

Atomok (molekulák) fotoionizációja során jelentkező rezonanciahatások

Resonance Effects in the Photoionization of Atoms (Molecules)

BORBÉLY Sándor, NAGY László

Babeş-Bolyai Tudományegyetem, Fizika kar,
400084 Kolozsvár (Cluj), Kogălniceanu u. 1, Románia, email: lnagy@phys.ubbcluj.ro

ABSTRACT

In the recent years much theoretical and experimental work about the ultrashort laser field – quantum system interaction was published (for reviews see [1, 2]). In these theoretical works the consecutive laser pulses are discussed separately or only one pulse is considered [3]. In the present work we show that in the case of moderately intense pulses with high repetition rate the spectral interference between different pulses have an important role, which in the case of photoionization of atoms (molecules) leads to resonance - like effects

ÖSSZEFOGLALÓ

Az elmúlt években számos elméleti és kísérleti munka tárgya volt az intenzív lézerimpulzusok és különböző kvantummechanikai rendszerek közötti kölcsönhatás [1,2]. Ezen munkákban az egymás után következő lézerimpulzusokat külön tárgyalták, vagy csak egy impulzus hatását vették figyelembe [3]. Jelen tanulmányban közepesen intenzív nagy ismétlődési rátával rendelkező lézerimpulzusok esetén rámutatunk a spektrális interferencia fontosságára, amely fotoionizáció esetén a kilépő elektron spektrumában rezonanciahatások megjelenéséhez vezet.

Kulcsszavak: rezonanciahatások, spektrális interferencia, fotoionizáció, intenzív lézerimpulzusok

BEVEZETŐ

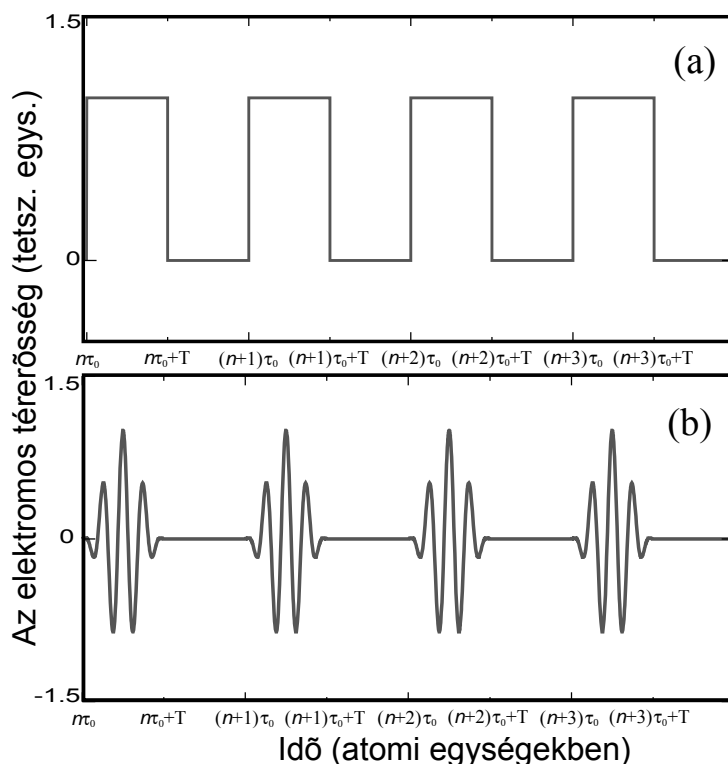
A lézerfizika elmúlt években tapasztalható rendkívüli fejlődésének köszönhetően számos kísérletet végeztek különböző intenzitású és időtartamú lézerimpulzusok és atomok, molekulák, valamint klasszterek közötti kölcsönhatás tanulmányozása végett [1, 2, 4, 5]. A kísérleti eredmények értelmezéséhez szükség van könnyen kezelhető elméleti modellekre.

A relativisztikus hatások elhanyagolásával a külső lézerterek és kvantummechanikai rendszerek közötti kölcsönhatás leírható az időtől függő Schrödinger-egyenlet (IFSE) segítségével. Az IFSE csak a legegyszerűbb esetben (szabad, töltött részecske külső lézertérben) oldható meg analitikusan, ezért a kísérletek szempontjából fontos esetekben a IFSE-et numerikusan [6-8] vagy közelítések alkalmazásával analitikusan kell megoldani.

A numerikus megoldás hátránya, hogy nagy rendszerek (kettőnél több aktív részecske) esetén a jelenlegi személyi számítógépeken kivitelezhetetlen illetve kis rendszereknél nagy intenzitású külső lézertér esetén nagyon lassan konvergál [6].

A legegyszerűbb IFSE közelítő megoldásán alapuló, a legtöbb esetben analitikusan végigszámolható modell az időtől függő perturbációs módszer (IFPM). Az IFPM a perturbációs tartományban helyes megoldásokat ad, miközben a perturbációs tartományon kívüli folyamatokról is szerezhetünk minőségi információt.

Jelen tanulmány az IFPM-t használja, mivel fő célunk a kvantumátmenetek során jelentkező rezonanciahatások minőségi leírása. Az eddigi tanulmányokkal ellentétben az egymásután következő lézerimpulzusok hatását együtt tárgyaljuk. A tanulmány során az atomi egységeket használjuk.



1. ábra
A lézerpulzusok: (a) téglalap, (b) szinusz-négyzetes

ELMÉLET

A külső lézertérrel lineárisan polarizáltak tekintjük $\hat{\epsilon}$ polarizációs vektor mentén. Az egyes impulzusok alakját egyszerű analitikus függvények segítségével írjuk le. Téglalap impulzusok esetén

$$f(t) = \begin{cases} 1 & \text{ha } t \in (0, T) \\ 0 & \text{máshol} \end{cases}, \quad (8)$$

valamint szinusz-négyzetes impulzusok esetén

$$f(t) = \begin{cases} \sin^2\left(\frac{\pi t}{T}\right) \sin(\omega t + \phi_0) & \text{ha } t \in (0, T) \\ 0 & \text{máshol} \end{cases}, \quad (9)$$

ahol T az impulzusok hossza, ω a hordozóhullám frekvenciája és ϕ_0 a hordozóhullám kezdőfázisa.

Az impulzusvonal felépíthető az egyedi impulzusok összegzésével (lásd 1. ábrát) és a külső elektromos tér erőssége a rendszer középpontjában

$$\vec{E} = \sum_{n=0}^{\infty} \hat{\epsilon} E_0 f(t - n\tau_0), \quad (10)$$

ahol τ_0 az időtartam két egymás utáni lézerpulzus között. A dipól közelítés és a (10) egyenlet felhasználásával a perturbációs potenciál hosszúságmértékben megadható mint:

$$U(t) = \hat{\epsilon} \vec{r} E_0 \sum_{n=0}^{\infty} f(t - n\tau_0). \quad (11)$$

Az első n lézerpulzus hatására az i kezdeti- és f végállapot közötti átmeneti valószínűségi amplitúdó a IFPM elsőrendű közelítésében a következőképpen írható fel

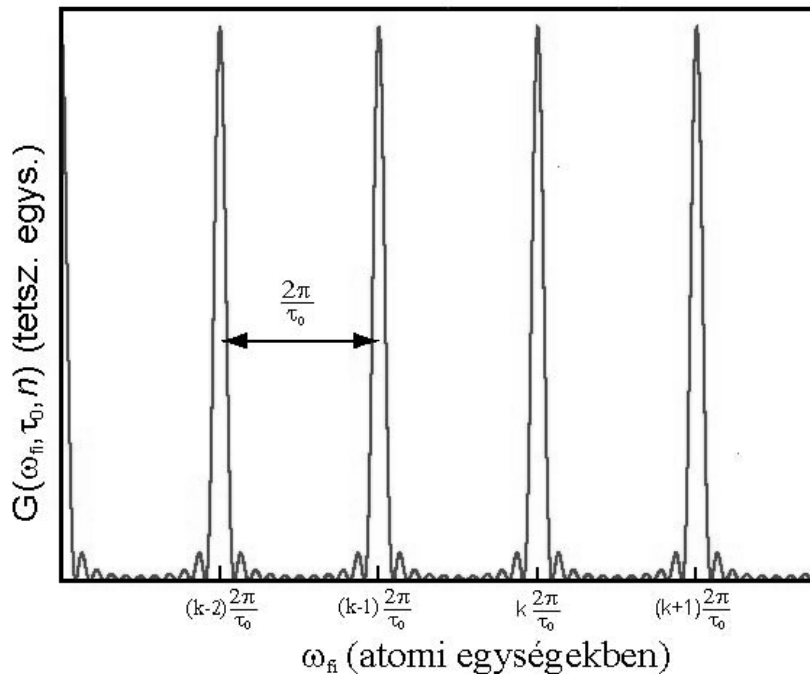
$$a^{(1)} = -i \int_0^t dt' e^{i\omega_{fi}t'} \langle \Psi_f | U(t') | \Psi_i \rangle, \quad (12)$$

ahol $\omega_{fi} = E_f - E_i$ a kezdeti és végállapot közötti energiakülönbség. A fenti kifejezés egyszerű számítások segítségével a következő alakra hozható:

$$a^{(1)}(n) = -iE_0 \langle \Psi_f | \hat{\epsilon}\vec{r} | \Psi_i \rangle F(T, \omega, \omega_{fi}) \left[\frac{1 - e^{i\omega_{fi}n\tau_0}}{1 - e^{i\omega_{fi}\tau_0}} \right], \quad (13)$$

ahol

$$F(T, \omega, \omega_{fi}) = \int_0^T e^{i\omega_{fi}t} f(t) dt. \quad (14)$$



2. ábra

$G(\omega_{fi}, \tau_0, n)$ az ω_{fi} függvényében ha $\tau_0 = 25 a.u.$ és $n = 10$

Az átmeneti valószínűség megadható mint az átmeneti valószínűségi amplitúdó modulusz-négyzete

$$P_{fi}(n) = E_0^2 \left| \langle \Psi_f | \hat{\epsilon}\vec{r} | \Psi_i \rangle \right|^2 \left[\frac{\sin\left(\frac{\omega_{fi}n\tau_0}{2}\right)}{\sin\left(\frac{\omega_{fi}\tau_0}{2}\right)} \right]^2 |F(T, \omega, \omega_{fi})|^2. \quad (15)$$

EREDMÉNYEK

A fent megadott átmeneti valószínűség három tagból tevődik össze.

Az első az dipól átmeneti mátrixelem segítségével fejezhető ki és a kezdeti valamint a végállapot hullámfüggvényétől függ.

A második tag foglalja magába a spektrális interferencia hatását, amely az egymás utáni lézerpulzusok spektrális összetevői közötti interferencia következtében jelenik meg

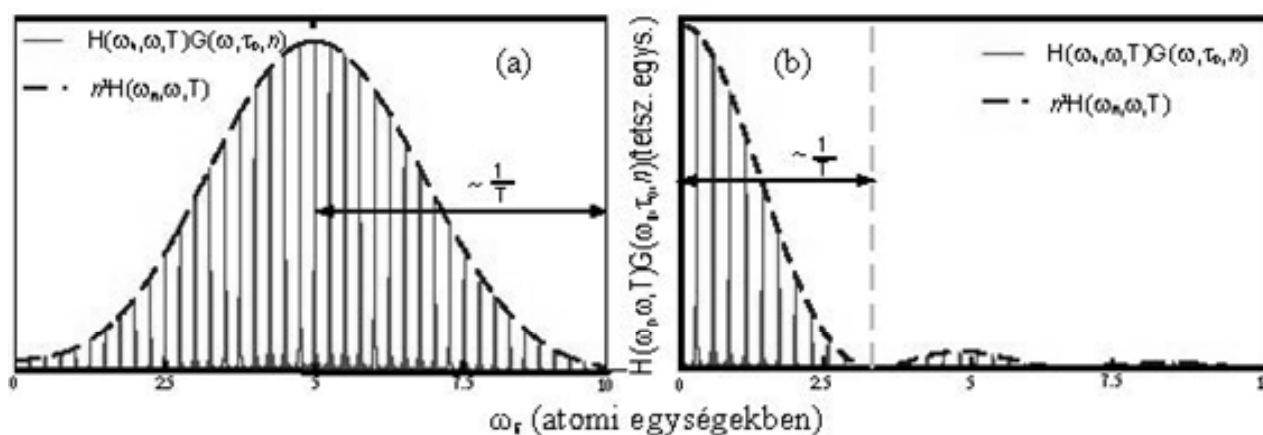
$$G(\omega_f, \tau_0, n) = \left[\frac{\sin\left(\frac{\omega_f n \tau_0}{2}\right)}{\sin\left(\frac{\omega_f \tau_0}{2}\right)} \right]^2. \quad (16)$$

A 2. ábrán látható nagy n értékekre $G(\omega_f, \tau_0, n)$ -nek éles maximumai vannak minden $\omega_f = \frac{2k\pi}{\tau_0}$ értékre, ahol k tetszőleges egész szám.

A harmadik tag értékét a lézerpulzusok alakja határozza meg

$$H(\omega_f, \omega, T) = \left| F(T, \omega, \omega_f) \right|^2 \quad (17)$$

és nyilvánvaló kapcsolatban van a burkológörbe Fourier transzformáltjával.



3. ábra

$G(\omega_f, \tau_0, n)H(\omega_f, \omega, T)$ az ω_f függvényében (a) szinusz-négyzetes burkolójú impulzusok esetén ha $\tau_0 = 25 \text{ a.e.}, \omega = 5 \text{ a.e.}, T = 2.1 \text{ a.e.}$ és $n = 10$, valamint (b) téglalap burkolójú impulzusok esetén ha $\tau_0 = 25 \text{ a.e.}, \omega = 0.5 \text{ a.e.}, T = 2.1 \text{ a.e.}$ és $n = 10$.

Jelen tanulmányban téglalap és szinusz-négyzetes burkolójú lézerpulzusokra végeztük el a számításokat. Mindkét esetben $H(\omega_f, \omega, T)$ egy globális maximummal rendelkezik, amelyet számos lokális maximum követ. Szinusz-négyzetes impulzusok esetén a globális maximum $\omega_f = \omega$ -nál (3. a. ábra), míg téglalap impulzusok esetén $\omega_f = 0$ -nál (3.b. ábra) helyezkedik el és mindkét esetben a maximumok közötti távolság $\frac{2\pi}{T}$.

Fotoionizáció esetén a kísérletileg kimérhető átmeneti valószínűség nem egyezik meg az elméletileg számolt egzakt értékkel. Ez az elektron-spektrométerek véges energiafelbontásának következménye, azaz a kísérletileg mért átmeneti valószínűség az elméleti valószínűségnek az elektron-spektrométer által meghatározott energiaintervallumra vett átlaga:

$$\bar{P}_{fi}(n) = \frac{1}{2\eta} \int_{E_f - \eta}^{E_f + \eta} P_{fi}(n) dE_f', \quad (18)$$

ahol η a spektrométer felbontása.

Könnyen igazolható, hogy ha a spektrométer felbontása eleget tesz a következő feltételnek:

$$\eta \geq \frac{2\pi}{\tau_0}, \quad (19)$$

akkor a $\bar{P}_{fi}(n) = nP_{fi}(1)$, azaz az elektron-spektrométer kiátlagolja a spektrális interferencia miatt megjelenő rezonanciahatásokat. Ha a (19) feltétel teljesül, akkor a lézerpulzusok hatása külön tanulmányozható, ha nem, akkor a lézerpulzusok együttes hatásának tanulmányozása szükséges.

Jelen pillanatban az elektron-spektrométerek felbontása eléri a 70 meV-ot. Ebben az esetben a rezonanciahatások csak akkor figyelhetők meg, ha a lézerpulzusok ismétlődési rátája meghaladja a 40 THz-et.

Femtosekundumos lézerpulzusok esetén az ismétlődési ráta a kHz-MHz tartományban mozog, amely a fent megállapított frekvenciahatár alatt van, így femtosekundumos lézerpulzusoknál a rezonanciahatások kiátlagolódnak.

A újonnan előállított attosekundumos lézerpulzusok ismétlődési rátája a fent megállapított határ fölött található [9, 10], így az attosekundumos lézerpulzusok esetén a rezonanciahatások jelentős szerepre tehetnek szert.

KÖVETKEZTETÉSEK

Egyszerű perturbációs megközelítés segítségével sikerült meghatározni az átmeneti valószínűséget és egy, a lézerpulzusok alakjától független, az ismétlődési ráta által meghatározott rezonanciahatást kimutatni.

Bebizonyítottuk, hogy ezen rezonanciahatásokat kísérletileg csak akkor lehet kimutatni, ha a (19) feltétel nem teljesül. Femtosekundumos lézerpulzusok esetén az ismétlődési ráta jóval a (19) feltétel által meghatározott küszöb alatt van, így elmondhatjuk, hogy femtosekundumos lézerpulzusok esetén a rezonanciahatások elhanyagolhatóak.

A lézertechnológia utóbbi időben elért fejlődése révén már attosekundumos lézerpulzusok előállítása lehetséges. Ezen impulzusok esetén az ismétlődési ráta jóval a megállapított küszöb fölött található, így az attosekundumos lézerpulzusok által generált folyamatok esetén az itt bemutatott rezonanciahatások nagy jelentőséggel bírnak.

BIBLIOGRÁFIA

- [1] M. Protopapas, C. H. Keitel, P. L. Knight, Rep. Prog. Phys. 60 (1997) 389 – 489.
- [2] A. Pukhov, Rep. Prog. Phys. 66 (2003) 47 – 101.
- [3] G. Duchateau et. al., J. Phys. B.: At. Mol. Opt. Phys., 33 (2000) L571-L576.
- [4] U. Saalman et. al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 39 (2006) R39.
- [5] J. H. Posthumus, Rep. Prog. Phys. 67 (2004) 623.
- [6] M. Pont et. al., Phys. Rev. A 44 (1991) 4486.
- [7] E. Cormier and P. Lambrapoulos, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 30 (1997) 77.
- [8] C. E. Dateo and M. Metiu, J. Chem. Phys. 95 (1991) 7392.
- [9] P. A. Paul et. al., Science 192 (2001) 1689.
- [10] Y. Nabekawa et. al., Phys. Rev. Lett. 96 (2006) 083901.