

# Ionizarea atomilor cu pulsuri laser intense



Tóth Attila

Departmentul de Fizică

Universitatea Babeş-Bolyai Cluj-Napoca

Rezumatul tezei de doctorat

Conducător științific: Prof. Dr. Nagy Ladislau

2013

---

## Cuvinte cheie

intensități ridicate, pulsuri laser ultracure, ionizarea peste barieră, rezolvare *ab-initio* al ecuației Schrödinger dependente de timp, reprezentarea "finite element discrete variable", propagator Lanczos, atomul de hidrogen, gaze nobile, interferență temporală, interferență spațială, difracție electronică indusă de lumină, holographic mapping

## Lista de publicații

- articole în reviste cotate ISI

1. S. Borbély, A. Tóth, K. Tőkési, and L. Nagy, *Spatial and temporal interference during the ionization of H by few-cycle XUV laser pulses*, Phys. Rev. A **87** (2013) 013405
2. S. Borbély, A. Tóth, K. Tőkési, and L. Nagy, *Laser-induced electron diffraction in a pump-probe setup using half-cycle electric pulses*, Phys. Scr. **2013** (2013) 014066

- Articole in preparare

1. S. Borbély, A. Tóth, K. Tőkési, and L. Nagy, *Ionization of atoms by few-cycle EUV laser pulses: carrier-envelope phase dependence of the intra-pulse interference effects*, Cent. Eur. J. Phys.
2. S. Borbély, A. Tóth, K. Tőkési, and L. Nagy, *nemesgazos cikk*, Phys. Rev. A

# Conținutul tezei

<b>1</b>	<b>Prefață</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Interacția materiei cu câmpuri de radiații externe</b>	<b>5</b>
2.1	Tehnologia laserilor . . . . .	5
2.1.1	Generarea pulsurilor laser scurte . . . . .	8
2.1.2	Amplificarea ”chirped pulse” . . . . .	12
2.2	Descrierea matematică al câmpurilor laser . . . . .	14
2.3	Particule încărcate în câmpuri electromagnetice . . . . .	16
2.4	Mecanisme de ionizare . . . . .	20
2.4.1	Ionizarea cu un singur foton . . . . .	20
2.4.2	Ionizarea cu mai mulți fotoni, ionizarea deasupra pragului . . . . .	20
2.4.3	Ionizarea prin tunelare și ionizarea peste barieră . . . . .	22
2.5	Modele teoretice . . . . .	24
2.5.1	Teoria perturbațiilor . . . . .	25
2.5.2	Modele ”essential states” . . . . .	25
2.5.3	Modele Floquet . . . . .	26
2.5.4	Modele Keldysh, Reiss and Failsal (KRF) . . . . .	28
2.5.5	Modele Coulomb-Volkov . . . . .	30
2.5.6	Modele Ammosov, Delano and Krainov (ADK) . . . . .	30
<b>3</b>	<b>Metode numerice pentru rezolvarea ecuației Schrödinger dependente de timp</b>	<b>32</b>
3.1	Discretizare spațială . . . . .	32
3.1.1	Metode spectrale . . . . .	33
3.1.2	Metode de grilă și diferențe finite . . . . .	35
3.1.3	Metoda R-matrix dependentă de timp . . . . .	37
3.1.4	TDSE în spațiul impulsurilor . . . . .	40
3.2	Discretizare temporală . . . . .	41
3.2.1	Metoda Euler Explicită și Implicită . . . . .	47
3.2.2	Metoda Crank-Nicolson . . . . .	48
3.2.3	Metoda Split-Operator . . . . .	49

---

<b>4</b>	<b>Abordarea de față</b>	<b>51</b>
4.1	Metoda "close-coupling" dependentă de timp . . . . .	51
4.2	Discretizarea funcției de undă radială . . . . .	55
4.2.1	Metoda Elementelor Finite . . . . .	55
4.2.2	Reprezentarea "discrete variable" . . . . .	56
4.2.3	Reprezentarea "Finite element discrete variable" . . . . .	60
4.3	Propagare temporală . . . . .	62
4.3.1	Metoda Runge-Kutta de ordinul patru . . . . .	62
4.3.2	Propagatorul Lanczos . . . . .	63
4.4	Remarci asupra implementării . . . . .	67
4.5	Calcularea observablelor . . . . .	72
<b>5</b>	<b>Benchmarking the code</b>	<b>80</b>
5.1	Starea inițială . . . . .	80
5.2	Propagare temporală . . . . .	83
<b>6</b>	<b>Ionizarea atomilor prin pulsuri laser cu puține perioade optice</b>	<b>89</b>
6.1	Interferențe temporale . . . . .	96
6.2	Interferențe spațiale . . . . .	100
6.2.1	Influența parametrilor pulsului laser . . . . .	104
6.2.2	Configurare "pump-probe" cu pulsuri electrice de jumătate de ciclu . . . . .	114
6.2.3	Influența potențialului creat de miez - Ionizarea gazelor nobile . . . . .	118
<b>7</b>	<b>Concluzii și perspective</b>	<b>127</b>
<b>A</b>	<b>Armonicele sferice</b>	<b>131</b>
<b>B</b>	<b>Quadratura Gaussiană</b>	<b>134</b>
	<b>Lista de Figuri</b>	<b>137</b>
	<b>Lista de Abrevieri</b>	<b>142</b>
	<b>Bibliografie</b>	<b>143</b>

# Introducere

De-a lungul ultimelor decenii, de la prima lor realizare experimentală în 1960 [1], laserele au fost integrate în viața noastră de zi cu zi. Datorită proprietăților de coerență și monocromaticitate ridicată ale luminii produse de lasere, ele sunt utilizate într-o gamă largă de aplicații. Aceste aplicații variază de la utilizări industriale și comerciale, cum ar fi procesarea materialelor (tăiere, sudare, foraj, gravură), stocare și preluarea datelor de pe discuri optice, cititoare de coduri de bare, imprimante laser, comunicații optice, pentru a menționa doar câteva, până la aplicații militare. Un alt domeniu în care tehnologia laserilor devine din ce în ce mai importantă este medicina.

Pe lângă implementarea diferitelor aplicații, tehnologia laserilor a progresat în continuu. Intensitățile realizabile au devenit tot mai ridicate, și în paralel, au apărut lasere care produceau pulsuri de durate din ce în ce mai scurte. Un moment important în această dezvoltare este inventarea amplificării “chirped pulse” (chirped pulse amplification - CPA) în 1985, care a reușit să depășească limitele tehnice ale construcției laserilor anterioare, aducând o creștere de aproximativ șase ordine de mărime pentru intensitățile realizabile. În consecință, facilitățile laser cele mai recente sunt capabile să producă pulsuri laser ultrascurte cu durate de ordinul a 10 fs, și intensități peste  $10^{15} \text{W/cm}^2$ . Aceste condiții au deschis calea pentru investigarea unor fenomene noi, anterior necunoscute.

Răspunsul dominant al materiei spre iradiere cu un câmp extern intens este ionizarea, care poate să apară prin ionizare cu mai multi fotoni (multi-photon ionisation - MPI), ionizare prin tunelare (tunnelling ionisation - TI) sau ionizare peste barieră (over-the-barrier ionisation - OBI). Diferența fundamentală al ionizării induse de un câmp electromagnetic, comparativ cu ionizarea prin impact cu o particulă încărcată este faptul că electronii ejectați se mișcă sub influența câmpului de radiație oscilant extern. În consecință, aceste fotoelectroni vor avea o mișcare oscilatorie, și există o bună șansă ca să se întoarcă suficient de aproape la ionul părinte ca să se interacționeze cu acesta. Aceste interacțiuni pot lua diferite forme, precum ar fi excitare sau ionizare, dar există alte două scenarii care conduc la aplicații deosebit de interesante. În primul caz, electronii care se întorc, se recombina cu ionul părinte, și prin urmare

---

își pierd energia lor de exces prin emisia unui singur foton de frecvență înaltă. Acest proces este cunoscut sub numele de generare de armonice superioare (high harmonic generation - HHG). În al doilea caz, în loc de a fi reabsorbite, electronii liberi sunt împrăștiați pe ionul rezidual. În acest fel, pachetele de undă electronice produse de câmpul laser pot fi folosite pentru a obține informații privind structura atomului sau moleculei țintă. Acest proces este cunoscut sub numele de difracție de electroni indusă de lumină (light induced electron diffraction - LIED)[2, 3, 4, 5, 6]. În caz de LIED, sub anumite circumstanțe, este posibil ca pe lângă pachetul de undă de semnal (diffractat) o a doua undă de referință (neîmprăștiată) să fie prezent. Interferența dintre aceste două pachete de unde conduce la apariția unei structuri de franje radiale în distribuția după impulsuri al electronilor liberi [7, 8, 9], care poate fi interpretată ca imaginea holografică (holographic mapping - HM) a stării țintei.

Durata de timp aproape a toate fenomenelor care au loc în lumea cuantică este în regimul femtosecundelor sau mai jos. În scopul de a investiga aceste procese rapide, o înaltă rezoluție temporală a tehnicilor de detecție este necesară. Această rezoluție potrivită a devenit disponibilă cu dezvoltarea pulsurilor laser ultrascurte. În acest fel, este posibil să se urmărească mișcarea atomilor individuali din molecule în timpul reacțiilor chimice [10], sau dinamica electronilor legați în atomi și molecule [11, 12].

Subiectul tezei de față este investigarea sistemelor atomice iradiate de pulsuri laser EUV intense cu două perioade optice. Datorită caracteristicilor luminii laser folosite, forța câmpului corespunzător este comparabilă cu cea a legăturii Coulombiene dintre electroni și nucleu, astfel un număr mare de fenomene non-perturbative pot avea loc. Acest lucru face aplicarea teoriei perturbațiilor inadecvată pentru descrierea corectă a dinamicii sistemelor, care lasă soluția numerică directă a ecuației Schrödinger dependente de timp singura abordare de încredere.

# Interacțiunea materiei cu câmpuri de radiații externe

Al doilea și al treilea capitol al tezei de față sunt destinate să servească ca o scurtă introducere în lumea interacției laser-materie. Discuția începe cu descrierea conceptelor fundamentale care duc la funcționarea laserilor. După aceasta, diferitele tehnici, cum ar fi “Q-switching”, “mode-locking”, generare de armonic superioare, și amplificarea “chirped pulse”, care sunt esențiale pentru a genera radiații ultrascurte și de înaltă intensitate sunt descrise pe scurt.

În continuare, o descriere matematică adecvată a câmpurilor laser este dat. Noțiunea de *transformare de măsură* este introdusă, apoi validitatea descrierii clasice a câmpurilor laser și a folosirii *aproximației de dipol* în calculele noastre este justificată. Ulterior, formalismul Hamiltonian, necesare pentru descrierea cuantice a interacției unei particule încărcate cu un câmp de radiații este derivat.

Deoarece tema prezentei lucrări este investigarea teoretică a ionizării atomilor, sunt prezentate diferitele mecanisme prin care ionizarea poate să apară. În funcție de parametrii câmpului laser, acestea sunt ionizare cu un singur foton, multi-foton și ionizare peste prag, ionizare prin tunelare și ionizare peste barieră.

În scopul de a studia procesele de ionizare menționate mai sus, ecuația lui Schrödinger dependentă de timp (TDSE) trebuie rezolvată. Deoarece nu există o soluție analitică, apar două alternative. Abordarea evidentă se bazează pe o soluție numerică directă. Avantajul acestei metode este că oferă rezultate exacte, cu prețul cerinței ridicate de resurse de calcul. A doua alternativă este de a considera anumite aproximări justificate. Acestea însă limitează aplicabilitatea metodei și reduce acuratețea rezultatelor, însă necesită mai puține calcule numerice. Cele mai frecvent utilizate metode aproximative (teoria perturbațiilor, modelul “essential state”, modelul Floquet, modelul Keldysh-Reiss-Faisal, modelul Coulomb-Volkov și modelul Ammosov-Delano-Krainov) sunt prezentate pe scurt, concentrându-se în principal pe avantajele și limitele lor. După acesta, atenția este îndreptată spre abordarea ab-initio folosit în lucrarea de față.

# Rezolvarea numerică al ecuației lui Schrödinger dependente de timp

Ecuția lui Schrödinger dependente de timp este o ecuație cu derivate parțiale, care conține derivare de ordinul întâi în funcție de timp și derivare până la ordinul doi față de variabila spațială. În reprezentarea coordonatelor, pentru un sistem de  $n$ -particule, acesta poate fi scris ca

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{H}}(t)\Psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

unde  $\mathbf{r}$  reprezintă vectorul de poziție a celor  $n$ -particule. O rezolvare numerică a ecuațiilor de acest tip are două aspecte cheie, și anume reprezentarea numerică a funcțiilor de undă  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  la un la un moment dat (discretizare spațială) și propagarea acestor funcții până la momentul de timp final dorit. În literatura de specialitate există numeroase metode pentru realizarea ambelor obiective, dar aici vor fi prezentate doar acelea care au fost implementate în programul nostru numeric. Numărul  $n$  de particule considerate în calcule crește dramatic cerințele de resurse computaționale necesare pentru rezolvarea problemei, ceea ce înseamnă că calculatoarele actuale sunt capabile de tratarea exactă a sistemelor care conțin cel mult doi electroni, adică atomul de heliu. Din acest motiv, în investigațiile noastre ne-am limitat la interacțiunea dintre un singur electron cu radiații externe. Această abordare este exactă pentru descrierea atomului de hidrogen. Pentru celelalte sisteme mai complexe (atomi de gaze nobile) considerate în această lucrare, am folosit aploximația singur electron activ (single active electron approximation - SAE), în cazul căruia doar electronul cel mai din afară interacționează cu câmpul laser, în timp ce ceilalți sunt incluse în calcule ca un simplu potențial de ecranare statică al nucleului.



---

## Discretizarea spațială

Funcțiile de undă asociate sistemelor cuantice acoperă un spațiu vectorial infinit dimensional de funcții pătrat integrabile numit spațiu Hilbert. Într-o soluție numerică al TDSE, datorită cantității finite de memorie disponibilă în calculatoare, funcția de undă trebuie să fie reprezentată de un set finit de valori discrete. Din acest motiv, funcția de undă  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  continuă este înlocuită în calcule cu vectori de lungimi finite ( $N$ ), în timp ce operatorii liniari, precum Hamiltonianul sau compoziții acestuia sunt reprezentați de matrici pătrate ( $N \times N$ ).

Chiar și atunci când numai un singur electron activ este considerat, soluția TDSE este o problemă în trei dimensiuni (spațiale), care este solicitant din punct de vedere computațional. Cu toate acestea, având în vedere proprietățile de simetrie ale sistemului, calculele se pot simplifica.

### Metoda “close-coupling” dependente de timp

Datorită simetriei sferice a potențialului de legătură luată în considerare în calculele noastre, este avantajos ca TDSE să fie reformulat în coordonate polare ( $\{r, \theta, \phi\}$ ). Astfel, funcția de undă poate să fie dezvoltată în baza armonicele sferice

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{R_{l,m}(r, t)}{r} Y_l^m(\theta, \phi), \quad (2)$$

care este ideea de bază a metodei “close-coupling” dependente de timp (time dependent close-coupling - TDCC) [13, 14]. Introducând această dezvoltare în unde parțiale în (1), și luând produsul inter al ambelor părți ale ecuației cu  $Y_l^{m'*}(\theta, \phi)$  obținem

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{R_{l,m}(r, t)}{r} \int Y_l^{m'*}(\theta, \phi) Y_l^m(\theta, \phi) d\Omega = \\ = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \left( \int Y_l^{m'*}(\theta, \phi) \hat{\mathbf{H}}(t) Y_l^m(\theta, \phi) d\Omega \right) \frac{R_{l,m}(r, t)}{r}, \end{aligned} \quad (3)$$

unde  $d\Omega = \sin\theta d\theta d\phi$ . În acest fel ecuația Schrödinger originală de trei dimensiuni se reduce la un set infinit de ecuații cu derivate parțiale cuplate

unidimensionale, care este mult mai ușor de manipulat decât problema originală. Desigur, în calcule practice, setul infinit este trunchiat la o anumită valoare  $l_{max}$  pentru care convergența este atinsă.

Elementele de matrice  $\langle Y_l^{m'} | \hat{\mathbf{H}}(t) | Y_l^m \rangle$  ale Hamiltonianului pot fi evaluate analitic, ceea ce duce la ecuațiile “close-coupling”

$$\begin{aligned}
 i \frac{\partial}{\partial t} R_{l,m}(r, t) = & \left[ \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{1}{r} \right] R_{l,m}(r, t) - \\
 & - qE(t)r \left[ \sqrt{\frac{(l-m+1)(l+m+1)}{(2l+1)(2l+3)}} R_{l-1,m}(r, t) + \right. \\
 & \left. + \sqrt{\frac{(l-m)(l+m)}{(2l-1)(2l+1)}} R_{l+1,m}(r, t) \right] \quad (4)
 \end{aligned}$$

pentru descrierea interacțiunii laser-electron în măsura de lungime, și

$$\begin{aligned}
 i \frac{\partial}{\partial t} R_{l,m}(r, t) = & \left[ \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{1}{r} \right] R_{l,m}(r, t) + \\
 & + i \frac{q}{m} A_z(t) \left[ \sqrt{\frac{(l-m)(l+m)}{(2l-1)(2l+1)}} \left( \frac{\partial}{\partial r} - \frac{l}{r} \right) R_{l-1,m}(r, t) - \right. \\
 & \left. - \sqrt{\frac{(l-m+1)(l+m+1)}{(2l+1)(2l+3)}} \left( \frac{\partial}{\partial r} + \frac{l+1}{r} \right) R_{l+1,m}(r, t) \right]. \quad (5)
 \end{aligned}$$

în formalismul măsurii de viteze.

## Discretizarea funcției de undă radiale

În scopul de a rezolva ecuațiile “close-coupling” prezentate mai sus, funcțiile de undă radiale  $R_{l,m}(r, t)$  trebuie să fie discretizate. În acest scop am folosit formalismul “finite element discrete variable representation” (FEDVR) [15, 16, 17, 18]. Acesta se bazează pe metoda elementelor finite (FE), care presupune divizarea spațiului configurațiilor în elemente finite. În problema noastră unidimensională acesta înseamnă că spațiul coordonatelor este împărțit în segmente cu lungimi variabile, separate printr-o serie de noduri

$$r_{min} = r^1 < r^2 < \dots < r^N = r_{max}. \quad (6)$$

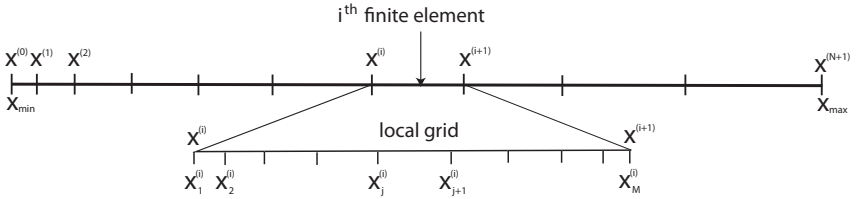


Figura 1: Grilă FE

În contrast cu reprezentările spectrale, funcția de undă nu este dezvoltată într-o bază de funcții globale, ci într-un set de funcții de bază “discrete variable representation” (DVR)  $f_m^{(i)}(r)$  locale, definite numai în interiorul finite element dat ( $f_m^{(i)}(r) = 0 \forall m$  dacă  $r \notin [r^{(i)}, r^{(i+1)}]$ ) care definește o grilă locală (vezi figura 1). Continuitatea funcției de undă este asigurată prin suprapunerea punctelor de pleccare și de terminare a subgrilelor locale învecinate, ceea ce implică utilizarea unei reguli de quadratură de integrare de tip Gauss-Lobatto. În cele din urmă, funcțiile de undă pot fi scrise ca

$$\Psi(r) = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^{M_i} w_j^{(i)} \Psi(r_j^{(i)}) f_j^{(i)}(r). \quad (7)$$

Această abordare reunește avantajele metodelor FE și DVR. Astfel, flexibilitatea oferită de metoda FE poate fi exploatată pentru a reprezenta cu exactitate singularitatea Coulombiană de la nucleu, prin alegerea unor elemente suficient de mici în imediata apropiere a nucleului (ceea ce implică o grilă densă). Acesta are și un alt avantaj. Cea mai importantă parte a dinamicii, transferul de populație dintre stările legate și tranziții legat-liber, au loc în această regiune, astfel este importantă ca funcției de undă să aibă o rezoluția bună aici. În contrast, stările libere (care se întind asupra regiunilor depărtate de nucleu) pot fi descrise suficient de bine și cu ajutorul unui număr mai mic de puncte, adică cu elemente finite mai mari. Avantajul metodei DVR este că în mod similar cu tehnicile spectrale obișnuite, acesta oferă o mai mare precizie pentru calculul derivatelor. Mai mult decât atât, în cazul metodei FEDVR, din cauza naturii locale ale funcțiilor de bază, elementele de matrice ale operatorului energiei cinetice  $D_{mn} = \left\langle f_m^{(i)}(r) \left| \frac{\partial^2}{\partial r^2} \right| f_n^{(j)}(r) \right\rangle$  sunt diferite de zero numai dacă cele două funcții de bază implicate sunt definite în același element finit ( $i = j$ ). În consecință, matricea energiei cinetice este com-

---

pusă din mai multe blocuri mici, care se suprapun la un singur punct. De asemenea, cu o aproximație bună, reprezentarea matricii operatorului de energie potențială este diagonală. Această structură rară a matricii care reprezintă Hamiltonianul poate fi exploatată pentru a reduce costurile de calcul a soluției TDSE.

## Propagare temporală

Soluția ecuațiilor diferențiale de tip (1) este cunoscut în matematică ca o *problemă de valoare inițială*. Aceasta înseamnă că la moment arbitrar (inițial) de timp  $t_0$  funcția de undă  $\Psi(\mathbf{r}, t \equiv t_0)$  este cunoscută, și prin urmare, rezolvarea ecuației este echivalentă cu determinarea evoluției temporale ale acestei stări inițiale. Funcția de undă poate să fie exprimat la un moment arbitrar de timp cu ajutorul operatorului de evoluție

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{U}}(t, t_0)\Psi(\mathbf{r}, t_0). \quad (8)$$

Acest operator de evoluție poate să fie exprimat la rândul ei ca

$$\hat{\mathbf{U}}(t + \Delta t, t) = \mathcal{T} \exp \left( -i \int_t^{t+\Delta t} \hat{\mathbf{H}}(t') dt' \right), \quad (9)$$

unde  $\mathcal{T}$  este operatorul de ordonare temporală, care trebuie să fie prezent datorită non-commutivității Hamiltonianului la diferite momente de timp ( $[\hat{\mathbf{H}}(t_1), \hat{\mathbf{H}}(t_2)] \neq 0$ ). Evaluarea directă a ecuației de mai sus este inconvenient, prin urmare, în toate cazurile practice, intervalul de timp peste care TDSE trebuie rezolvată este împărțit în subintervale în care Hamiltonianul nu se schimbă semnificativ. În consecință, operatorul de evoluție corespunzător subintervalelor individuale se reduce la

$$\hat{\mathbf{U}}(t + \Delta t, t) \simeq \exp \left( -i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t \right). \quad (10)$$

Cu acest rezultat, soluția TDSE se obține prin aplicarea succesivă a operatorului de evoluție potrivită asupra funcției de undă inițiale

$$\begin{aligned} \Psi(\mathbf{r}, t_0 + n\Delta t) &= \exp \left[ -i\hat{\mathbf{H}}(t_0 + (n-1)\Delta t)\Delta t \right] \times \dots \\ &\times \exp \left[ -i\hat{\mathbf{H}}(t_0 + \Delta t)\Delta t \right] \exp \left[ -i\hat{\mathbf{H}}(t_0)\Delta t \right] \Psi(\mathbf{r}, t_0). \end{aligned} \quad (11)$$

---

În scopul de a evalua partea dreaptă a ecuației (11), trebuie să știm cum se aplică exponențialul unui operator asupra funcției de undă. Un asemenea exponențial poate să fie dezvoltată în serie Taylor ca

$$\exp\left(-i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t\right) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \left(-i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t\right)^n, \quad (12)$$

astfel, acțiunea exponențialului asupra funcției de undă poate să fie evaluată ușor deoarece operatorul la o anumită putere nu este altceva decât

$$\begin{aligned} \left(-i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t\right)^n \Psi(\mathbf{r}, t) = \\ \underbrace{\left(-i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t\right) \times \dots \times \left(-i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t\right)}_{n \text{ times}} \Psi(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (13)$$

Această schemă de propagarea temporală este cunoscut sub numele de *propagator Taylor*.

Există un alt mod, mai direct, pentru a evalua partea dreaptă a ecuației (11). Acesta se obține prin evaluarea explicită a exponențialului  $\exp\left(-i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t\right)$ , care duce la

$$\begin{aligned} \exp\left(-i\hat{\mathbf{H}}(t)\Delta t\right) \Psi(\mathbf{r}, t) = \\ \left[\Phi^{-1} \text{diag}\left(e^{-iE_1\Delta t}, e^{-iE_2\Delta t}, \dots\right) \Phi\right] \Psi(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (14)$$

schemă de propagare, unde  $\Phi$  este matricea coloană construită din vectorii proprii  $\Phi_k$  ai Hamiltonianului, în timp ce  $\text{diag}\left(e^{-iE_1\Delta t}, e^{-iE_2\Delta t}, \dots\right)$  este matricea diagonală construită din exponențialele energiilor proprii.

Folosirea acestei abordări este prea solicitantă din punct de vedere computațional deoarece necesită diagonalizarea unei matrici foarte mari la fiecare pas temporal. Din acest motiv am implementat metoda *Lanczos*, care este abordarea cea mai eficientă folosită de grupurile principale care lucrează pe investigarea teoretică a interacțiunii laser-materie. Primul pas al metodei este generarea subspațiului Krylov  $K_{n+1}$  de dimensiune  $n+1$  acționând repetat cu Hamiltonianul sistemului pe funcția de undă inițială  $|\Psi_0\rangle = \Psi(\mathbf{r}, t)$

$$\begin{aligned} K_{n+1} = \left\{ |\Psi_0\rangle, \hat{\mathbf{H}}|\Psi_0\rangle, \hat{\mathbf{H}}^2|\Psi_0\rangle, \dots, \hat{\mathbf{H}}^n|\Psi_0\rangle \right\} \\ = \left\{ |\Psi_0\rangle, |\Psi_1\rangle, |\Psi_2\rangle, \dots, |\Psi_n\rangle \right\}. \end{aligned} \quad (15)$$

Pe urmă, procedeul Gram-Schmidt este folosit pentru a obține un set ortonormat de vectori care acoperă subspațiul  $K_{n+1}$

$$\mathcal{Q}_{n+1} = \{|q_0\rangle, |q_1\rangle, |q_2\rangle, \dots, |q_n\rangle\}. \quad (16)$$

Astfel, este posibil ca Hamiltonianul să fie transformat într-o matrice  $(n+1) \times (n+1)$  dimensională  $\hat{\mathbf{h}}$  în baza  $\mathcal{Q}_{n+1}$

$$\hat{\mathbf{H}} \simeq \hat{\mathbf{H}}^Q = \mathbf{Q}\hat{\mathbf{h}}\mathbf{Q}^\dagger, \quad (17)$$

unde  $\mathbf{Q}$  este matricea coloană formată din vectorii  $q_k$ . În consecință, operatorul de evoluție este aproximată ca

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{U}}(t + \Delta t, t) &\simeq \hat{\mathbf{U}}^Q(t + \Delta t, t) = \exp\left(-i\hat{\mathbf{H}}^Q\Delta t\right) = \mathbf{Q}\exp\left(-i\hat{\mathbf{h}}\Delta t\right)\mathbf{Q}^\dagger \\ &= \mathbf{Q}\left[\Phi^\dagger \text{diag}\left(e^{-i\epsilon_1\Delta t}, \dots, e^{-i\epsilon_{n+1}\Delta t}\right)\Phi\right]\mathbf{Q}^\dagger. \end{aligned} \quad (18)$$

Ultima egalitate arată că metoda Lanczos este atât de atractivă pentru că exponențialul lui  $-i\hat{\mathbf{h}}\Delta t$  poate să fie calculată ușor conform ecuației (14), deoarece  $n \ll N$ , unde  $N$  este dimensiunea Hamiltonianului discretizat. Propagarea temporală poate să fie simplificată în continuare folosind proprietatea de asociativitate a multiplicării matrix-matrix

$$\begin{aligned} \Psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) &= \hat{\mathbf{U}}^Q(t + \Delta t, t)\Psi(\mathbf{r}, t) \\ &= \mathbf{Q}\left\{\Phi^\dagger \text{diag}\left(e^{-i\epsilon_1\Delta t}, \dots, e^{-i\epsilon_{n+1}\Delta t}\right)\left[\Phi\left[\mathbf{Q}^\dagger q_0\right]\right]\right\}, \end{aligned} \quad (19)$$

și datorită ortonormalității vectorilor  $q$ , această expresie se reduce la

$$\begin{aligned} \Psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) &= \mathbf{Q}\left[\Phi^\dagger \text{diag}\left(e^{-i\epsilon_1\Delta t}, \dots, e^{-i\epsilon_{n+1}\Delta t}\right)\Phi_1\right] \\ &= \sum_{k=0}^n a_k |q_k\rangle, \end{aligned} \quad (20)$$

unde  $\Phi_k$  este coloana  $k$  a matricii  $\Phi$  formată din vectorii proprii al lui  $\hat{\mathbf{h}}$ , iar coeficienții de dezvoltare sunt obținuți ca

$$\begin{aligned} a_k &= \Phi_{k+1} \text{diag}\left(e^{-i\epsilon_1\Delta t}, \dots, e^{-i\epsilon_{n+1}\Delta t}\right)\Phi_1 \\ &= \sum_{j=1}^{n+1} \Phi_{k+1}(j)e^{-i\epsilon_j\Delta t}\Phi_1(j). \end{aligned} \quad (21)$$

## Calcularea observabilelor

Cea mai completă informație, care poate să fie obținută despre un proces de ionizare este conținut în distribuția total diferențială a electronilor ejectați. Noi am calculat această cantitate proiectând funcția de undă pe funcții de continuu  $\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ , care duce la

$$\begin{aligned} \frac{dP}{d\mathbf{k}} &= |\langle \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) | \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle|^2 \\ &= \left| \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{1}{k} i^{-l} e^{i\sigma_l} Y_l^m(\hat{\mathbf{k}}) \int_0^{\infty} \phi_{k,l}(r) R_{l,m}(r, t) dr \right|^2. \end{aligned} \quad (22)$$

Pentru un potențial simplu Coulombian (ionizarea atomului de hidrogen), aceste funcții se obțin analitic (funcții Coulombiene regulate). În cazul calculului nostru care folosesc aproximația SAE pentru descrierea sistemelor mai complexe, funcțiile de continuu au fost obținute prin rezolvarea numerică a ecuației Schrödinger independente de timp cu metoda Numerov. Distribuțiile total diferențiale au fost după aceea folosite pentru calcularea altor cantități relevante.

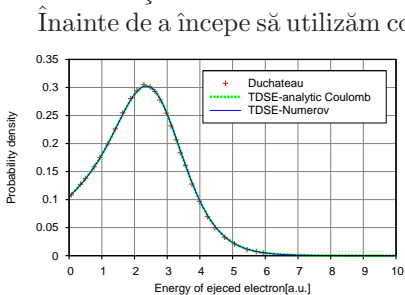


Figura 2: Spectrul energetic a electronilor ejectați: + Duchateau *et. al.*; TDSE-analitic Coulomb; TDSE-Numerov

Înainte de a începe să utilizăm codul numeric nou construit, fiabilitatea lui trebuia testat. Din acest motiv, am efectuat teste de convergență extensive, adică am studiat modul în care schimbarea parametrilor numerici afectează calitatea rezultatelor. Acești parametri sunt determinați în principal de parametrii pulsului laser considerat, și sunt următoarele: dimensiunea cutiei de simulare, densitatea grilei numerice, și mărimea pasului temporal folosit în propagare. Am constatat că pentru parametrii aleși în mod corespunzător, rezultatele noastre sunt limitate doar de precizia calculatoarelor. În scopul de a valida în continuare implementarea noastră, am comparat rezultatele produse cu cele obținute de la un alt cod scris independent [19]. După cum se vede în figura 2, o concordanță excelentă a fost găsită.

# Ionizarea atomilor prin pulsuri laser cu puține perioade optice

Scopul lucrării de față este investigarea diverselor structuri care apar în distribuția după impulsuri total diferențială a fotoelectronilor, și determinarea originii acestora. Pentru a realiza acest lucru, am folosit pulsuri laser ultrascurte cu două perioade optice descrise de

$$\mathbf{E}(t) = \begin{cases} \hat{\mathbf{e}}E_0 \sin^2\left(\frac{\pi t}{\tau}\right) \sin(\omega t + \varphi_0), & 0 \leq t \leq \tau \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases}, \quad (23)$$

care este o undă purtătoare plană modulată de o funcție învelitoare sin-pătratică. Am ales faza purtător-învelitoare de a fi

$$\varphi_0 = -\frac{\omega\tau}{2} - \frac{\pi}{2} \quad (24)$$

în scopul de a descrie un puls laser simetric în timp (maximumul unei purtătoare coincide cu maximumul funcției învelitoare).

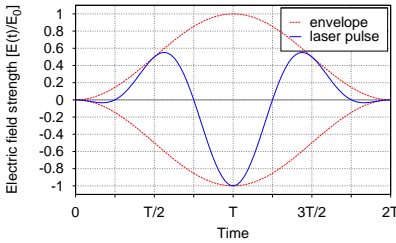


Figura 3: Profilul temporal al pulsului laser folosit în calculele noastre, unde  $T = 2\pi/\omega$  este perioada unei purtătoare.

la funcția de undă dependente de timp. În scopul de a identifica procesele care au loc în timpul interacțiunii dintre atomul țintă și câmpul laser, am folosit aceste funcții de undă pentru a calcula diverse cantități fizice. În figura 4 imagini ale evoluției temporale a distribuției electronilor liberi

Profilul temporal al componentei electrice al unui asemenea puls laser este prezentat în figura 3. Am folosit pulsuri laser linear polarizate în direcția  $z$ , și am ales pentru frecvența unei purtătoare  $\omega = 0.4445$  a.u., care corespunde unei lungimi de unde  $\lambda = 102$  nm, iar amplitudinea câmpului electric a fost  $E_0 = 1$  a.u., care corespunde unei intensități  $I = 3.51 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. În timpul rezolvării TDSE (propagare temporală) avem acces în fiecare moment



sunt prezentate în funcție de componentele paralele ( $k_{par}$ ) și perpendiculare ( $k_{per}$ ) față de direcția de polarizare ale impulsului. Asupra fiecărei imagini, este prezentat pulsul laser cu o linie verticală indicând momentul de timp când imaginea a fost făcută.

La începutul pulsului ( $t < 5$  a.u.), distribuția electronilor liberi este de tip dipol (vezi figura 4a)) ceea ce indică ionizare cu un singur foton. Uitănd însă la figura 5 unde probabilitatea totală de ionizare este prezentată în funcție de timp, putem trage concluzia că contribuția generală al acestui proces este neglijabilă. Progresând mai departe în timp, puterea câmpului laser trece printr-o creștere rapidă, care duce la o creștere bruscă

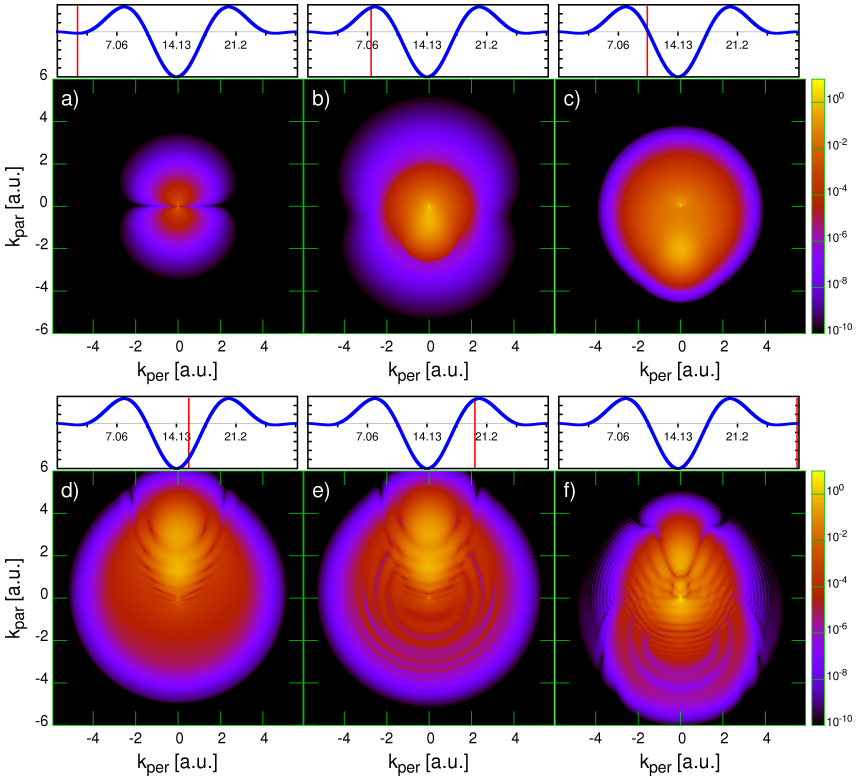


Figura 4: Distribuția după impulsuri a electronilor liberi în funcție de componentele paralele și perpendiculare ale impulsului la diferite momente de timp, indicate de liniile verticale pe pulsul laser.

a probabilității totale de ionizare între  $t \approx 5$  și 10 a.u. Distribuțiile după impulsuri corespunzătoare arată că fotoelectronii sunt emiși în principal în direcția de polarizare a câmpului laser, și prezintă o asimetrie înaintea-înapoi puternică (vezi figura 4 b)-c)). Aceasta indică faptul că procesul dominant de ionizare este tunelarea și ionizare peste barieră. Am calculat valoarea puterii câmpului critical la care OBI apare. Momentele la care

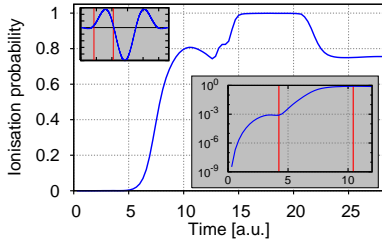


Figura 5: Probabilitate de ionizare totală în funcție de timp. Subfiguri: pulsul laser (stânga sus); probabilitate totală de ionizare pe scală logaritmică. Liniile verticale roșii pe fiecare subfigură indică momentele când condiția pentru OBI este satisfăcută.

pulsul laser atinge aceste valori sunt indicate de linii verticale roșii pe subfigurile din figura 5, unde, pentru o inspecție mai atentă, probabilitatea totală de ionizare este reprezentată pe scală logaritmică. Se poate observa că ionizarea rapidă a țintei are loc în intervalul de timp când condiția  $E > E_{crit}$  este satisfăcută, ceea ce consolidează faptul că mecanismul de ionizare este OBI. Pachetele de undă electronice rezultante se mișcă sub acțiunea combinată a câmpurilor electrice create de ionul părinte și pulsul laser. Inițial, sub acțiunea câmpului laser, acestea se

deplasează din vecinătatea ionului părinte (figura 4 c)). În continuare, când direcția câmpului se schimbă, ele sunt conduse înapoi la nucleu, și o structură caracteristică radială apare în distribuția după impulsuri (figura 4 d)). Aceasta poate fi atribuită împrăstierii pachetelor de undă pe ionul părinte. Mai târziu, apar inele concentrice de minime și maxime în densitatea de probabilitate de ionizare (vezi figura 4 e)). Această structură poate fi atribuită unei interferențe temporale, adică suprapunerii coerente a unor pachete de unde eliberate la momente diferite din atom de pulsul laser. Până la acest moment toate caracteristicile dominante apar în distribuția după impulsuri. Modificările minore rămase sunt datorate mișcării ulterioare a electronilor și datorită recombinării care apare la sfârșitul ( $t > 21$  a.u.) pulsului laser (figura 4f)).

## Interferență temporală

După cum a fost menționat în secțiunea anterioară, cercurile concentrice de maxime și minime din figura 4 e) pot fi explicate ca rezultatul interferenței dintre pachete de unde electronice emise de diferite părți ale pulsului laser, adică la diferite momente de timp. Acest proces poate fi interpretat ca o interferență de dublă (multi-) fantă în timp [20], și a fost studiat în detaliu de către mai multe grupuri atât teoretic [9, 21, 22, 23], cât și experimental [20, 24]. O analiză cantitativă mai detaliată a procesului poate fi efectuată folosind aproximația câmpului puternic (strong field approximation - SFA). În acest formalism, efectul potențialului Coulombic al nucleului asupra electronilor liberi este neglijat. Primul pachet de undă este emis în momentul  $t_1$  cu impulsul  $\mathbf{k}_1(t_1)$ , iar al doilea în  $t_2$  cu  $\mathbf{k}_2(t_2)$ , și sunt adunate coerent în continuu dacă condiția

$$\mathbf{k}_1(t_2) = \mathbf{k}_2(t_2) \quad (25)$$

este satisfăcută. În cadrul SFA diferența de fază dintre cele două pachete de undă poate fi calculată, iar structura de interferență temporală este obținută ca

$$I(\mathbf{k}, t_1, t_2) \sim \left| 1 + e^{i\Delta\phi(\mathbf{k}, t_1, t_2)} \right|. \quad (26)$$

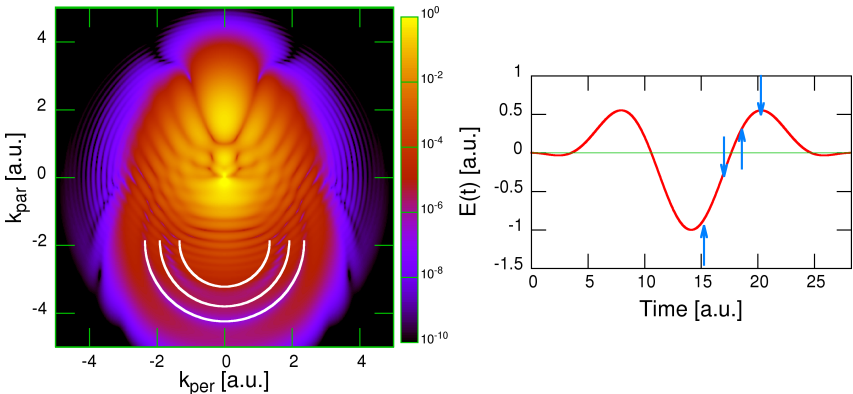


Figura 6: Inele de interferență SFA (cercuri albe) deasupra densității de probabilitate de ionizare TDCC reprezentată în funcție de componentele paralele și perpendiculare ale impulsului. Pe figura din dreapta săgețile “sus” indică perechea  $\{15.25, 18.59\}$ , în timp ce săgețile “jos” indică perechea  $\{17.00, 20.26\}$  de valori  $\{t_1, t_2\}$

---

Prin potrivirea structurii de interferență SFA din ecuația (25) la cel obținut prin calculele exacte TDCC (figura 4 e)), am putut calcula timpurile  $t_1$  și  $t_2$  de emisie ale pachetelor de undă care interferează. Am găsit două astfel de perechi de valori  $\{t_1, t_2\}$  (vezi figura 6 partea dreaptă). În partea stângă a figurii 6 se pot observa inelele SFA (indicate prin cercuri albe), care sunt în concordanță bună cu rezultatele TDCC.

## Interferență spațială

Acum, să ne îndreptăm atenția spre celelalte, mai prominente structuri ale distribuției după impulsuri a electronilor liberi, prin revizuirea în primul rând a procesului care duce la formarea ei. Conform modelului “trei pași”, atunci când un atom sau moleculă este iluminată cu o radiație laser suficient de intensă, pachete de unde electronice libere sunt emise prin tunelare sau ionizare peste-barieră. Sub acțiunea câmpului extern ele sunt mai întâi accelerate departe de miez, apoi, după schimbarea direcției câmpului, ele sunt întoarse. Pachetele de undă care reîntorc cu impuls transversal mic ajung în imediata vecinătate a ionului țintă și interacționează cu el. Această interacțiune poate duce la diferite procese cum ar fi recombinare sau împrăștierea pachetului de undă. Atunci când recombinație are loc, surplusul de energie a electronilor, câștigat de la câmpul laser, este eliberat prin emiterea unui foton de mare energie. Acest proces este cunoscut sub numele de generare de armonice superioare.

Alternativ, pachetul de undă poate să se împrășteie pe ion. Deoarece pachetele de undă electronice induse de laser sunt pe deplin coerente, în spectrele dependente de unghiuri a fotoelectronilor, această împrăștiere se manifestă sub forma unor structuri de difracție. Mai mult decât atât, cum pachetele de undă se mișcă în câmpul creat de ionul părinte, ele codifică informația spațială al acestui câmp, care poate fi recuperată din structura de difracție rezultantă. Acest proces de auto-imagistică este cunoscut sub numele de difracție electronică indusă de laseri (laser induced electron diffraction - LIED) [2, 3, 4, 5].

Articole recente [7, 8, 9] au sugerat că structura radială prezentă în distribuția după impulsuri a electronilor liberi provine dintr-un proces alternativ la LIED. În acest scenariu împrăștierea pe ionul părinte are în continuare un rol central, însă aspectul crucial este diferența dintre fazele finale acumulate de pachetele de undă electronice emise în aceeași sferă de perioadă a pulsului laser, dar care urmează două căi

diferite. În [7] a fost subliniat, că sub condiții adecvate, numai una dintre traiectoriile menționate mai sus implică coliziune cu ionul părinte, în timp ce pachetul de undă cu impuls transversal mai mare, care urmează cealaltă traiectorie, se propagă fără a fi afectat de potențialul ionului.

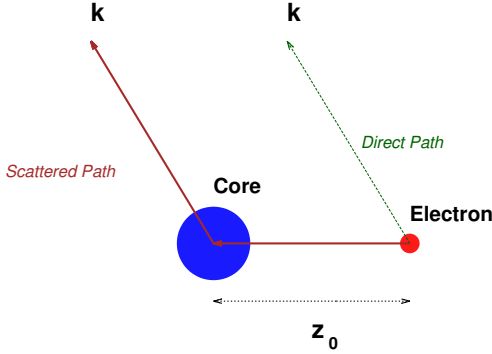


Figura 7: Traiectoria electronică directă și împrăștiată din modelul două-căi.

acțiune scurtă care descrie structura țintei, HM este un potențial instrument puternic pentru investigarea structurii dinamice a atomilor și moleculelor.

În publicația lor [7], Huismans *et. al* a propus un model intuitiv simplu care cuprinde ideea esențială HM. În modelul lor pachetele de undă sunt formate prin tunelare și apar la o distanță  $z_0$  de nucleu, și pot urma fie o traiectorie directă sau una împrăștiată, așa cum este prezentat schematic în figura 7. Dacă ionul este considerat ca fiind un punct uniform de împrăștiere, diferența de fază acumulată de electronii asociați cu cele două traiectorii posibile, poate fi calculată analitic ca

$$\Delta\phi = (k - k_z)z_0, \quad (27)$$

unde  $k$  este impulsul final,  $k_z$  este componenta impulsului în direcția  $z$ , iar  $z_0$  este distanța de punctul de împrăștiere. Cu această expresie, structura de interferență spațială poate fi obținută ca

$$I(\mathbf{k}) \sim \left| 1 + e^{i(k-k_z)z_0} \right|. \quad (28)$$

Cheia la HM este existența undei de semnal și de rederință distincte, care se realizează în cazul în care electronii liberi apar prin tunelare la o

Deoarece undele electronice libere induse de laser sunt complet coerente, conceptul holografiei poate să fie utilizată pentru interpretarea structurii de interferență din distribuția după impulsuri ca imaginea holografică (holographic mapping - HM) a stării atomului sau moleculei țintă. Deoarece poziția și forma acestor structuri de interferență este influențată puternic de potențialul cu rază de

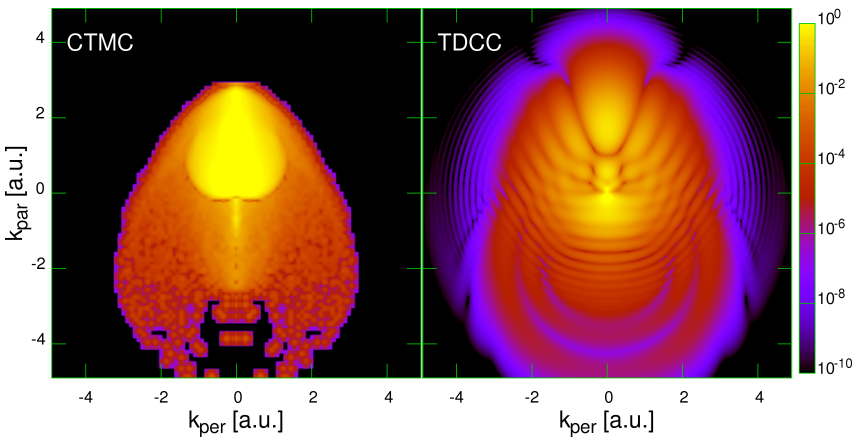


Figura 8: Densitate de probabilitate de ionizare în funcție de componentele paralele și perpendiculare ale impulsului obținute în cadrul modelelor CTMC și TDCC

distanță  $z_0$  mare de nucleu. După cum am văzut, în cazul parametrilor pulsului laser utilizate în calculele noastre, pachetele de undă se formează prin OBI, ceea ce înseamnă că ele apar în imediata vecinătate a nucleului. Cu toate acestea, sub acțiunea câmpului ele se îndepărtează la o anumită distanță de ionul părinte înainte de a fi redirectionate. Prin urmare, modelul două-căi este aplicabilă și pentru investigațiile noastre.

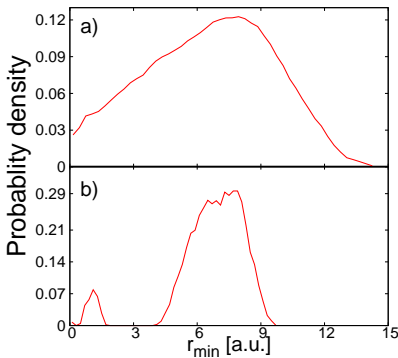


Figura 9: Distribuția valorilor  $r_{min}$  pentru (a) toate traiectoriile CTMC, și (b) traiectorii CTMC cu  $0.5 < k_{per} < 0.7$  și  $0.7 < k_{par} < 0.9$ . Distribuțiile au fost normalate la 1.

Pentru a testa validitatea ipotezei de bază a modelului două-căi, adică existența celor două traiectorii distincte, colaboratorul nostru extern Károly Tőkési a efectuat calcule în cadrul metodei traiectorii clasice Monte Carlo (CTMC) [25]. Cu excepția efectelor de interferență, care au origini cuantice, o concordanță generală bună a fost observată între rezultatele obținute prin metoda TDCC și cea CTMC (vezi figura 8). Această concordanță ne-a permis să efectuăm o analiză detaliată asupra traiectoriilor CTMC.

---

Dintre aceste traiectorii am selectat acelea care contribuie la formarea structurii HM, mai exact acelea unde electronul a fost ionizat la începutul pulsului laser și apoi a fost redirectionat spre ionul părinte. Pentru fiecare dintre aceste traiectorii am calculat distanța minimă  $r_{min}$  dintre nucleu și electroni în faza de întoarcere. Dacă sunt luate în considerare toate traiectoriile selectate, distribuția valorilor  $r_{min}$  obținute este largă (vezi figura 9 (a)), fără nici o trăsătură caracteristică. Însă, dacă luăm în considerare numai acele traiectorii CTMC pentru care impulsul asimptotic este fixat (acestea sunt cele care interferă între ele), distribuția se schimbă complet. Vom avea două grupuri de traiectorii bine separate (vezi figura 9 (b)): cele cu  $r_{min}$  mici sunt considerate împrăștiate, iar cele cu  $r_{min}$  mare considerate directe. Prin urmare, aceste rezultate confirmă ipoteza modelului două-căi.

## Influența parametrilor pulsului laser

Principala predicție a modelului două-căi este faptul că densitatea franjei de interferență HM este determinată de valoarea  $z_0$ , adică cât dedeparte se duc pachetele de undă eliberate de la ionul părinte înainte de recoliziune. Conform ecuației 27, cu creșterea lui  $z_0$  structura de interferență HM devine mai densă. Valoarea lui  $z_0$  depinde în principal de valoarea vitezei medie a pachetului de undă electronică, și de timpul aflat la dispoziția pachetului de undă pentru a se distanța de ionul părinte înainte de a fi returnat. Prin schimbarea parametrilor pulsului laser suntem capabili să controlăm atât viteza cât și timpul de revenire a pachetelor de undă, influențând astfel  $z_0$  indirect.

În primul rând, am fixat frecvența câmpului laser la  $\omega = 0.4445$  a.u. și am redus treptat amplitudinea pulsului de la  $E_0 = 1$  a.u. până la  $E_0 = 0.1$  a.u.. Procedând în acest fel, am redus viteza medie a pachetelor de undă, și implicit  $z_0$ . În continuare, am fixat viteza pachetelor de undă prin fixarea transferului de impuls  $\Delta k \sim E_0 T$  de la o semiperioadă a câmpului laser la electroni, și prin creșterea perioadei pulsului am mărit intervalul de timp disponibil pentru depărtarea electronilor de la nucleu. Acest lucru crește în mod inerent distanța  $z_0$  atinsă de pachetele de undă înainte de întoarcere. Comportamentul structurii HM obținut pentru diferitele parametre ale câmpului a fost în concordanță calitativă bună cu predicțiile modelului două-căi, adică creșterea lui  $z_0$  a condus la creșterea densității structurii HM.

Pentru caracterizarea completă a pulsurilor laser ultracurte care conțin

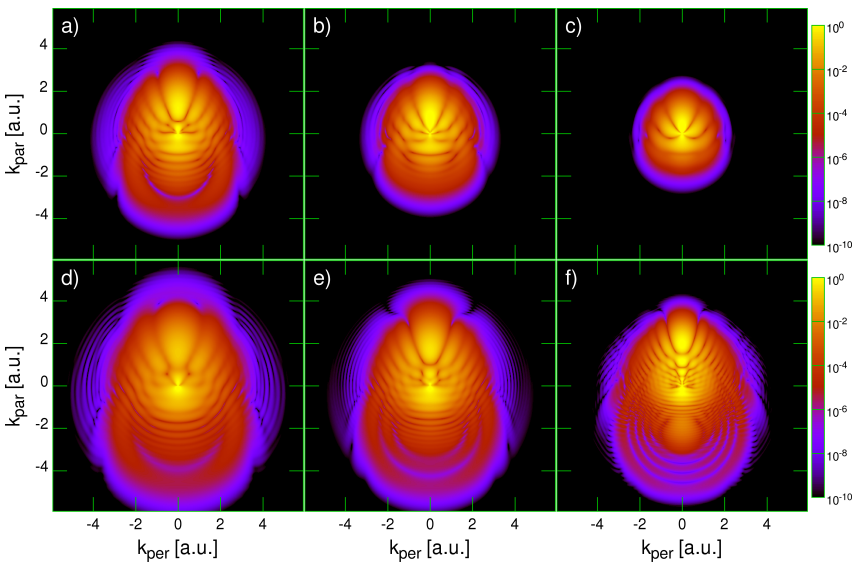


Figura 10: Densitate de probabilitate de ionizare în funcție de componentele paralele și perpendiculare ale impulsului pentru diferite parametri ai pulsului. Rândul superior:  $\omega = 0.4445$  a.u. fixat,  $\tau = 28.27$  a.u.; (a)  $E_0 = 0.75$  a.u.; (b)  $E_0 = 0.5$  a.u.; (c)  $E_0 = 0.25$  a.u.; Rândul inferior: transferul de impuls de la o jumătate de perioadă al câmpului la electron este ținut constant  $\Delta k \simeq E_0 T / 2 = 7.06$  a.u.; (d)  $\omega = 0.66675$  a.u.,  $\tau = 18.84$  a.u.,  $E_0 = 1.5$  a.u.; (e)  $\omega = 0.4445$  a.u.,  $\tau = 28.27$  a.u.,  $E_0 = 1$  a.u.; (f)  $\omega = 0.22225$  a.u.,  $\tau = 56.51$  a.u.,  $E_0 = 0.5$  a.u..

doar câteva oscilații ale câmpului, trebuie cunoscut de asemenea și faza purtător-învelitoare (CEP). Pentru a investiga dependența structurii HM de CEP, am efectuat calcule pentru ionizarea atomului de H cu pulsuri laser având două perioade și frecvență purtătoare  $\omega = 0.4445$  a.u. la mai multe valori CEP  $\varphi_0 \in \{0^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ, 120^\circ, 150^\circ\}$ . Distribuțiile după impulsuri a electronilor liberi obținute pentru  $E_0 = 1$  a.u. sunt prezentate pe figura 11. Se poate observa că forma câmpului este foarte sensibilă la CEP, și ca rezultat, întreaga dinamică a sistemului este modificată când diferite valori CPE sunt considerate. Am constatat că în scopul de a obține o structură de interferență HM clară, este de dorit ca doar o singură împrăștiere pe nucleu să aibă loc, ceea ce este cazul pentru pulsuri laser cu asimetrie mare între vârfurile pulsului învecinate, care se întâmplă predominant în regiunea CEP  $60^\circ \leq \varphi_0 \leq 90^\circ$ .

Am continuat să studiem structura HM a atomului de hidrogen prin utilizarea unei configurații simple “pump-probe” (vezi figura 12), care



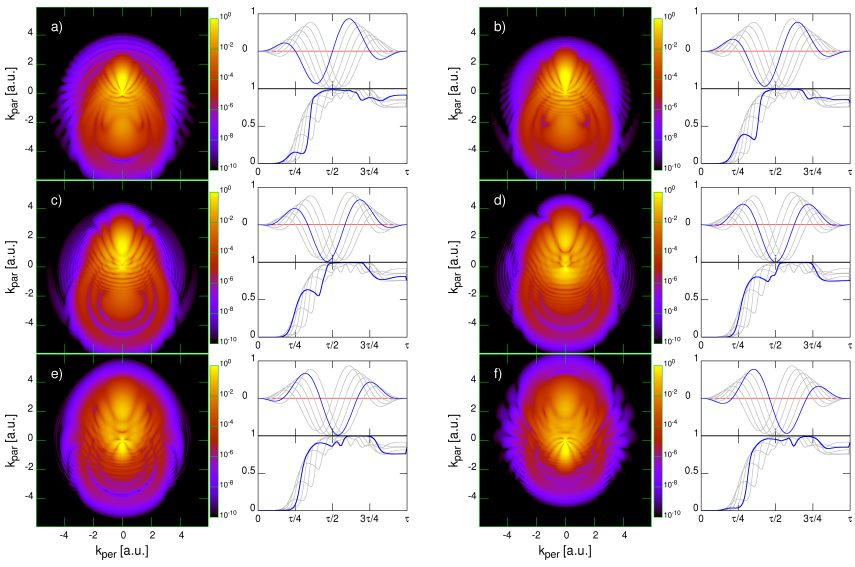


Figura 11: Distribuția după impulsuri a electronilor liberi în funcție de componentele paralele și perpendiculare a impulsului la sfârșitul pulsului laser cu două perioade optice și  $\omega = 0.4445$  a.u. respectiv  $E_0 = 1$  a.u. pentru următoarele valori CEP: a)  $\varphi_0 = 0^\circ$ , b)  $\varphi_0 = 30^\circ$ , c)  $\varphi_0 = 60^\circ$ , d)  $\varphi_0 = 90^\circ$ , e)  $\varphi_0 = 120^\circ$ , f)  $\varphi_0 = 150^\circ$ . La dreapta fiecărei distribuții după impulsuri profilul temporal al câmpului  $E(t)/E_0$  corespunzător, și probabilitatea totală de ionizare ( $P(t)$ ) în funcție de timp este de asemenea prezentată.

cuprinde esența proceselor implicate. În această configurație o undă electronică este creată prin ionizarea țintei de un puls electric având doar

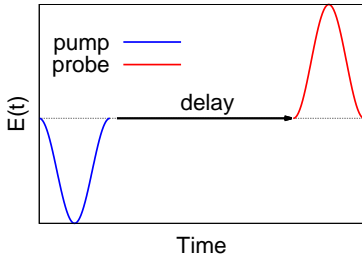


Figura 12: Forma pulsurilor electrice în configurația “pump-probe”.

o jumătate de perioadă (pulsul “pump”). Folosind un al doilea puls asemănător (pulsul “probe”), pachetul de undă anterior formată este redirecționată spre ionul părinte, unde se împrăstie, ceea ce duce la formarea structurii de interferență caracteristică în distribuția după impulsuri a electronilor liberi. Distanța medie  $z_0$  atinsă de pachetele de undă electronice libere înainte de a fi

reîntoarce de pulsul “probe” a fost direct controlată de întârzierea dintre pulsurile “pump” și “probe”. O întârziere mai mare însemna că electronii au avut mai mult timp să se depărteze de nucleu, și prin urmare, au ajuns la o distanță  $z_0$  mai mare. Am constatat că în conformitate cu concluziile noastre anterioare, și cu predicțiile modelului două-căi, cu creșterea lui  $z_0$  densitatea structurii de interferență HM de asemenea a crescut. Apoi, am investigat influența vitezei finale medie  $v_z$  a electronilor liberi pe structura HM. Acest parametru a fost controlat prin amplitudinea pulsului “probe”. Am ajuns la concluzia că  $v_z$  influențează doar forma și poziția extremelor de interferență, dar nu schimbă numărul lor.

## Influența potențialului creat de miez - Ionizarea gazelor nobile

Importanța procesului HM este că oferă informații spațiale și temporale despre ținta investigată. Deoarece pachetul de undă reîntoarșă se deplasează în potențialul ionului rezidual, informații structurale și temporale a acestui ion sunt codificate în funcția de undă a electronilor împrăștiate, cu condiția evidentă că aceștia sunt suficient de energetici (lungimile de undă de Broglie corespunzătoare trebuie să fie comparabile cu scala de lungime peste care forma structurilor investigate se schimbă). Acest lucru înseamnă că structura HM poate fi considerată ca o imagine a țintei luată la momentul recoliziunii. În atomi și molecule reale, după crearea unui pachet de undă liberă, adică ejectarea unui electron de la o stare legată în continuum, norul electronic rezidual se reglează la noua configurație. Pentru molecule această reglare se manifestă în schimbarea

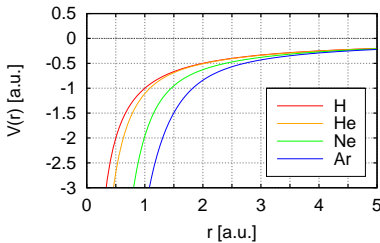


Figura 13: Potențialele SAE a diferitelor atomi de gaze nobile.

lungimii legăturilor. În conformitate cu [6], informație temporală despre evoluția structurii ionului se poate obține “luând imagini” despre țintă la diferite momente de timp. Acest lucru este ușor de realizat prin folosirea pulsurilor laser la diferite lungimi de undă.

Pentru a investiga comportamentul structurii HM la schimbarea atomului țintă, am efectuat calcule pentru diferite gaze nobile

în cadrul aproximației singur electron activ (single active electron - SAE). În acest formalism doar electronul cel mai din afară este tratat în mod explicit, în timp ce restul (dacă este cazul) doar furnizează o simplă ecranare statică nucleului. Astfel, electronul activ este inițial legat într-un atom model descris de un pseudopotential dat de

$$V(r) = -\frac{Z_c + a_1 e^{-a_2 r} + a_3 r e^{-a_4 r} + a_5 e^{-a_6 r}}{r}, \quad (29)$$

unde parametrii erau optimizați în așa fel încât să furnizeze un potențial

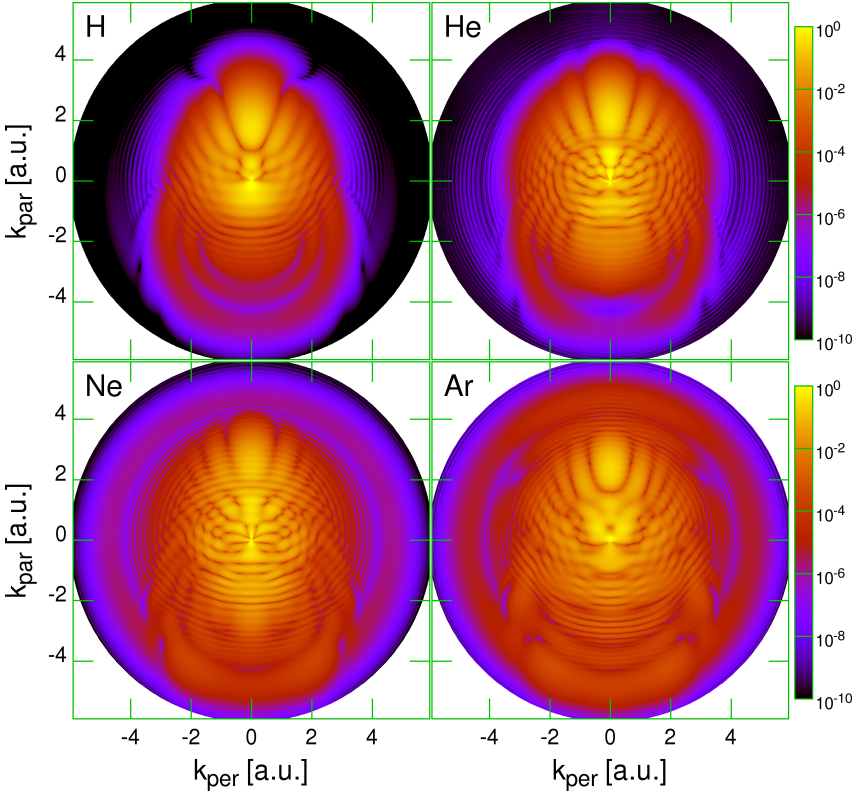


Figura 14: Distribuția după impulsuri a electronilor liberi în funcție de componentele paralele și perpendiculare ale impulsului pentru diferite atomi țintă indicate pe figuri. Parametrii pulsului laser sunt:  $E_0 = 1.00$  a.u.,  $\omega = 0.4445$  a.u.,  $\varphi_0 = 90^\circ$ .

de ionizare cât mai apropiată de valoarea exactă. Potențialele model rezultante sunt prezentate pe figura 13, unde se poate observa că acestea diferă considerabil numai în vecinătatea nucleului.

Este clar că în formalismul SAE ionii reziduali nu suferă nici o modificare structurală, astfel electronii împrăștiați simt doar potențialul Coulomb în cazul hidrogenului, și potențialul static SAE pentru celelalte gaze nobile. În figura 14 distribuția după impulsuri a electronilor liberi la sfârșitul pulsului laser cu  $\omega_0 = 0.4445$  a.u.,  $\varphi_0 = 90^\circ$  and  $E_0 = 1$  a.u. este prezentată pentru diferitele atomuri țintă. Se poate observa că potențialul întâlnit de ei are în mod clar o influență mare asupra structurii HM

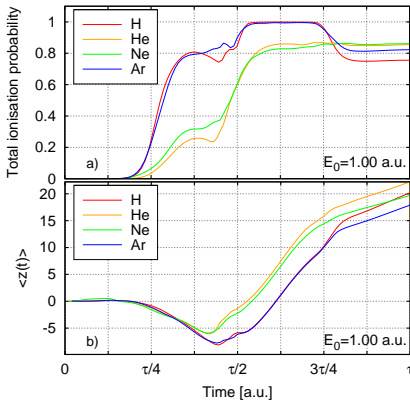


Figura 15: a) probabilități totale de ionizare în funcție de timp ; b) valoarea expectată a coordonatei  $z$  în funcție de timp pentru diferitele ținte de gaze nobile.

putem afirma este că sub acțiunea celei de-al treilea vârf al pulsului laser componentele pachetului de undă libere cu impulsuri mici, care nu se propagă prea departe de la nucleu, sunt conduse înapoi în imediata sa vecinătate. În cazul atomilor H și Ar, această parte a pachetului de undă liberă este reabsorbită (vezi scăderea probabilității totale de ionizare), pe când în cazul He și Ne ea este împrăștiată din nou, rezultând în formarea structurii HM secundare.

După cum am văzut, atomii studiați pot fi împărțiți în două grupe în funcție de dinamica pachetelor de undă electronice libere. Cu toate acestea, distribuția după impulsuri obținute pentru atomii din același grup

rezultante. Privind la figura 15, în care probabilitățile totale de ionizare și valorile așteptate ale coordonatei  $z$  sunt prezentate în funcție de timp pentru diferitele ținte considerate, se poate observa că atomul de Ar se comportă similar cu H, în timp ce comportarea atomului de He este similar cu cea a lui Ne. Diferența prominentă dintre cele două grupuri de atomi este existența unei structuri secundare de interferență în regiunea impulsurilor mici. Examinarea exactă a dinamicii pachetelor de undă care duce la formarea acestei interferențe secundare va fi subiectul cercetărilor ulterioare. Cu toate acestea, ceea ce

---

sunt diferite: structura HM obținută pentru Ar și He este mai densă decât cea obținută pentru H și He. Acest lucru poate fi explicat prin următorul raționament. Când un electron liber se îndreaptă spre ionul părinte, acesta este accelerat de potențialul ionului. În mod analog, după ce este împrăștiat și se depărtează de nucleu, este decelerat la viteza inițială. Acum, privind la figura 13, putem vedea că partea potențialului de rază scurtă a atomului de Ar și Ne este mai “adâncă” decât cea a lui H și He. Ca urmare, electronii liberi care se împrăștie pe ionul de Ar (Ne) suferă o schimbare de viteză mai mare decât cele care se mișcă în câmpul ionului de H (He). Prin urmare, ele acumulează o diferență de fază mai mare față de electronii de referință, care urmează traiectorii care nu implică coliziune cu ținta. Această diferență de fază mai mare duce în cele din urmă la o structură de interferență HM mai densă.

# Concluzii

În lucrare de față am investigat teoretic interacțiunea atomilor cu pulsuri laser liniar polarizate, ultracurte și intense. În acest scop, am utilizat metode numerice pentru soluția directă a ecuației Schrödinger dependente de timp. Majoritatea muncii a fost investită în dezvoltarea unui cod numeric nou, care este capabil de a trata orice problemă care apare atunci când un singur electron activ legat inițial într-un potențial static cu simetrie sferică interacționează cu o radiație laser liniar polarizată. Acest lucru a fost realizat în cadrul metodei TDCC prin discretizarea ecuației Schrödinger pe o grilă numerică FEDVR și prin propagarea în timp a funcției de undă a electronului activ folosind algoritmul Lanczos.

După ce am stabilit că programul nostru numeric funcționează corect prin efectuarea unor teste de convergență diverse, și comparând rezultatele obținute cu date teoretice obținute de alte grupuri, am început investigarea interacției dintre un atom de hidrogen și un puls laser EUV intens de două perioade optice. În primul rând, am identificat procesele care au loc în timpul acțiunii pulsului laser. Am constatat că cei mai mulți electroni sunt eliberate prin OBI, când intensitatea instantanee a câmpului crește peste o valoare critică. După ionizare, procese secundare pot apărea, care lasă amprenta asupra distribuției finale după impulsuri ale electronilor liberi. Am identificat două asemenea procese secundare. Prima dintre ele este o interferență temporală între pachete de undă electronice emise la momente diferite de timp, în timp ce al doilea este o interferență spațială între pachete de undă care se nasc în aceeași instanță de timp, dar urmează căi diferite. Această structură de interferență spațială poate fi considerată ca imaginea holografică al atomului țintă, ceea ce înseamnă că pe lângă dinamica electronilor liberi, informație structurală și temporală cu privire la țintă este codificată în distribuția după impulsuri. Prin efectuarea calculelor TDCC, am investigat comportamentul structurii HM în funcție de parametrii pulsului. Am constatat că dinamica pachetelor de undă electronice este influențată foarte mult de CEP. Cele mai clare structuri HM au fost observate atunci când pachetul de undă liberă a fost împrăștiat puternic numai o singură dată pe nucleu, ceea ce se întâmplă în cazul regiunii CEP  $60^\circ \leq \varphi_0 \leq 90^\circ$ . Din acest motiv, în toate calculele noastre ulterioare am folosit pulsuri laser caracterizate prin  $\varphi_0 = 90^\circ$ . Prin

---

modificarea consecutivă atât a intensității câmpului cât și a lungimii de undă a unei purtătoare, n acord cu modelul simplu de două căi din [7], am concluzionat că forma structurii HM este determinată în principal de parametrul  $z_0$ , care măsoară cât de mult se îndepărtează pachetele de undă libere de la ionul părinte înainte de a fi condus înapoi de câmpul laser. Acest rezultat a fost de asemenea validată de un set diferit de calcule, în care în loc de pulsuri cu două perioade, am folosit două pulsuri electrice de jumătate de period într-o configurație “pump-probe”, ceea ce a permis să modificăm cu ușurință  $z_0$ , precum și viteza medie a pachetului de undă reîntoarsă. În cele din urmă, în scopul de a testa sensibilitatea structurii HM spre potențialul simțit de către electronii împrăcstiați, care este aspectul esențial al acestei tehnici în ceea ce privește aplicațiile posibile, am efectuat calcule TDCC pentru atomi de He, Ne i Ar în cadrul aproximației SAE. Am constatat că potențialul de ionizare este un factor important în determinarea proceselor care apar. În consecință, atomii studiați pot fi clasificate în două grupe care prezintă dinamici similare, cu H și Ar formând unul, în timp ce He și Ne grupa cealalt. Mai important, influența potențialului static al atomilor țintă asupra structurii HM a fost confirmată.

# Bibliografie

- [1] T. H. Maiman. *Nature* (1960) **187** 493. [1](#)
- [2] M. Okunishi, T. Morishita, G. Pruper, K. Shimada, *et al.* *Phys. Rev. Lett.* (2008) **100** 143001. [2](#), [16](#)
- [3] S. Micheau, Z. Chen, A. T. Le, J. Rauschenberger, *et al.* *Phys. Rev. Lett.* (2009) **102** 073001. [2](#), [16](#)
- [4] J. Xu, Z. Chen, A.-T. Le, and C. D. Lin. *Phys. Rev. A.* (2010) **82**. [2](#), [16](#)
- [5] C. D. Lin, A.-T. Le, Z. Chen, T. Morishita, *et al.* *J. Phys. B.: At. Mol. Opt. Phys.* (2010) **43**. [2](#), [16](#)
- [6] C. I. Blaga, J. Xu, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, *et al.* *Nature* (2012) **483** 194–197. [2](#), [22](#)
- [7] Y. Huismans, A. Rouzée, A. Gijsbertsen, J. H. Jungmann, *et al.* *Science* (2011) **331** 61–64. [2](#), [16](#), [17](#), [27](#)
- [8] T. Marchenko, Y. Huismans, K. J. Schafer, and M. J. J. Vrakking. *Phys. Rev. A.* (2011) **84** 053427. [2](#), [16](#)
- [9] X.-B. Bian, Y. Huismans, O. Smirnova, K.-J. Yuan, *et al.* *Phys. Rev. A.* (2011) **84** 043420. [2](#), [15](#), [16](#)
- [10] A. H. Zewail. *J. Phys. Chem. A* (2000) **104** (24) 5660–5694. [2](#)
- [11] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, *et al.* *Nature* (2002) **419** 803. [2](#)
- [12] M. Uiberacker. *Nature* (2007) **446** 627. [2](#)



- [13] M. S. Pindzola, F. Robicheaux, S. D. Loch, J. C. Berengut, *et al.* *J. Phys. B.: At. Mol. Opt. Phys.* (2007) **40** R39–R60. [5](#)
- [14] M. S. Pindzola and F. Robicheaux. *Phys. Rev. A.* (1998) **57**. [5](#)
- [15] T. N. Rescigno and C. W. McCurdy. *Phys. Rev. A.* (2000) **62** 032706. [6](#)
- [16] C. W. McCurdy, D. A. Horner, and T. N. Rescigno. *Phys. Rev. A.* (2001) **63** 022711. [6](#)
- [17] B. I. Schneider, L. A. Collins, and S. X. Hu. *Phys. Rev. E.* (2006) **73** 036708. [6](#)
- [18] B. I. Schneider, J. Feist, S. Nagele, R. Pazourek, *et al.* *Quantum Dynamic Imaging: Theoretical and Numerical Methods.* Springer (2011). [6](#)
- [19] G. Duchateau, E. Cormier, and R. Gayet. *Eur. Phys. J. D* (2000) **11** 191. [11](#)
- [20] F. Lindner, M. G. Schätzel, H. Walther, A. Baltuška, *et al.* *Phys. Rev. Lett.* (2005) **95** 040401. [15](#)
- [21] D. G. Arbó, E. Persson, and J. Burgdörfer. *Phys. Rev. A.* (2006) **74** 063407. [15](#)
- [22] D. G. Arbó, K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, *et al.* *Phys. Rev. A.* (2010) **82** 043426. [15](#)
- [23] D. G. Arbó, K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, *et al.* *Phys. Rev. A.* (2010) **81** 021403(R). [15](#)
- [24] R. Gopal, K. Simeonidis, R. Moshhammer, T. Ergler, *et al.* *Phys. Rev. Lett.* (2009) **103** 053001. [15](#)
- [25] K. Tókési and G. Hock. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sec. B* (1994) **86** 201. [18](#)