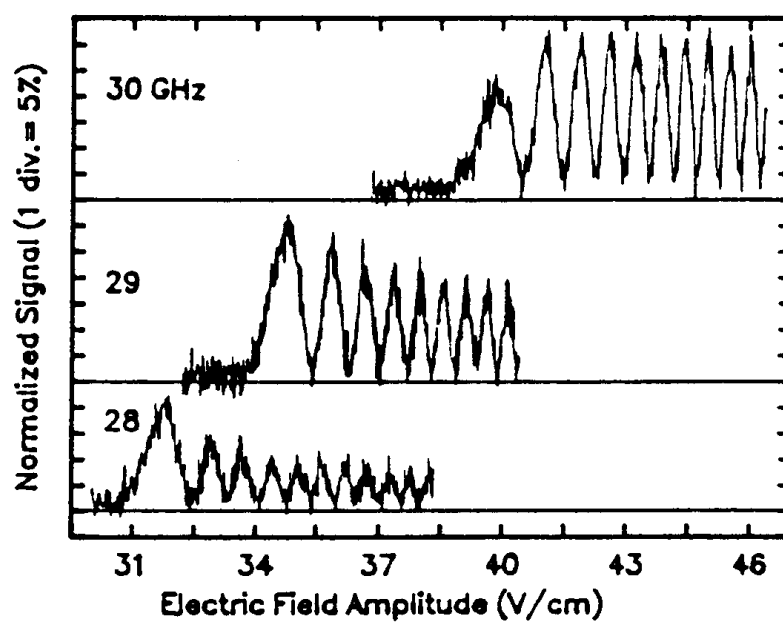


Abbildung 10.10: Übergang $28^3P - 28^3S$ in Abhängigkeit von der maximalen Feldamplitude für verschiedene Frequenzen (siehe siehe Yoakum et al., Fußnote auf Seite 6).