

Univerzitet u Sarajevu
Prirodno-matematički fakultet
Odsjek za fiziku
I ciklus studija Opći smjer-Teorijska fizika

PRIMJENA METODA SEDLASTE TAČKE
KOD GENERACIJE VIŠIH HARMONIKA
NA ATOMIMA

ZAVRŠNI RAD

Mentor:
prof. dr. Senad Odžak

Kandidatkinja:
Elida Neković

Sarajevo, septembar 2015.

Univerzitet u Sarajevu
Prirodno-matematički fakultet
Odsjek za fiziku
I ciklus studija Opći smjer-Teorijska fizika

PRIMJENA METODA SEDLASTE TAČKE
KOD GENERACIJE VIŠIH HARMONIKA
NA ATOMIMA

ZAVRŠNI RAD

Mentor:
prof. dr. Senad Odžak

Kandidatkinja:
Elida Neković

Sarajevo, septembar 2015.

Zahvaljujem se svom mentoru prof. dr. Senadu Odžaku na prenesenom znanju, ukazanim smjernicama te na velikoj pomoći ukazanoj prilikom izrade ovog završnog rada

Sažetak

U ovom završnom radu razmotrena je generacija viših harmonika na atomima primjenom metoda sedlaste tačke. U prvom poglavlju uvedeni su osnovni pojmovi vezani za atom u laserskom polju. U drugom poglavlju predstavljani su atomski procesi u jakom laserskom polju, među kojima su spomenuti elektron-atomsko rasijanje, multifotonska jonizacija, jonizacija iznad praga, jonizacija iznad praga višeg reda, kao i rasijanje X-zraka na atomu u prisustvu laserskog polja. Teorijske metode u koje spadaju S -matrični formalizam i aproksimacija jakog polja, razmotrene su u ovom poglavlju. Treće poglavlje je posvećeno generaciji viših harmonika u okviru kojeg su obrađeni opći aspekti nelinearne optike te mikroskopski i makroskopski aspekti, kao i metod sedlaste tačke. U četvrtom poglavlju predstavljani su numerički rezultati i izvršena analiza istih. Peto poglavlje se odnosi na primjenu generacije viših harmonika u koju spada nelinearna optika u XUV području, interferometrija na višim harmonicima i atofizika. U posljednjem poglavlju smo izvršili kratak osvrt na ono što je rađeno u ovom završnom radu.

Sadržaj

Uvod	i
1 Atom u laserskom polju	1
1.1 Kvantizacija elektromagnetnog polja	1
1.2 Reprerentacije elektromagnetnog polja	5
1.2.1 Fockova stanja	5
1.2.2 Koherentna stanja	5
1.3 Kvantno-mehanički pristup	7
1.4 Semiklasični pristup	9
1.5 Prelazak na sistem centra masa i dipolna aproksimacija	10
1.6 Kalibracione transformacije	11
1.7 Volkovljevo rješenje	13
1.8 Mehanizmi jonizacije	14
1.8.1 Keldyshev parametar	16
2 Atomiški procesi u jakom laserskom polju	18
2.1 Elektron-atomsko rasijanje	19
2.2 Multifotonska jonizacija	21
2.3 Jonizacija iznad praga - ATI	21
2.4 Jonizacija iznad praga višeg reda - HATI	23
2.5 Rasijanje X-zraka na atomu u prisustvu laserskog polja	23
2.6 Teorijske metode opisa atomskih procesa	24
2.6.1 S -matrični formalizam i aproksimacija jakog polja	24
3 Teorijski pristup za generaciju harmonika višeg reda	30
3.1 Mikroskopski aspekt	31
3.2 Teorijske metode opisa generacije viših harmonika	33
3.2.1 S -matrični formalizam	33
3.2.2 Vremenski-zavisni dipolni matrični element	36
3.2.3 Aproksimacija jakog polja (SFA)	37
3.3 Makroskopski aspekt	42

3.4	Uloga kvantnih orbita u generaciji viših harmonika	43
3.4.1	Metod sedlaste tačke	44
4	Numerički rezultati	47
4.1	Rezultati za vodikov atom	47
5	Primjena generacije viših harmonika	55
5.1	Nelinearna optika u XUV području	55
5.2	Interferometrija	56
5.3	Atofizika	57
6	Zaključak	58

Uvod

Značajno mjesto u raznim područjima fizike zauzimaju procesi koji se dešavaju kada se atom nađe u laserskom polju, bez čijeg se prisustva isti ne bi mogli odvijati. Osnovna podjela atomskih procesa u laserskom polju je izvršena na procese asistirane laserskim poljem (*laser assisted*), koji se mogu odvijati i bez prisustva polja i procese indukovane laserskim poljem (*laser induced*), za koje je neophodno prisustvo polja. U prve procese spadaju: elektron-jonska rekombinacija, elektron-atomsko rasijanje, rasijanje X-zraka na atomu i zahvat elektrona dok u druge ubrajamo: jonizaciju iznad praga (*Above Threshold Ionization-ATI*), jonizaciju iznad praga višeg reda (*High order Above Threshold Ionization-HATI*), odvajanje iznad praga (*Above Threshold Detachment-ATD*), odvajanje iznad praga višeg reda (*High order Above Threshold Detachment-HATD*), nesekvencijalnu dvostruku jonizaciju (*Non Sequential Double Ionization-NSDI*) i generaciju viših harmonika (*High Harmonic Generation-HHG*). Pored navedenih procesa, mogući su i različiti rezonantni procesi: *Auger procesi*. To su procesi na složenijim sistemima, kao što su molekule, klasteri, površine metala itd. Utjecajem jakog laserskog polja moguće je ostvariti čitav niz novih procesa.

Kada se elektron-jonska rekombinacija odvija u prisustvu dodatnog laserskog polja, tada je osim rekombinacije elektrona i formiranja vezanog atomskog stanja moguć proces u kome se elektron prvo rasije na jonskom potencijalu, nakon čega se kreće u laserskom polju koje ga vraća do jona sa kojim se konačno rekombinuje. U slučaju elektron-atomskog rasijanja, u prisustvu laserskog polja situacija je veoma slična, s tim da se, nakon početnog rasijanja, u ovom procesu ne događa konačna rekombinacija, nego ponovno rasijanje na atomskom potencijalu. O ovim procesima će biti više govora nešto kasnije. U prisustvu jakog elektromagnetnog polja može doći i do multifotonske jonizacije i jonizacije iznad praga. U slučaju slabih vanjskih polja dolazi do izražaja jednofotonska apsorpcija i emisija, pa se ti procesi mogu opisivati pomoću računa perturbacije po interakciji s laserskim poljem. U slučaju jakih laserskih polja vjerovatnoća multifotonskih procesa je uporediva s vje-

rovatnoćom jednofotonskih i račun perturbacije ne daje dobre rezultate.

Naziv laser predstavlja akronim engleskih riječi: *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*, što znači pojačavanje svjetlosti pomoću stimulisane emisije zračenja. LASER predstavlja uređaj za emisiju elektromagnetnog zračenja, koje se karakteriše visokim stepenom monohromatičnosti, koherentnosti, usmjerenosti i velikim intenzitetom. Svjetlost emituju atomi (molekule, joni), koji uz prenos kinetičke energije na unutrašnje stanje atoma bivaju pobuđeni sudarima ili apsorpcijom fotona. Jednom pobuđen, atom emituje zračenje na dva načina, spontanom ili stimulisanom emisijom prouzrokovanom okolnim zračenjem. U prirodnim uslovima (izvan laboratorije), spontana emisija je dominantan proces. Svaki spontano emitovan foton nije u korelaciji sa susjednim fotonima. Ukupno polje zračenja stvoreno od mnoštva atoma iskazuje ovaj nedostatak korelacije preko velikih fluktuacija u intenzitetu i fazi s obzirom da individualna polja svakog atoma nepravilno interferiraju. Povećanjem broja pobuđenih atoma, atomi počinju da intereaguju preko zajedničkog polja zračenja i tada njihova dinamika zračenja postaje korelirana pošto stimulisana emisija prevladava nad spontanom. Nastaje jedna vrsta faznog prelaza u kojoj se uspostavlja zajedničko polje i proizvodi koherentna svjetlost.

A. Einstein je 1917. godine dao teorijske osnove fizike lasera u radu posvećenom procesima spontane i stimulisane emisije i apsorpcije elektromagnetnog zračenja. Prilikom proučavanja optičkih osobina gasnog pražnjena, Fabrikant je 1939. godine uočio prvo eksperimentalno pojačanje elektromagnetnog zračenja. Početkom 50-tih godina počinju intenzivna ispitivanja pojačavanja i generisanja svjetlosti. 1954. godine naučnici Townes, Gordon i Leiger napravili su prvi mikrotalasni pojačavač, sa molekulama amonijaka, koji je dobio ime *maser*, kao akronim engleskih riječi *Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation*. Nešto kasnije, nezavisno od njih sličan maser napravili su Basov i Prohorov. Schawlow i Townes su u teorijskom radu razmatrali mogućnost izgradnje uređaja sličnog maseru, ali koji bi radio u infracrvenoj i vidljivoj oblasti spektra. Praktična realizacija ove ideje ostvarena je 1960. godine kada je američki fizičar Theodore H. Maiman konstruisao generator koji radi u optičkoj oblasti spektra, impulsni rubinski laser. Prvi gasni laser sa smjesom helijuma i neona konstruisan je 1961. godine. Najintenzivnijim razvitkom laserske fizike i tehnike smatran je period od 1962. do 1968. godine.

U tom periodu napravljeni su svi osnovni tipovi lasera, među kojima su poluprovodnički CO₂, hemijski, tečni, jonski i dr. 1985. godine otkrivena je nova tehnika za ostvarivanje laserskog zračenja velike izlazne snage.

Konstruisani su laseri relativno malih dimenzija sa izlaznim snagama većim od 1 TW. Odmah nakon otkrića lasera sa slobodnom generacijom, otkrivena je tehnika Q-prekidanja, pomoću koje su ostvarene snage reda MW-a. Teravatni laserski sistem sa vremenom trajanja impulsa 1 ps i energijom od 1 J razvio je 1985. godine G. Mourou sa saradnicima koristeći tzv. CPA tehniku (*CPA-Chirped Pulse Amplification*). Suština CPA tehnike je u tome da se dobijeni laserski puls manje snage prvo vremenski proširi pomoću difrakcione rešetke ili specijalnih optičkih talasovoda, zatim pojača i na kraju sažme na početnu dužinu trajanja impulsa.

Od početka 70-tih godina pa do danas za laserske materijale se koriste različite čvrste, tečne i gasovite sredine, a parametri laserskog zračenja se neprekidno poboljšavaju, što omogućava njihovu široku primjenu u nauci, tehnici i industriji, kao i otvaranje novih područja istraživanja.

Poglavlje 1

Atom u laserskom polju

Područje interesovanja ovog završnog rada su nelinearni efekti koji se javljaju primjenom jakih laserskih polja. Pri tome, laserska polja ne smiju biti visokog intenziteta da bismo mogli koristiti odgovarajuću nerelativističku Schrödingerovu jednačinu. U ovom poglavlju izvršit ćemo pregled osnovnih pristupa vezanih za opis interakcije elektromagnetnog polja i atoma. Navest ćemo opće pojmove te oznake koje se koriste prilikom proučavanja atomskih procesa u jakom laserskom polju. Potrebno je napisati i rješavati odgovarajuće jednačine s obzirom da nas interesuje kakva je priroda interakcije laserskog polja sa atomima.

1.1 Kvantizacija elektromagnetnog polja

Kvantizacija elektromagnetnog polja se javlja kao potreba interesa za efektima u kojima dolazi do stvaranja i poništavanja fotona. Polazna tačka kvantizacije elektromagnetnog polja su klasične Schrödingerove jednačine polja. Maxwellove jednačine za slučaj bez izvora polja su:

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (1.1)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (1.2)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0 \quad (1.3)$$

$$\nabla \times \vec{H} = -\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.4)$$

gdje je $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ i $\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E}$. ε_0 i μ_0 su dielektrična permitivnost i magnetna permeabilnost vakuuma, koje su sa brzinom prostiranja svjetlosti u vakuumu c povezane relacijom $\mu_0 \varepsilon_0 c^2 = 1$.

Maxwellove jednačine 1.1-1.4 su kalibraciono-invarijantne. Coulombova kalibracija je uobičajena kalibracija, za koju vrijedi

$$\nabla \cdot \vec{A} = 0 \quad (1.5)$$

gdje je $\vec{A}(\vec{r}, t)$ vektorski potencijal preko kojeg se mogu izraziti vektor električnog polja \vec{E} i vektor magnetne indukcije \vec{B} relacijama:

$$\vec{E} = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t}, \quad (1.6)$$

$$\vec{B} = \nabla \times \vec{A}. \quad (1.7)$$

Zamjenom 1.6 i 1.7 u 1.4 dobijamo

$$\nabla^2 \vec{A}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{A}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = 0. \quad (1.8)$$

U prethodnom izrazu smo koristili identitet:

$$\nabla \times (\nabla \times \vec{v}) = \nabla(\nabla \cdot \vec{v}) - \nabla^2 \vec{v}$$

i Coulombov gauge. Jednačina 1.8 predstavlja talasnu jednačinu sa ravnim talasima kao rješenjima. Razdvajanjem vektorskog potencijala na pozitivno - frekventni dio koji zavisi od $e^{-i\omega t}$ i na negativno - frekventni dio koji zavisi od $e^{i\omega t}$, pri čemu je frekvencija $\omega > 0$, dobijamo

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{A}^+(\vec{r}, t) + \vec{A}^-(\vec{r}, t). \quad (1.9)$$

Pri tome $\vec{A}^+(\vec{r}, t)$ sadrži sve amplitude sa $e^{-i\omega t}$ za $\omega > 0$, a $\vec{A}^-(\vec{r}, t)$ sadrži sve amplitude sa $e^{i\omega t}$ i $\vec{A}^- = (\vec{A}^+)^*$. Pošto radimo sa diskretnim skupom varijabli, a ne sa čitavim kontinuumom, obično se vrši razvoj vektorskog potencijala po diskretnom nizu ortogonalnih modnih funkcija $\vec{u}_k(\vec{r})$:

$$\vec{A}^+(\vec{r}, t) = \sum_k c_k \vec{u}_k(\vec{r}) e^{-i\omega_k t}, \quad (1.10)$$

$$\vec{A}^-(\vec{r}, t) = \sum_k c_k^* \vec{u}_k^*(\vec{r}) e^{i\omega_k t}, \quad (1.11)$$

gdje su Fourierovi koeficijenti c_k konstantni za slobodno polje. Daljim uvrštavanjem 1.9 u 1.8 i uvrštavajući razvoje 1.10 i 1.11, dobijamo Helmholtzovu jednačinu za modne funkcije $\vec{u}_k(\vec{r})$

$$\left(\nabla^2 + \frac{\omega_k^2}{c^2}\right) \vec{u}_k(\vec{r}) = 0.$$

Iz Coulombove kalibracije (1.5) dobijamo uslov transverzalnosti koji mora zadovoljavati modne funkcije

$$\nabla \cdot \vec{u}_k(\vec{r}) = 0. \quad (1.12)$$

Za modne funkcije trebalo bi još naglasiti da formiraju kompletan ortonormirani niz

$$\int_V \vec{u}_k^*(\vec{r}) \vec{u}_{k'}(\vec{r}) d\vec{r} = \delta_{kk'}$$

i da zavise od graničnih uslova posmatranog fizikalnog sistema. Primjera radi, u slučaju ravnog talasa u kocki sa dužinom stranice L , modne funkcije su oblika

$$\vec{u}_k(\vec{r}) = \frac{e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}}{\sqrt{L^3}} \hat{e}_k \quad (1.13)$$

gdje je \hat{e}_k jedinični vektor polarizacije. Indeks moda $k \equiv (\vec{k}, \lambda)$ opisuje nekoliko diskretnih varijabli: polarizacioni indeks λ sa dvije moguće transverzalne polarizacije polja $\lambda = 1, 2$ i tri komponente talasnog vektora \vec{k} .

$$k_x = \frac{2\pi n_x}{L}, k_y = \frac{2\pi n_y}{L}, k_z = \frac{2\pi n_z}{L}$$

$$n_x, n_y, n_z = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$

Zbog uslova 1.12 je jasno da je jedinični vektor polarizacije \hat{e}_k okomit na talasni vektor \vec{k} , tj. $\hat{e}_k \cdot \vec{k} = 0 \Rightarrow \hat{e}_k \perp \vec{k}$. Konačno dolazimo do izraza za vektorski potencijal

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \sum_k \left(\frac{\hbar}{2\omega_k \epsilon_0}\right)^{1/2} \left[a_k \vec{u}_k e^{-i\omega_k t} + a_k^\dagger \vec{u}_k^* e^{-i\omega_k t} \right] = \sum_k \vec{A}_k(\vec{r}, t), \quad (1.14)$$

gdje je vektorski potencijal za mod $k = (k, \lambda)$

$$\vec{A}_k(\vec{r}, t) = \sum_k \left(\frac{\hbar}{2\omega_k \epsilon_0}\right)^{1/2} \left[a_k u_k(\vec{r}) e^{-i\omega_k t} + a_k^\dagger \vec{u}_k^*(\vec{r}) e^{i\omega_k t} \right], \quad (1.15)$$

a a_k i a_k^\dagger su bezdimenzionalne amplitude. One su obični kompleksni brojevi u klasičnoj elektromagnetnoj teoriji. Faktor normiranja je izabran tako da

navedene amplitude budu bezdimenzionalne. Na osnovu izraza za vektorski potencijal 1.14, korištenjem relacije 1.6, dobijamo izraz za vektor električnog polja

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = i \sum_k \left(\frac{\hbar\omega_k}{2\varepsilon_0} \right)^{1/2} \left[a_k u_k(\vec{r}) e^{-i\omega_k t} + a_k^\dagger \vec{u}_k^*(\vec{r}) e^{i\omega_k t} \right]. \quad (1.16)$$

Kvantizacija elektromagnetnog polja se ostvaruje uz uslov da su a_k i a_k^\dagger međusobno adjungirani operatori, što znači da je $a_k = (a_k^\dagger)^\dagger$. Operatori a_k i a_k^\dagger se nazivaju operatorima poništavanja (anihilacije) i stvaranja (kreacije) fotona, respektivno. Između ovih operatora vrijede komutacione relacije

$$[a_k, a_{k'}] = [a_k^\dagger, a_{k'}^\dagger] = 0, [a_k, a_{k'}^\dagger] = \delta_{kk'}.$$

Dinamičko ponašanje amplituda električnog polja se može opisati nizom nezavisnih harmonijskih oscilatora koji zadovoljavaju gornje komutacione relacije. Stanje u svakom modu može biti opisano vektorom stanja $|\psi_k\rangle$ u Hilbertovom prostoru odgovarajućem za taj mod. Stanja čitavog polja su tada definisana kao tenzorski proizvod Hilbertovih prostora za sve modove. Hamiltonijan elektromagnetnog polja je dat relacijom

$$H_{\text{EM}} = \frac{1}{2} \int (\varepsilon_0 \vec{E}^2 + \mu_0 \vec{H}^2) d\vec{r}.$$

Ukoliko iskoristimo 1.16 i izrazimo vektor magnetnog polja \vec{H} preko operatora stvaranja i poništavanja fotona, hamiltonijan poprima oblik

$$H_{\text{EM}} = \sum_k \hbar\omega_k \left(a_k^\dagger a_k + \frac{1}{2} \right). \quad (1.17)$$

Ukoliko se operator $a_k a_k^\dagger$ tretira kao novi operator, kojeg zovemo operator broja fotona i označavamo sa N_k , tada je objašnjenje dobijene relacije 1.17 sasvim jednostavno. Ukupna energija elektromagnetnog polja je suma proizvoda broja fotona u svakom modu i energije fotona u tom modu sa energijom vakuumskih fluktuacija u svakom modu, $\frac{1}{2}\hbar\omega_k$. U narednom odjeljku razmotrit ćemo dvije od tri moguće reprezentacije baza u prostoru stanja elektromagnetnog polja, a to su: Fockova stanja i koherentna stanja. Koherentna stanja su članovi općenitije klase stanja, tj. stanja sa minimalnom neodređenošću, koja se nazivaju stisnuta (*squeezed*) stanja. Ovu klasu stanja nećemo razmatrati u ovom završnom radu.

1.2 Reprezentacije elektromagnetnog polja

1.2.1 Fockova stanja

Vlastite vrijednosti Hamiltonijana 1.17 su $\hbar\omega_k(n_k + \frac{1}{2})$, gdje n_k predstavlja cijeli broj. Vlastita stanja se pišu kao $|n_k\rangle$ i nazivaju se *Fockova stanja*. Za njih se nekada kaže da su to stanja "broja zauzeća". Ta stanja su vlastita stanja operatora broja fotona $N_k = a_k^\dagger a_k$, pa je

$$a_k^\dagger a_k |n_k\rangle = n_k |n_k\rangle.$$

Vakuumsko stanje je definisano relacijom 1.20. Sa "fotonske tačke" gledišta, operatori a_k i a_k^\dagger su operatori poništavanja i stvaranja fotona sa talasnim vektorom \vec{k} i jediničnim vektorom polarizacije \hat{e}_k . Primjena ovih operatora na Fockova stanja vodi na:

$$a_k |n_k\rangle = n_k^{1/2} |n_k - 1\rangle, a_k^\dagger |n_k\rangle = (n_k + 1)^{1/2} |n_k + 1\rangle. \quad (1.18)$$

Sukcesivnom primjenom operatora stvaranja iz vakuumskog stanja mogu se dobiti bazni vektori za viša stanja

$$|n_k\rangle = \frac{(a_k^\dagger)^{n_k}}{n_k!^{1/2}} |0\rangle, n_k = 0, 1, 2, \dots \quad (1.19)$$

Fockova stanja su ortogonalna stanja i čine kompletan skup stanja

$$\langle n_k | m_k \rangle = \delta_{mn}, \sum_{n_k=0}^{\infty} |n_k\rangle \langle n_k| = 1.$$

Ovi vektori formiraju kompletan skup baznih vektora Hilbertovog prostora dok su ova stanja pogodna reprezentacija za visokoenergetske fotone (npr. γ zrake). Fockova stanja elektromagnetnog polja su iskorištena kao baza za neke probleme u optici uključujući i neke laserske tehnike.

1.2.2 Koherentna stanja

Za mnoga optička polja, koherentna stanja su obično bazna stanja. U poređenju s Fockovim stanjima, ova stanja imaju mnogo preciznije definisanu fazu. Proizvod neodređenosti u amplitudi i fazi za koherentna stanja je minimalan dozvoljen principom neodređenosti. Ova stanja su najbliža klasičnom opisu polja i njih ćemo označavati sa $|\alpha_k\rangle$. Generisat ćemo ih pomoću unitarnog operatora pomjeranja $D(\alpha_k) = \exp(\alpha_k a_k^\dagger - \alpha_k^* a_k)$, gdje je α_k proizvoljni kompleksni broj. Ako koristimo operatorski teorem

$$e^{A+B} = e^A e^B e^{-\frac{[A,B]}{2}}$$

koji vrijedi za

$$[A, [A, B]] = [B, [A, B]] = 0,$$

operator $D(\alpha_k)$ možemo napisati kao

$$D(\alpha_k) = e^{-\frac{1}{2}|\alpha_k|^2} e^{\alpha_k a_k^\dagger} e^{-\alpha_k^* a_k}. \quad (1.20)$$

Svojstva operatora pomjerenja su sljedeća :

$$D^\dagger(\alpha_k) = D^{-1}(\alpha_k) = D(-\alpha_k),$$

$$D^\dagger(\alpha_k) a_k D(\alpha_k) = a_k + \alpha_k,$$

$$D^\dagger(\alpha_k) a_k^\dagger D(\alpha_k) = a_k^\dagger + \alpha_k^*.$$

Primjenom operatora $D(\alpha_k)$ na vakuum

$$|\alpha_k\rangle = D(\alpha_k)|0\rangle,$$

dobija se koherentno stanje $|\alpha_k\rangle$. Postupak je sljedeći:

$$D^\dagger(\alpha_k) a_k |\alpha_k\rangle = D^\dagger(\alpha_k) a_k D(\alpha_k) |0\rangle = (a_k + \alpha_k) |0\rangle = \alpha_k |0\rangle,$$

gdje je korištena definicija vakuuma 1.20. Množenjem obje strane gornje relacije sa $D(\alpha_k)$ dobijamo jednačinu za vlastite vrijednosti:

$$a_k |\alpha_k\rangle = \alpha_k |\alpha_k\rangle. \quad (1.21)$$

Koherentna stanja se mogu razviti po bazi Fockovih stanja. Uzimanjem skalarnog proizvoda obje strane relacije (1.25) sa $\langle n_k |$ dobijamo:

$$\langle n_k | a_k | \alpha_k \rangle = \langle n_k | \alpha_k | \alpha_k \rangle = \alpha_k \langle n_k | \alpha_k \rangle = \alpha_k \langle 0 | \frac{(a_k)^{n_k}}{\sqrt{n_k!}} | \alpha_k \rangle = \frac{\alpha_k^{n_k+1}}{(n_k!)^{1/2}} \langle 0 | \alpha_k \rangle, \quad (1.22)$$

pri čemu je korištena relacija 1.23. Međutim, ukoliko iskoristimo 1.22 dobijamo:

$$\langle n_k | a_k | \alpha_k \rangle = \sqrt{n_k + 1} \langle n_k + 1 | \alpha_k \rangle.$$

Iz jednačine 1.26 se odmah zaključuje da je:

$$\langle n_k | \alpha_k \rangle = \frac{(\alpha_k)^{n_k}}{(n_k!)^{1/2}} \langle 0 | \alpha_k \rangle.$$

Konačno, koherentna stanja se mogu razviti po bazi Fockovih stanja sa koeficijentima razvoja $\langle n_k | \alpha_k \rangle$ na sljedeći način:

$$|\alpha_k\rangle = \sum_{n_k=0}^{\infty} |n_k\rangle \langle n_k | \alpha_k \rangle = \langle 0 | \alpha_k \rangle \sum_{n_k=0}^{\infty} \frac{(\alpha_k)^{n_k}}{\sqrt{n_k!}} |n_k\rangle. \quad (1.23)$$

Kvadrat apsolutne vrijednosti vektora $|\alpha_k\rangle$ je dat sa:

$$|\langle\alpha_k|\alpha_k\rangle|^2 = |\langle 0|\alpha_k\rangle|^2 \sum_{n_k=0}^{\infty} \frac{|\alpha_k|^{2n_k}}{n_k!} = |\langle 0|\alpha_k\rangle|^2 e^{|\alpha_k|^2}.$$

Lahko se može provjeriti da vrijedi i relacija

$$\langle 0|\alpha_k\rangle = \langle 0|D(\alpha_k)0\rangle = e^{-\frac{|\alpha_k|^2}{2}}, \quad (1.24)$$

tako da vrijedi $|\langle\alpha_k|\alpha_k\rangle|^2 = 1$. Uvrštavanjem 1.28 u 1.27 dobijamo konačan razvoj koherentnih stanja po Fockovim stanjima

$$|\alpha_k\rangle = e^{-\frac{|\alpha_k|^2}{2}} \sum_{n_k=0}^{\infty} \frac{(\alpha_k)^{n_k}}{\sqrt{n_k!}} |n_k\rangle.$$

Vlastita vrijednost operatora poništavanja u 1.25 se može napisati preko očekivane vrijednosti operatora broja fotona u modu

$$\langle N_k\rangle = \langle\alpha_k|a_k^\dagger a_k|\alpha_k\rangle = |\alpha_k|^2.$$

Skalarni proizvod dva koherentna stanja je

$$\langle\beta|\alpha\rangle = \langle 0|D^\dagger(\beta)D(\alpha)|0\rangle = \exp\left[-\frac{1}{2}(|\alpha|^2 + |\beta|^2) + \alpha\beta^*\right]$$

pomoću relacije 1.24. Kvadrat apsolutne vrijednosti skalarnog proizvoda je

$$|\langle\beta|\alpha\rangle|^2 = e^{-|\alpha-\beta|^2}.$$

Iz tog razloga, koherentna stanja nisu ortogonalna. Stanja $|\alpha\rangle$ i $|\beta\rangle$ su približno ortogonalna u limesu $|\alpha - \beta| \gg 1$.

1.3 Kvantno-mehanički pristup

U okviru ovog rada, zanimaju nas samo slučajevi kada imamo laserska polja veoma velikog intenziteta. Kao polaznu osnovu za kvantno-mehanički opis navedene interakcije koristimo odgovarajuću Schrödingerovu jednačinu

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - H\right)\psi = 0,$$

gdje je hamiltonijan sistema atom+polje dat relacijom

$$H = H_{\text{EM}} + \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^Z \left[\vec{p}_{el} + e\vec{A}(\vec{r}_{el}) \right]^2 + \frac{1}{2M} \left[\vec{p}_N - Ze\vec{A}(\vec{r}_N) \right]^2 \quad (1.25)$$

$$+ V(\vec{p}_{e1}, \dots, \vec{r}_{eZ}, \vec{r}_N).$$

Ovdje su \vec{p}_N i \vec{p}_{el} operatori impulsa jezgra i elektrona ($\vec{p} = -i\hbar\nabla$), respektivno. Elementarno naelektrisanje je e , ($e > 0$) dok je m masa elektrona, M je masa jezgra, Z je broj elektrona u atomu, \vec{r}_N i \vec{r}_{ei} i su vektori položaja jezgra i elektrona, respektivno. $V(\vec{r}_{el}, \dots, \vec{r}_{eZ}, \vec{r}_N)$ predstavlja potencijal međudjelovanja jezgra sa elektronima i elektrona međusobno dok je \vec{A} operator vektorskog potencijala elektromagnetnog polja. H_{EM} je hamiltonijan elektromagnetnog polja, dat sa

$$H_{\text{EM}} = \sum_k \hbar\omega_k a_k^\dagger a_k \quad (1.26)$$

koji zapravo predstavlja hamiltonijan 1.17, ali bez doprinosa $\frac{1}{2} \sum_k \hbar\omega_k$. Radi boljeg objašnjenja zašto je ovo učinjeno, polazimo od osnovnog stanja (vakuuma) $|0\rangle$ i definicije djelovanja operatora poništavanja na vakuum

$$a_k|0\rangle = 0. \quad (1.27)$$

Čitav skup vektora stanja se može izgraditi na jednom stanju koje ne sadrži čestice. Energija osnovnog stanja (vakuuma) je data formulom

$$\langle 0|H|0\rangle = \langle 0| \sum_k \hbar\omega_k \left(a_k^\dagger a_k + \frac{1}{2} \right) |0\rangle = \frac{1}{2} \sum_k \hbar\omega_k.$$

Energija osnovnog stanja bi bila beskonačna, pošto nema gornje granice po frekvenciji u sumi po modovima elektromagnetnog polja, a to stvara konceptualne poteškoće. Međutim, s obzirom da praktični eksperimenti mjere promjenu u totalnoj energiji elektromagnetnog polja, beskonačna (divergentna) nulta energija ne vodi na neke praktične divergencije, tako da možemo definisati H_{EM} jednačinom 1.19. Hamiltonijan sistema atom+polje 1.18 je dat u tzv. Schrödingerovoj reprezentaciji. Pomoću unitarnih transformacija hamiltonijan se može transformisati u pogodniji oblik. Općenito, talasna funkcija se transformiše pomoću relacije:

$$\psi' = e^{i\phi}\psi,$$

gdje je ϕ proizvoljna funkcija. Transformisani hamiltonijan je:

$$H' = \exp(i\phi)H \exp(-i\phi) - \hbar \frac{\partial \phi}{\partial t}.$$

Primjenom transformacije

$$\psi = e^{-\frac{i}{\hbar}H_{\text{EM}}t}\psi_{\text{I}}$$

dobijamo Schrödingerovu jednačinu u interakcionoj reprezentaciji (reprezentaciji međudjelovanja)

$$\left[i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - H_{\text{I}}(t) \right] \psi_{\text{I}} = 0$$

i hamiltonijan u interakcionoj slici koji je funkcija vremena:

$$H_{\text{I}} = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^Z \left[\vec{p}_{el} + e\vec{A}(\vec{r}_{el}) \right]^2 + \frac{1}{2M} \left[\vec{p}_N - Ze\vec{A}(\vec{r}_N) \right]^2 + V(\vec{p}_{e1}, \dots, \vec{r}_{eZ}, \vec{r}_N), \quad (1.28)$$

gdje je vektorski potencijal sada eksplicitno zavisao od vremena, a dobija se iz relacije

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar}H_{\text{EM}}t\right) \vec{A}(\vec{r}) \exp\left(-\frac{i}{\hbar}H_{\text{EM}}t\right).$$

Pomoću kvantizacije elektromagnetnog polja, može se doći do ekvivalentnog izraza za vektorski potencijal u interakcionoj reprezentaciji.

1.4 Semiklasični pristup

S obzirom na izuzetno veliki broj fotona u modu laserskog polja, dosta dobra aproksimacija je uzimanje laserskog polja za klasično. Najbliža aproksimativnom klasičnom opisu polja su koherentna stanja, koja smo prethodno razmotrili. Očekivana vrijednost vektorskog potencijala 1.15 za mod $k = (\vec{k}, \lambda)$ po koherentnom stanju $|\alpha_k\rangle$ dobija se u obliku

$$\begin{aligned} \langle \vec{A}_k | \alpha_k \rangle &= \frac{E_{0k}}{\omega_k} \left[\hat{x} \cos(\omega_k t - \vec{k} \cdot \vec{r} + \Phi_k) \cos\left(\frac{\eta_k}{2}\right) \right. \\ &\quad \left. + \hat{y} \sin(\omega_k t - \vec{k} \cdot \vec{r} + \Phi_k) \sin\left(\frac{\eta_k}{2}\right) \right], \end{aligned} \quad (1.29)$$

gdje je

$$E_{0k} = \left(\frac{2\hbar\omega_k \langle N_k \rangle}{\varepsilon_0 L^3} \right)^{1/2}$$

amplituda električnog polja. Jedinični vektor polarizacije u općem slučaju je dat sa

$$\hat{e}_k = \hat{x} \cos\left(\frac{\eta_k}{2}\right) + i\hat{y} \sin\left(\frac{\eta_k}{2}\right),$$

pri čemu su \hat{x} i \hat{y} jedinični vektori x i y , respektivno. Za $\eta_k = 0$ imamo slučaj linearno polarizovanog laserskog polja u smjeru apscise, $\eta_k = \pm\frac{\pi}{2}$ opisuje kružno polarizovano lasersko polje dok za $\eta_k = \pi$ imamo slučaj linearno polarizovanog laserskog polja u smjeru ordinate. U svim ostalim slučajevima, lasersko polje je eliptički polarizovano.

Semiklasični pristup je pristup pri kojem polje razmatramo kao klasično, a čestice opisujemo kvantno-mehaničkim talasnim funkcijama. Ovaj pristup je uglavnom korišten u ovom završnom radu.

1.5 Prelazak na sistem centra masa i dipolna aproksimacija

Vektorski potencijal 1.14 je funkcija radijus-vektora elektrona i vremena. U slučaju višeelektronskih sistema, odgovarajući hamiltonijan je nepraktičan za proračune. Stoga je pogodna dipolna aproksimacija pri čijem uvođenju prvo treba izvršiti prelaz na sistem centra masa. Relacije pomoću kojih prelazimo na sistem centra masa su:

$$\begin{aligned}\vec{R} &= \frac{1}{M_A} \left(m_j \vec{r}_j + \sum_{i=1}^Z m_e \vec{r}_{ei} \right), \\ \vec{r}_{\text{rel}} &= \vec{r}_{ei} - \vec{r}_j, \\ M_A &= m_j + Z m_e,\end{aligned}\tag{1.30}$$

gdje je m_j -masa jezgra, M_A -masa atoma, Z -redni broj atoma, \vec{r}_{ei} radijus-vektor i -tog elektrona, a \vec{r}_{rel} je relativni vektor između i -tog elektrona i jezgra, a \vec{R} je radijus-vektor centra masa. Iz prethodnog izraza slijedi

$$\vec{r}_{ei} = \vec{r}_{\text{rel}} + \vec{r}_j.\tag{1.31}$$

S obzirom da je masa elektrona $m_e \ll M_A$, u izrazu 1.30 je sasvim dobra aproksimacija zamjena \vec{r}_j sa \vec{R} , tako da relacija 1.30 postaje

$$\vec{r}_{ei} \approx \vec{r}_{\text{rel}} + \vec{R}.\tag{1.32}$$

Vektorski potencijal je sada funkcija novih koordinata i koristeći 1.31 i relacije 1.10, 1.11 i 1.13 dobijamo

$$\vec{A}^{\pm}(\vec{r}_{ei}, t) \propto \exp \left[\pm i \vec{k} (\vec{r}_{\text{rel}} + \vec{R}) \right].$$

Relativne koordinate su uglavnom ograničene veličinom atoma, tako da za frekvencije iz oblasti vidljivog dijela spektra vrijedi

$$\langle \vec{k} \cdot \vec{r}_{\text{rel}} \rangle \ll 1,$$

odakle slijedi tražena dipolna aproksimacija

$$\exp \left[\pm i \vec{k} \cdot \vec{r}_{\text{rel}} \right] = 1 \pm i \vec{k} \cdot \vec{r}_{\text{rel}} + \dots \approx 1.$$

Dakle, kao što vidimo, doprinos radijus-vektora centra masa vektorskom potencijalu je sadržan u faktoru $\exp(\pm i \vec{k} \cdot \vec{R})$, što dovodi do logičnog zaključka da lasersko polje u općem slučaju može utjecati na kretanje atoma kao cje-line. Ako se zanemare članovi koji su m/M_A puta manji od vodećih i koristi dipolna aproksimacija, tada se na osnovu 1.21 i 1.29 dobija

$$H_i(t) = \frac{\mathbf{p}_R^2}{2m_j} + \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^Z \left[\vec{p}_{ei} + e\vec{A}(\vec{R}, t) \right]^2 + V(\vec{r}_{e1}, \dots, \vec{r}_{eZ}, \vec{R}).$$

Utjecaj polja je obično mali jer je masa atoma velika te se može zanemariti. Ako ga zanemarimo, onda je \vec{R} konstanta ili sporo - promjenljiva funkcija vremena, pa se kinetička energija centra masa $\mathbf{p}_R^2/(2m_j)$ može ispustiti iz Hamiltonijana i staviti $\vec{R} = 0$. Tada je $\vec{A}(\vec{R}, t) = \vec{A}(0, t) = \vec{A}(t)$ i hamiltonijan sistema je oblika

$$H(t) = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^Z \left[\vec{p}_{ei} + e\vec{A}(t) \right]^2 + V(\vec{p}_{e1}, \dots, \vec{r}_{eZ}).$$

1.6 Kalibracione transformacije

Naziv kalibracione transformacije u teoriji interakcije laserskog polja i atoma se obično koristi za unitarne transformacije kojima se dobijaju oblici hamiltonijana koji su pogodniji za proračune. Zbog unitarnosti takvih transformacija, sve fizikalne veličine koje se zapažaju ostaju invarijantne i nakon njihove primjene. Razmotrit ćemo kalibracione transformacije koje su nama od izuzetne važnosti. Uzmimo da je interakciona reprezentacija *prva kalibracija*, pri čemu ćemo hamiltonijan H_1 i talasnu funkciju ψ_1 označiti sa H_1 i ψ_1 . Primjenjujući unitarnu transformaciju na prvu kalibraciju, možemo dobiti j -tu kalibraciju

$$\psi_k = e^{i\phi_j} \psi_1,$$

pri čemu talasna funkcija ψ_j zadovoljava transformisanu Schrödingerovu jednačinu

$$\left(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H_j \right) \psi_j = 0, H_j = e^{i\phi_j} H_1 e^{-i\phi_j} - \hbar \frac{\partial \phi_j}{\partial t}.$$

Izborom potencijala ϕ_j , hamiltonijan se može dovesti u oblik koji je pogodan za proračune. Sada ćemo navesti neke primjere izbora kalibracije.

Prvi primjer je $\vec{p} \cdot \vec{A}$ kalibracija, koju ćemo po redoslijedu nazvati drugom. U ovoj kalibraciji, potencijal se uzima u obliku

$$\phi_2 = \frac{Ze^2}{2m\hbar} \int_{-\infty}^t \vec{A}^2(t') dt'.$$

Hamiltonijan je dat sa

$$H_2 = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^Z \mathbf{p}_i^2 + \frac{e}{m} \sum_{i=1}^Z \vec{p}_i \cdot \vec{A}(t) + V(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_Z).$$

Ovaj gauge se često naziva i *velocity gauge*. Drugi primjer je $\vec{r} \cdot \vec{E}$ kalibracija, koju nazivamo trećom. Potencijal je oblika

$$\phi_3 = \frac{e}{\hbar} \sum_{i=1}^Z \vec{r}_i \cdot \vec{A}(t),$$

a hamiltonijan je oblika

$$H_3 = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^Z \mathbf{p}_i^2 + e \sum_{i=1}^Z \vec{r}_i \cdot \vec{E}(t) + V(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_Z).$$

Ovaj gauge se još naziva i *length gauge*. Treći primjer je Kramers-Hennebergova kalibracija, koju dobijamo izborom potencijala u obliku

$$\phi_4 = \frac{e}{m\hbar} \sum_{i=1}^Z \int_{-\infty}^t dt' \vec{p}_i \cdot \vec{A}^2(t').$$

Hamiltonijan je oblika

$$H_4 = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^Z \mathbf{p}_i^2 + V(\vec{r}_1 - \vec{\alpha}(t), \dots, \vec{r}_Z - \vec{\alpha}(t)),$$

gdje je

$$\vec{\alpha}(t) = \frac{e}{m} \int_{-\infty}^t \vec{A}(t') dt'$$

koordinata klasičnog elektrona koji osciluje u elektromagnetnom polju, ne uzimajući u obzir druge interakcije. U slučaju primjenjivanja aproksimacija, mogu se dobiti različiti rezultati za različite kalibracije pa pri izboru kalibracije treba biti veoma oprezan. Kada se problemi rješavaju egzaktno, navedeno nije slučaj.

1.7 Volkovljevo rješenje

Vremenski zavisna Schrödingerova jednačina u elektromagnetnom polju u interakcionoj reprezentaciji ima oblik

$$\left[i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - \frac{1}{2m} [\vec{p} + e\vec{A}(t)]^2 \right] |\chi_q(t)\rangle = 0.$$

To rješenje se može napisati u sljedećem obliku:

$$|\chi_q(t)\rangle = |\vec{k}\rangle \exp \left[-\frac{i}{2\hbar m} \int^t [\hbar\vec{k} + e\vec{A}(t')]^2 dt' \right], \quad (1.33)$$

gdje je $|\vec{k}\rangle$ "ket - vektor" koji odgovara ravnom talasu.

$$\langle \vec{r} | \vec{k} \rangle = \frac{e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}},$$

$$\langle \vec{k} | \vec{q} \rangle = \delta(\vec{k} - \vec{q}).$$

Rješenje 1.33 se naziva *Gordon- Volkovljevo rješenje*, odnosno to su Gordon-Volkovljevi vektori stanja. Prilikom proračuna korišten je *length gauge* te Volkovljevu talasnu jednačinu u ovoj kalibraciji dobijamo na način koji smo obradili u prethodnom odjeljku. Zatim primjenjujemo transformaciju:

$$\chi_q^{(3)} = e^{i\frac{e}{\hbar}\vec{r} \cdot \vec{A}(t)} \chi_q^{(1)}$$

i dobijamo Gordon-Volkovljevo rješenje u sljedećem obliku

$$|\chi_q^{(3)}(t)\rangle = \left| \vec{k} + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t) \right\rangle \exp \left[-\frac{i}{2\hbar m} \int^t [\hbar\vec{k} + e\vec{A}(t')]^2 dt' \right].$$

Hamiltonijan u length gaugeu za elektron je dat sa

$$H_3 = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + e\vec{r} \cdot \vec{E}(t),$$

a akcija

$$S_q(t) = \frac{\hbar}{2m} \int^t \left[\vec{k} + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t') \right]^2 dt'. \quad (1.34)$$

Donja granica u izrazu za akciju daje fazu koja ne doprinosi ni jednoj opservabli te nema nikakav značaj. Koristeći relaciju (1.33), Gordon - Volkovljevo rješenje se može napisati i u obliku:

$$|\chi_q'(t)\rangle = \left| \vec{k} + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t) \right\rangle e^{-iS_q(t)}.$$

Volkovljeva talasna funkcija u length gaugeu i sistemu atomskih jedinica, za koji vrijedi ($e = \hbar = m = 1$) ima oblik:

$$|\chi_q(t)\rangle = \left| \vec{k} + \vec{A}(t) \right\rangle \exp \left[-\frac{i}{2} \int^t [\vec{k} + \vec{A}(t')]^2 dt' \right].$$

1.8 Mehanizmi jonizacije

Razmotriti ćemo različite mehanizme usljed kojih dolazi do jonizacije. Normalan proces multifotonske jonizacije se odvija pri umjerenim intenzitetima laserskog zračenja. Naime, atom prihvatajući određeni broj fotona, prelazi u pobuđena međustanja. Kada skupi dovoljnu energiju, koja je veća od jonizacione energije atoma, elektron napusti atom i nađe se kontinuumu. Ovaj mehanizam je prikazan na slici 1.1(a). Slika 1.1(b) prikazuje situaciju u okviru kvazistacionarne aproksimacije, kada je intenzitet laserskog polja dovoljno veliki i frekvencija dovoljno niska. U tom slučaju polje je dovoljno jako da deformiše atomski potencijal do tog opsega, da kroz novonastalu barijeru elektron može tunelirati. Potencijalna barijera postaje niža i manja sa porastom jačine polja, sve dok u jednom momentu, osnovno stanje prestane biti vezano stanje. Ovaj mehanizam jonizacije, *jonizacija iznad praga*, je prikazan na slici 1.1(c).

Kritična vrijednost polja se može dobiti izjednačavanjem maksimalne vrijednosti vanjskim poljem deformisanog potencijala sa jonizacionom energijom datog atoma i vodi na kritičnu vrijednost intenziteta laserskog polja. Ovaj intenzitet ćemo označiti sa I_{OTBI} , a dat je sa

$$I_{\text{OTBI}} = \frac{c\varepsilon_0 E_{kr}^2}{2}. \quad (1.35)$$

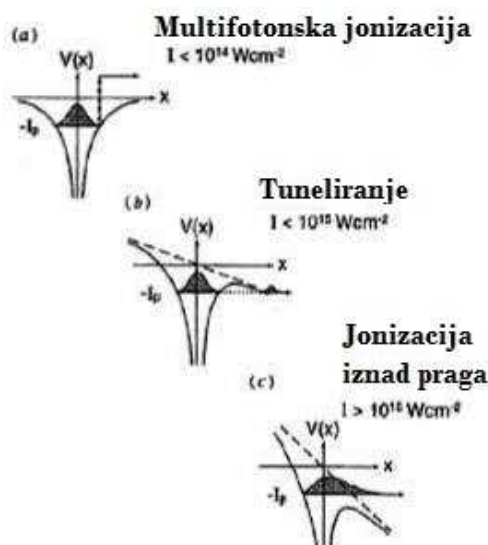
OTBI označava skraćenicu *Over The Barrier Ionization*, tj. jonizaciju iznad praga.¹ Uz činjenicu da je energija pri prevojnoj tački atomskog potencijala pod utjecajem polja kritične jačine jednaka energiji veze elektrona u atomu, može se dobiti vrijednost kritičnog intenziteta preko jonizacionog potencijala odgovarajućeg atoma I_p i njegovog naboja Z . Na osnovu iznesenih pretpostavki vrijedi:

$$E_{kr} = \frac{I_p^2}{4Z}. \quad (1.36)$$

Korištenjem izraza 1.34 i 1.35 dobijamo da je

$$I_{\text{OTBI}}[\text{W}/\text{cm}^2] = 4 \cdot 10^9 \frac{(I_p[\text{eV}])^4}{Z^2}.$$

¹Ovaj naziv se više ne javlja u upotrebi.



Slika 1.1: Prikaz tri moguća mehanizma jonizacije. Na slici (a) prikazan je mehanizam multifotonske jonizacije koji dominira pri intenzitetima nižim od intenziteta 10^{14} W/cm^2 . Porastom intenziteta, atomski potencijal se sve više i više deformiše, pa tada dominira tuneliranje, što prikazuje slika (b). Pri još većim intenzitetima, barijera je toliko prigušena da je početni talasni paket elektrona u mogućnosti da "iskoči" iz atomskog potencijala. Navedeni postupak se naziva *jonizacija iznad praga* i prikazan je na slici (c).

Također, jedan od bitnih efekata koji se dešavaju usljed smanjenja broja raspoloživih atoma u gasu podvrgnutom laserskom zračenju je *zasićenje jonizacije*. Ovo zasićenje se dešava pri određenoj vrijednosti intenziteta laserskog polja, I_{sat} , za dato vrijeme trajanja pulsa. Navedenu vrijednost intenziteta posmatramo kao maksimalnu vrijednost koju atom može podnijeti.

1.8.1 Keldyshev parametar

Kretanje elektrona u laserskom polju nakon što se našao u kontinuumu može se veoma dobro opisati korištenjem zakona klasične fizike. Ovo implicira da se proces jonizacije odvija veoma brzo, tj. unutar djelića optičkog ciklusa blizu samog maksimuma intenziteta pulsa, na mjestu gdje je potencijalna barijera maksimalno prigušena vanjskim poljem. Sam proces tuneliranja je čisto kvantno-mehaničke prirode. Veličina koja određuje u kojem režimu se odvija proces jonizacije atoma je *Keldyshev parametar*. Keldysh je generalizirao gornje razmatranje na slučaj kada se potencijal atoma deformiše i pod utjecajem harmonijskog, promjenljivog vanjskog polja i definisao je odgovarajući adijabatski parametar

$$\gamma = \frac{\omega_l}{\omega_t}, \quad (1.37)$$

gdje su ω_l i ω_t frekvencije laserskog polja i tuneliranja, respektivno. Frekvencija tuneliranja je obrnuto proporcionalna sa vremenom potrebnim za tuneliranje kroz barijeru. U граниčnim slučajevima kada je $\gamma \ll 1$, mehanizam jonizacije jeste tuneliranje dok u slučaju kada je ispunjeno $\gamma \gg 1$, tj. kada polje osciluje brzo u poređenju sa vremenom potrebnim za tuneliranje, jonizacija je multifotonska. Ovakva stroga podjela na mehanizme koji vode ka jonizaciji ne postoji u eksperimentima. Naime, u većini eksperimenata brzina jonizacije se može okarakterisati kao kombinacija karakteristika koje potječu od ova dva mehanizma.

Pretpostavimo da imamo elektron vezan u atomu koji se nalazi u vanjskom linearno polarizovanom laserskom polju koji harmonijski osciluje. Označimo amplitudu oscilacija tog polja sa E_L . Koristeći izraze za širinu barijere I_p/E_L , zatim brzinu elektrona kojom se kreće po svojoj atomskoj orbiti, $\kappa = \sqrt{2I_p}$ i vjerovatnost nalaženja elektrona u određenom smjeru, tj. smjeru minimalne širine barijere koja iznosi $1/(4\pi)$, može se izračunati frekvencija tuneliranja

$$\omega_t = \frac{1}{4\pi} \frac{2\pi}{\tau} = \frac{E_L \kappa}{2I_p} = \frac{E_L}{\kappa},$$

gdje je τ vrijeme potrebno za tuneliranje. Koristeći jednačinu 1.36, za Keldyshev parametar, dobijamo

$$\gamma = \frac{\omega_l \kappa}{E_L} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_P}}, \quad (1.38)$$

gdje je U_P ponderomotorna energija. Radi se o energiji elektrona usrednjenoj po jednom optičkom ciklusu, tj. ciklusu laserskog polja. Ovaj dio kinetičke

energije elektrona potječe od oscilatornog kretanja elektrona, i izražava se relacijom

$$U_P = \frac{1}{2} \langle \vec{A}^2(t) \rangle.$$

U slučaju linearno polarizovanog polja, *ponderomotorna energija* je povezana sa frekvencijom lasera i amplitudom jačine laserskog polja izrazom

$$U_P = \frac{E_L}{4\omega^2}. \quad (1.39)$$

Poglavlje 2

Atomski procesi u jakom laserskom polju

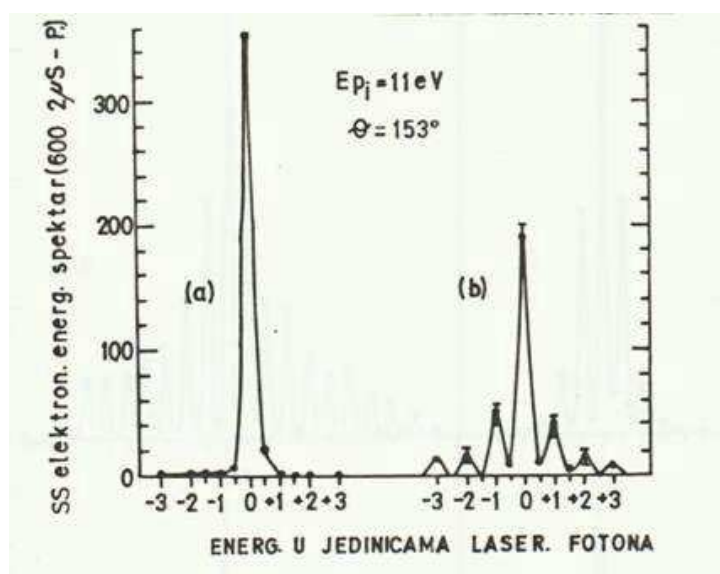
Nakon što su otkriveni laseri započeta je nova epoha u razvoju atomske i molekularne fizike. Uporedo sa razvojem laserske tehnike bila su potaknuta istraživanja unutar mnogih oblasti nauke. Otkriveni su procesi koji nastaju pod utjecajem laserskog zračenja. Proces koji su bili mogući i bez prisustva laserskog polja bili su dodatno obogaćeni nekim karakteristikama. Kao što je već rečeno u uvodu, atomske procese koji se odvijaju u jakom laserskom polju dijelimo na procese koji su mogući i bez prisustva laserskog polja (laser-assisted processes) i procese koji su mogući jedino uz prisustvo jakog laserskog polja (laser-induced processes).

Procesi koji su mogući samo uz prisustvo laserskog zračenja predstavljaju značajno područje istraživanja multifotonske fizike. Iz tog razloga ćemo u ovom poglavlju, pored rasijanja elektrona na atomu, elektron-jonske rekombinacije i rasijanja X-zraka na atomu (laser-assisted processes), dati opis laser-induced procesa, u koje ubrajamo jonizaciju iznad praga-ATI, jonizaciju iznad praga višeg reda-HATI dok će o generaciji viših harmonika-HHG biti riječi u narednom poglavlju.

2.1 Elektron-atomsko rasijanje

Procesi elektron-atomskog rasijanja se bitno razlikuju sa ili bez prisustva laserskog polja. U procesu rasijanja, fotoni laserskog polja igraju ulogu trećeg tijela. Uslijed sudara elektrona, odnosno atoma sa trećim tijelom, pojavljuju se tzv. *off-shell amplitude* elektron-atomskog rasijanja. *Off-shell* u prevodu znači izvan energetske površine, tj. poslije procesa rasijanja energija sistema nije ista kao i prije. Jedan dio energije biva razmijenjen sa laserskim poljem. Pri tome, ukupna energija sistema (elektron+atom+lasersko polje) ostaje očuvana. Drugi proces, koji nije moguće opaziti u procesu elektron-atomskog rasijanja bez prisustva laserskog polja je interferencija amplitude rasijanja. Naime, postoje dva kanala za proces jednofotonskog *bremstrahlung*. Elektron može apsorbirati foton direktno iz laserskog polja prilikom rasijanja na atomu koji je u osnovnom stanju. Drugi kanal je da prvo atom apsorbira foton i da ga onda prenese elektronu. U tom slučaju se elektron rasijava na atomu u pobuđenom stanju. Elektron-atomsko rasijanje je jedan od prvih procesa koji je ispitivan odmah nakon otkrića lasera. Kada se elektron ubrza (uspори) električnim poljem on može da apsorbira (emituje) zračenje. Pošto elektron u ovom procesu prelazi iz jednog kontinuiranog stanja u drugo, ovi procesi se često nazivaju *slobodno-slobodni procesi* ili FFT (eng. *Free-Free Transitions*). Nas zanimaju stimulirani FFT procesi uzrokovani vanjskim elektromagnetnim poljem, kao što su stimulirani *bremstrahlung* (emisija fotona) i inverzni *bremstrahlung* (apsorpcija fotona). Spontani *bremstrahlung* je zanemarljiv u jakim poljima. U prisustvu laserskog polja javlja se i interferencija amplituda raspršenja.

Krajem 70-tih godina prošlog stoljeća prvi put su eksperimentalno zapaženi multifotonski procesi. Weingartshofer i saradnici su 1977. godine izvršili eksperiment čiji rezultati su predstavljeni na slici 2.1. Intenzitet linearno polarizovanog polja CO₂ lasera bio je reda veličine 10⁹ Wcm⁻². Za detekciju rasijanih elektrona na atomima argona koristio se spektrometar sa energetsom rezolucijom 55 meV. Energija upadnih elektrona iznosila je $E_{ki} = 11$ eV. Na apscisu slike 2.1 nanese su energije detektovanih elektrona, pri čemu je za jedinicu energije uzeta energija jednog fotona laserskog polja ($\hbar\omega = 1.17$ eV), a na ordinatu broj detektovanih elektrona (za 600 fotonskih pulseva, od kojih je svaki trajao 2 ps). Lijevi dio slike pokazuje spektar za elastično rasijanje elektrona bez laserskog polja dok je u desnom dijelu prikazan spektar sa laserskim poljem.



Slika 2.1: Spektar elektrona rasijanih na atomima argona u snopu CO₂ lasera

Na slici se vidi da se u energetsom spektru elektrona rasijanih na atomu argona javljaju dodatni maksimumi ukoliko se proces rasijanja dešava u laserskom polju. Energije maksimuma su date sa $E_{kf} = E_{ki} + N\hbar\omega$, dok je $N = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3$, što znači da je u procesu rasijanja apsorbirano, odnosno emitovano N fotona laserskog polja.

2.2 Multifotonska jonizacija

Za proces jonizacije atoma elektromagnetnim poljem energija upadnog fotona $\hbar\omega$ je jednaka sumi energije jonizacije E_j i kinetičke energije oslobođenog elektrona, analogno Einsteinovoj formuli za fotoelektrični efekat. Amplituda vjerovatnoće tog procesa je proporcionalna jačini električnog polja. Sa povećanjem intenziteta polja do jonizacije može doći i ako je energija fotona polja manja od energije jonizacije. Radi se o procesu multifotonske jonizacije: atom apsorbira $N > 1$ fotona koliko mu je potrebno za jonizaciju i vrijedi

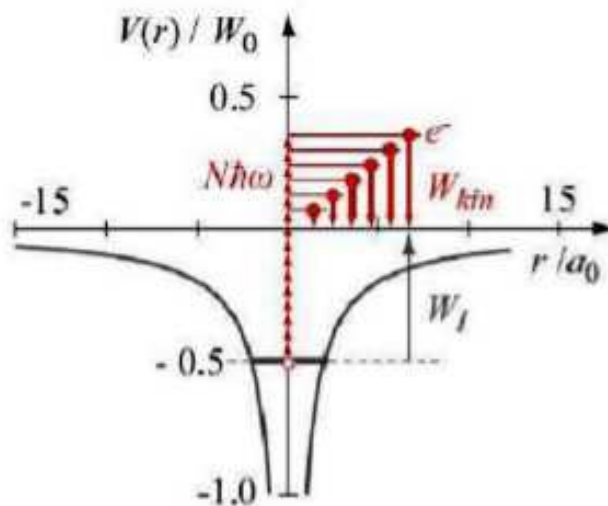
$$N\hbar\omega = E_j + E_k.$$

Iako je prvi teorijski rad vezan za multifotonsku jonizaciju objavio Göpert-Meier tridesetih godina 20.-tog stoljeća, tek šezdesetih godina, kada su pulsni laseri postali dostupni, počinje pravi razvoj fizike multifotonske jonizacije. Prve programe multifotonskog istraživanja počinju oko 1965. godine Delone-ova grupa u Moskvi i Mainfrayeva i Manusova grupa u Parizu. Prema teoriji perturbacije, koja se sastoji od razvoja po članu I/I_A , gdje je I_A intenzitet električnog polja koji "osjeća" elektron unutar atoma vodika) slijedi da je brzina N -fotonske jonizacije (vjerovatnoća jonizacije u jedinici vremena) proporcionalna N -tom stepenu fluksa fotona lasera.

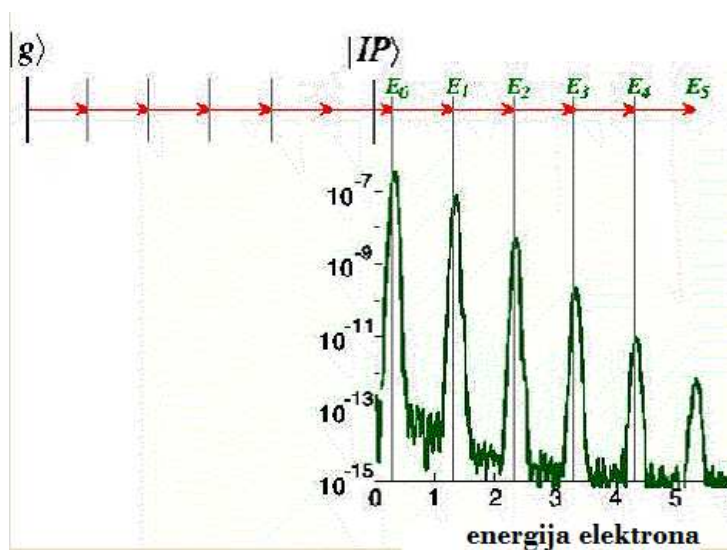
2.3 Jonizacija iznad praga - ATI

Elektron, nakon što apsorbira dovoljan broj fotona za jonizaciju bit će van domašaja atomskog potencijala i napustit će jon. To zapravo predstavlja multifotonsku ekstrapolaciju Einsteinove slike fotoelektričnog efekta. Da bi došlo do jonizacije atoma potrebno je da elektron apsorbira nekoliko fotona iz laserskog polja jer atom posjeduje izvjesni prag ispod kojeg multifotonska jonizacija nije moguća. Jonizacija iznad praga se dešava kada atom apsorbira više fotona nego što je potrebno za samu jonizaciju (slika 2.2). Ovaj naziv je dala grupa fizičara iz Saclaya, pri čemu ATI označava *Above Threshold Ionization*. Eksperimentalnu potvrdu ovog procesa daju energetske spektri oslobođenih fotoelektrona. Atom apsorbira N fotona energije $\hbar\omega$.

Višak fotona koji se apsorbira povećava kinetičku energiju oslobođenog elektrona, čiji je spektar diskretan. U slučaju da se apsorbira minimalan broj fotona koji je dovoljan za jonizaciju, spektar bi se sastojao od samo jednog pika. 1979. godine uočen je još jedan dodatni pik koji je ukazivao na apsorpciju dodatnog fotona. Evidentno je da se broj apsorbovanih fotona povećava sa povećanjem intenziteta laserskog polja.



Slika 2.2: Shematski prikaz procesa jonizacije iznad praga



Slika 2.3: Fotoelektronski spektar za proces jonizacije iznad praga. Niz maksimuma odgovara apsorpciji fotona iznad praga jonizacije.

Međutim, pikovi na nižim energijama su znatno niži. Ovo se objašnjava utjecajem elektromagnetnog polja na energetske nivoe atoma. Na slici 2.3 predstavljen je vrlo jasan spektar fotoelektrona, gdje je sa $|g\rangle$ označeno osnovno (ground) stanje, a sa $|I_p\rangle$ početak kontinuuma.

Prva etapa proučavanja ATI-ja završena je izvještajem van der Wielove amsterdamske grupe. Ponovili su eksperimente grupe iz Saclaya upotrebljavajući Nd:YAG laser i atome ksenona uz korištenje spektrometara sa znatno boljom rezolucijom i neznatno većim intenzitetom lasera. Teorijski fizičari su pokazali da ATI spada u neperturbativne procese, koji se nisu mogli opisati općom teorijom perturbacije. Zato se često kaže da je opažanjem ATI-ja atomska fizika ušla u neperturbativni režim.

2.4 Jonizacija iznad praga višeg reda - HATI

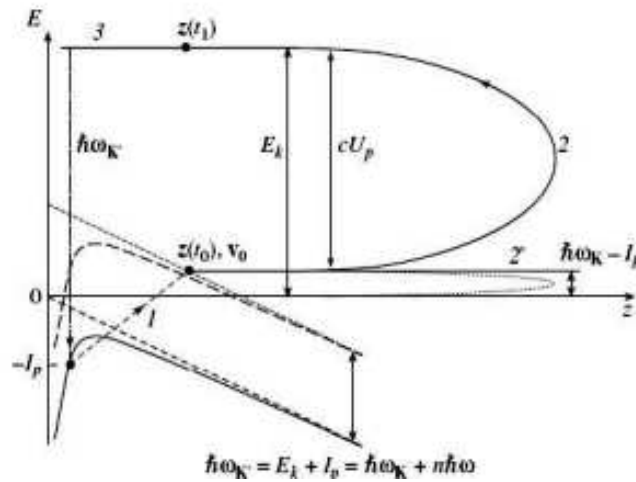
U spektru fotoelektrona je, pored već poznatih maksimuma, zapažen još jedan niži nivo, a to je postignuto stalnim poboljšavanjem spektrometara uz povećanje intenziteta laserskog polja. Ovo je objašnjeno spektrom koji se pojavljuje usljed elastičnog rasijanja elektrona koji je oslobođen ATI-jem na matičnom jonu. U poređenju s ATI-jem elektron se nakon rasijanja dodatno ubrzava u laserskom polju i postiže veću kinetičku energiju, uz mnogo manju vjerovatnoću. Ovaj proces se naziva jonizacija iznad praga višeg reda (*High-order Above-Threshold Ionization*-HATI). Manji procenat elektrona se nakon jonizacije vraća do matičnih jona i rasijava na njima, pri čemu putanja elektrona u laserskom polju zavisi od trenutka jonizacije, tj. vrijednosti električnog polja i vektorskog potencijala. Direktno i naknadno rasijane elektrone eksperimentalno je nemoguće razdvojiti, ali je na osnovu teorijskih razmatranja jasno da naknadno rasijani elektroni mogu dobiti nekoliko puta veću energiju od direktno rasijanih.

2.5 Rasijanje X-zraka na atomu u prisustvu laserskog polja

Kao što je već ranije spomenuto, proces rasijanja X-zraka na atomu spada u procese koji se mogu odvijati i bez prisustva laserskog polja. Ukoliko se taj proces odvija u prisustvu laserskog polja označava se sa XSCA (X-ray atom SCAttering). Objasniti ćemo ovaj proces pomoću modela "Tri koraka" ("Three-step model") koji je shematski prikazan na slici 2.4. U trenutku kada se uspostavi lasersko polje, atom čija je energija jonizacije I_p nalazi se u osnovnom stanju. Atomski potencijal je snižen pod utjecajem laserskog polja, ali istovremeno povišen apsorpcijom X-zraka energije $\hbar\omega$. Ako je $\hbar\omega > I_p$, onda se atom može jonizovati i kažemo da se elektron "rodi" u tački $z(t_0)$ sa početnom brzinom v_0 , gdje je $mv_0^2/2 = \hbar\omega_k - I_p$. U drugom koraku, elektron, koji se kreće samo pod utjecajem laserskog polja, razmjenjuje ener-

giju $n\hbar\omega$ sa laserskim poljem. U trećem koraku se elektron sa kinetičkom energijom E_k rekombinuje sa matičnim jonom u tački $z(t_1) = z(t_0)$, uz emisiju fotona sa talasnim vektorom \vec{K}' i energijom $\hbar\omega_{K'} = E_K + I_p = \hbar\omega + n\hbar\omega$.

Energija rasijanog fotona zavisi od broja emitovanih ($n < 0$) ili apsorbovanih ($n > 0$) fotona laserskog polja.



Slika 2.4: Shematski prikaz rasijanja X-zraka na atomu u prisustvu laserskog polja

Zbir atomskog potencijala i potencijala električnog polja je pomjeren za energiju upadnog fotona $\hbar\omega_k$. Kretanje elektrona u polju je oznaceno sa 2(2') za pozitivne (negativne) vrijednosti platoa.

2.6 Teorijske metode opisa atomskih procesa

2.6.1 *S*-matrični formalizam i aproksimacija jakog polja

Prvobitna svrha *S*-matrične teorije bila je opisivanje procesa rasijanja u nuklearnoj fizici i fizici visokih energija. Dugo se vjerovalo da je primjena *S*-matrične teorije ograničena samo na procese rasijanja. Međutim, tokom 1960-tih godina pokazalo se da *S*-matrični pristup ima opću primjenu u opisanju prelaza posmatranog sistema iz početnog stanja u konačno stanje, uključujući prelaz iz vezanog u vezano stanje, iz vezanog u slobodno stanje, iz slobodnog u vezano stanje, kao i iz slobodnog u slobodno stanje. U

ovom odjeljku detaljnije ćemo razmotriti S -matrični formalizam te nam je cilj da povežemo S -matrični element sa vjerovatnoćom prelaza iz početnog u konačno stanje.

Vremenska evolucija sistema se može opisati nizom unitarnih transformacija. Operator transformacije vremenske evolucije se označava sa S , a odgovarajuća matrica se naziva S -matrica. Također se koristi i oznaka $U(t, t_0)$ za unitarni operator vremenske evolucije sistema od trenutka t_0 do trenutka t . Sada ćemo izvesti operator S te analizirati neke od njegovih osobina. Operator S transformiše stanje iz trenutka $t_0 = 0$ u stanje u trenutku t :

$$\psi(\vec{r}, t) = S\psi(\vec{r}, 0). \quad (2.1)$$

Navedeni operator možemo dobiti ako uvrstimo talasnu funkciju $\psi(\vec{r}, t)$ u vremenski zavisnu Schrödingerovu jednačinu:

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - H\right) S\psi(\vec{r}, 0) = \left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - HS\right) \psi(\vec{r}, 0),$$

odakle slijedi da je

$$i\hbar\frac{\partial S}{\partial t} = HS.$$

U slučaju kada hamiltonijan H ne zavisi eksplicitno od vremena, dobijamo:

$$S = \exp(-iHt/\hbar). \quad (2.2)$$

Na osnovu jednačine 2.1 slijedi $S(0) = \mathbf{I}$, a to nam je poslužilo da odaberemo konstantu integriranja u izrazu 2.2. Primjenjivanjem operatora S na neku funkciju, kao što je urađeno u jednačini 2.1, mi zapravo razvijamo eksponencijalnu funkciju u stepeni red:

$$S = \exp\left(-\frac{i}{\hbar}Ht\right) = \sum_n \frac{1}{n!} \left(-\frac{i}{\hbar}Ht\right)^n. \quad (2.3)$$

Od velikog značaja u ovom odjeljku nam je energetska reprezentacija, u kojoj je operator H dijagonalan, tj. $H\psi_n = E_n\psi_n$.

Ukoliko je

$$\psi(\vec{r}, 0) = \sum_n a_n \psi_n(\vec{r}),$$

tada vremensku evoluciju stanja $\psi(\vec{r}, 0)$ dobijamo primjenom operatora S prema jednačini 2.1. Iz svega navedenog vrijedi:

$$\begin{aligned} \psi(\vec{r}, t) &= S\psi(\vec{r}, 0) = \sum_n a_n S\psi_n = \sum_n a_n \sum_k \frac{1}{k!} \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^k \psi_n \\ &= \sum_n a_n \sum_k \frac{1}{k!} \left(-\frac{i}{\hbar} E_n t\right)^k \psi_n = \sum_n a_n \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_n t\right) \psi_n. \end{aligned} \quad (2.4)$$

Dakle, dobili smo dobro poznatu vremensku zavisnost stacionarnih stanja. U energetske reprezentaciji operator S je dijagonalan:

$$S_{mn} = \int \psi_m^* S \psi_n dV = \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_n t\right) \delta_{mn}.$$

Jednačina 2.3 pokazuje osobinu unitarnosti operatora S :

$$S^\dagger = \left[\exp\left(-\frac{i}{\hbar} H t\right) \right]^\dagger = \exp\left(\frac{i}{\hbar} H^\dagger t\right) = \exp\left(\frac{i}{\hbar} H t\right) = S^{-1},$$

jer je H hermitski operator. Sada ćemo razviti talasnu funkciju $\psi(\vec{r}, t)$ po vlastitim funkcijama ϕ_n operatora L :

$$\psi(\vec{r}, t) = \sum_n b_n(t) \phi_n(\vec{r}).$$

Opišemo li opet vremensku evoluciju pomoću operatora S , dobijamo:

$$\sum_n b_n(t) \phi_n(\vec{r}) = \sum_n S b_n(0) \phi_n(\vec{r}).$$

Množenjem sa ϕ_m^* i integriranjem, slijedi matična diferencijalna jednačina:

$$b_m(t) = \sum_n S_{mn}(t) b_n(0), \quad (2.5)$$

gdje je $S_{mn} = \int \phi_m^\dagger S \phi_n dV$. Sada ćemo razmotriti specijalni slučaj kada je $b_{n_i}(0) = 1$. Zbog uslova normiranja, tada su svi drugi $b_n(0)$, gdje je $n \neq n_i$, jednaki nuli.

Iz prethodno navedenog, zaključujemo da je u L reprezentaciji, u trenutku $t = 0$, čestica u potpunosti u stanju $\phi_{n_i}(\vec{r})$. Kažemo da je sistem pripremljen, tako da je u početnom trenutku (inicijalno) u stanju $\phi_{n_i}(\vec{r})$. Tako jednačina 2.4 vodi na:

$$b_m(t) = S_{mn_i}(t).$$

Ovo je interesantan rezultat sa očiglednom fizikalnom interpretacijom. Matrični element $S_{mn_i}(t)$ predstavlja amplitudu vjerovatnoće prelaska sistema iz stanja ϕ_{n_i} u stanje ϕ_m nakon vremena t . Drugim riječima, veličina

$$w(n_i \rightarrow m) = |S_{mn_i}(t)|^2$$

daje vjerovatnoću prelaza iz stanja ϕ_{n_i} u stanje ϕ_m pod utjecajem H . U proračunima vjerovatnoće prelaza u kvantnoj mehanici i elektrodinamici ova relacija igra važnu ulogu.

Radi boljeg razumijevanja S -matričnog formalizma, razmatramo sljedeći problem. Posmatramo atomski sistem, koji je pripremljen u stanju ϕ_i , gdje i označava početno stanje. Početno stanje zadovoljava vremenski zavisnu jednačinu:

$$i\hbar \frac{\partial \Phi}{\partial t} = H_0 \Phi. \quad (2.6)$$

Rješenja jednačine 2.5 čine kompletan skup Φ_n . Nakon djelovanja laserskog polja u nekom trenutku na razmatrani atomski sistem, novo stanje atomskog sistema određeno je jednačinom

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = [H_0 + H_I] \Psi \quad (2.7)$$

Rješenja jednačine 2.6 također čine kompletan skup Φ_n . Nakon dovoljno dugog vremena, lasersko polje se isključi i sistem se nađe u konačnom stanju Φ_f . Lasersko polje ne utječe na mjerne uređaje, jer se oni nalaze izvan prostora u kojem djeluje to polje. Naime, ovo znači da mjerni uređaji mjere opservable sistema nakon isključivanja laserskog polja. Iz tog razloga je cilj da se na osnovu konačnog stanja Φ_f dođe do zaključka šta se desilo sa sistemom za vrijeme djelovanja laserskog polja. Prema tome, u okviru S -matrične teorije sve što moramo znati je na koji način je sistem pripremljen i kako se konačno stanje analizira. Amplituda vjerovatnoće prelaza iz početnog stanja u konačno stanje je data izrazom:

$$M_{fi}(t, t_0) = (\Phi_f(t) | U(t, t_0) | \Phi_i(t_0)),$$

gdje je $U(t, t_0)$ evolucionni operator koji zadovoljava jednačinu:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} U(t, t_0) = [H_0 + H_I(t)] U(t, t_0). \quad (2.8)$$

Općenito, evolucioni operator ima sljedeće osobine:

$$U^\dagger U = U U^\dagger = 1, U(t'', t) = U(t'', t)U(t', t).$$

Rješenje jednačine 2.7 može se napisati i u integralnom obliku:

$$U(t, t_0) = U_0(t, t_0) - \frac{i}{\hbar} \int dt' U(t, t') H_I(t') U_0(t', t_0),$$

gdje je $U(t, t_0)$ evolucioni operator koji odgovara hamiltonijanu H_0 :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} U_0(t, t_0) = H_0 U_0(t, t_0).$$

Do sada razvijeno se odnosi na opći formalizam. Sada se vraćamo našem specijalnom slučaju i prvo želimo da razmotrimo aproksimaciju jakog polja. Kao što je već ranije naglašeno, prelaz iz nekog početnog (initial, in) stanja u neko konačno (final, out) stanje može se opisati pomoću S -matričnog elementa, koji je u atomskim jedinicama dat sa:

$$S_{fi} = i \lim_{t' \rightarrow \infty} \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \Phi_{out}(t') | G^+(t', t) | \Phi_{in}(t) \rangle, \quad (2.9)$$

gdje "in" i "out" stanja zavise od graničnih uslova. U slučaju da se radilo u SI sistemu, pojavio bi se i dodatni faktor \hbar . Operator $G^+(t', t)$ je ukupni Greenov operator, koji zadovoljava Lippmann-Schwingerovu jednačinu

$$G^+(t', t) = G_x^+(t, t') + \int dt'' G^+(t, t'') V_\chi G_\chi^+(t'', t'). \quad (2.10)$$

Operatori G^+ i G_χ^+ zadovoljavaju vremenski zavisnu Schrödingerovu jednačinu sa ukupnim hamiltonijanom $H = H_\chi + V_\chi$ i hamiltonijanom H_χ , respektivno. U slučaju jonizacije, "in" stanje je rješenje Schrödingerove jednačine sa atomskim potencijalom V . Ovo rješenje je izvan laserskog polja i propagira pod utjecajem Greenovog operatora G_v . Konačno stanje u trenutku t zadovoljava relaciju

$$\langle \Phi_f^-(t) | = i | \langle \Phi_{out}(\infty) | G^+(\infty, t) |.$$

Korištenjem ove relacije i činjenice da su sama stanja "in" i "out" ortogonalna stanja, zamjenom 2.9 u 2.8 i stavljanjem $V_\chi = H_L$, dobijamo

$$S_{fi} = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \Phi_f^-(t) | H_L(t) | \Phi_{in}(t) \rangle. \quad (2.11)$$

Sa H_L označili smo hamiltonijan interakcije sa laserskim poljem. Pokazuje se da je samo izračunavanje ovog matričnog elementa vrlo komplikovano jer

je stanje $\Phi_f^-(t)$ dato kao rješenje Schrödingerove jednačine sa ukupnim potencijalom, a ono nam nije poznato. Razlog uvođenja ove formulacije je taj što je ona veoma pogodna za uvođenje aproksimacija. Aproksimacija koja se najčešće koristi je tzv. aproksimacija jakog polja (SFA - **Strong Field Approximation**), koja se sastoji u tome da se potpuno zanemari utjecaj matičnog atoma (jona) na kretanje elektrona koji je prešao u kontinuum, sve do eventualnog rasijanja na njemu. U odjeljku **Volkovljevo rješenje**, rješenje Schrödingerove jednačine za elektron u laserskom polju je dato sa 1.33. Odgovarajući Gordon - Volkovljev Greenov operator je dat sa

$$G_L^+(t, t') = -i\theta(t - t') \int d^3k |\chi_q(t)\rangle \langle \chi_q(t')|.$$

Sa θ je označena *Heavisideova step funkcija*

$$\theta(x) = \begin{cases} 1, & x > 0 \\ 0, & x \leq 0 \end{cases} \quad (2.12)$$

dok je njena veza sa Diracovom delta - funkcijom data sa

$$\frac{d\theta(x - x_0)}{dx} = \delta(x - x_0).$$

U aproksimaciji jakog polja se u 2.11 $\Phi_f^-(t)$ aproksimira sa 1.33. Takva aproksimacija je prvi put uvedena u radovima **Keldysha**, **Faisala** i **Reissa**, pa se često naziva KFR aproksimacija, prema početnim slovima prezimena naučnika koji su je uveli. Također je moguće iskoristiti i poboljšanu SFA aproksimaciju, u kojoj se prvo iskoristi Lippmann - Schwingerova jednačina 2.9, a zatim zamijeni G sa G_L i $\Phi_f^-(t)$ sa $\chi_{\vec{k}f}(t)$.

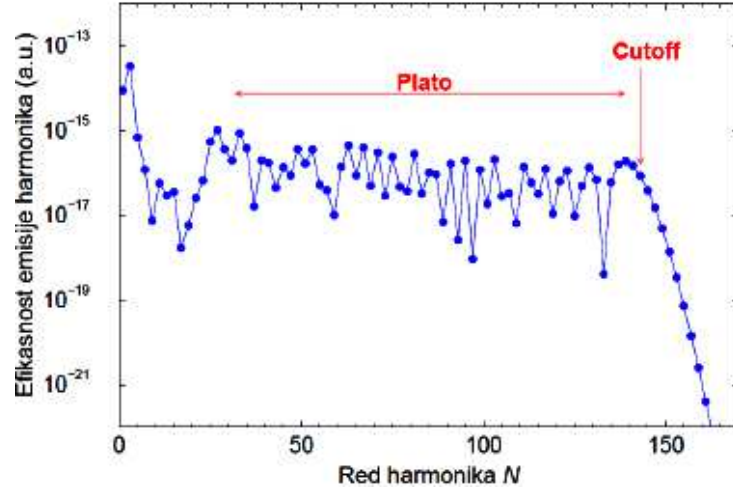
Poglavlje 3

Teorijski pristup za generaciju harmonika višeg reda

Jedan od najzanimljivijih nelinearnih procesa koji se javljaju kada je atomski ili molekularni sistem izložen djelovanju intenzivnog laserskog polja je generacija viših harmonika (*High-order Harmonic Generation-**HHG***). Francken i njegovi saradnici su 1961. godine otkrili optičku generaciju harmonika. Dugo vremena su primjene bile ograničene na niže redove harmonika. Nelinearni fenomen generacije harmonika višeg reda je opažen gotovo istovremeno 1987. godine u dvije laboratorije, u Chicagu i Saclayu. Naime, spektri fotona emitovanih od strane gasa izloženog djelovanju jakog laserskog polja pokazali su maksimume pri neparnim harmonicima frekvencije lasera. Ovi spektri se karakterišu pojavom platoa, tj. sa porastom reda harmonika slijedi jedno ravno područje u kojem je zavisnost reda harmonika manje-više ista. Ovaj plato se završava na nekom jasno određenom redu koji se naziva *cutoff* (odsijecanje spektra), kao što se može vidjeti na slici 3.1.

Eksperimentalne i teorijske studije pokazale su osnovne osobine HHG-a pomoću linearno polarizovanog monohromatskog laserskog polja. Inverziona simetrija, koja je prisutna samo u slučaju linearno polarizovanog polja, osigurava emitovanje samo neparnih harmonika. Ukoliko je ova simetrija narušena, moguće je i emitovanje parnih harmonika. Razvojem eksperimentalnih metoda postignuti su duži platoi i koherentno zračenje u tzv. "water window"² području talasnih dužina. Pokazano je da viši harmonici imaju nekoliko važnih osobina, a to su: dobra koherencija, ultrakratko trajanje pulsa (femtosekundno područje) i visok stepen sjaja. Navedene osobine omogućavaju širok spektar primjene.

²Oblast talasnih dužina (2.3-4.5) nm u kojoj je kontrast živih ćelija najveći.



Slika 3.1: Efikasnost emisije harmonika, kao funkcija reda harmonika N za generaciju viših harmonika pomoću atoma He ($I_p=24.588$ eV) i linearno polarizovano polje Ti: Safir lasera talasne dužine 800 nm i intenziteta 10^{15} W/cm². Predstavljani rezultati su dobijeni primjenom metode u kojoj je lasersko polje smatrano klasičnim, a polje harmonika kvantnim. Na slici je označen plato i cutoff.

U ovom poglavlju prvo razmatramo mikroskopski aspekt generacije viših harmonika, koji je povezan sa nelinearnim odgovorom atoma izloženog djelovanju jakog laserskog polja. Nakon toga, reći ćemo nešto i o makroskopskom aspektu, koji se mjeri u eksperimentu i sadrži koherentnu superpoziciju polja koju emituju svi atomi koji se nalaze pod utjecajem laserskog polja.

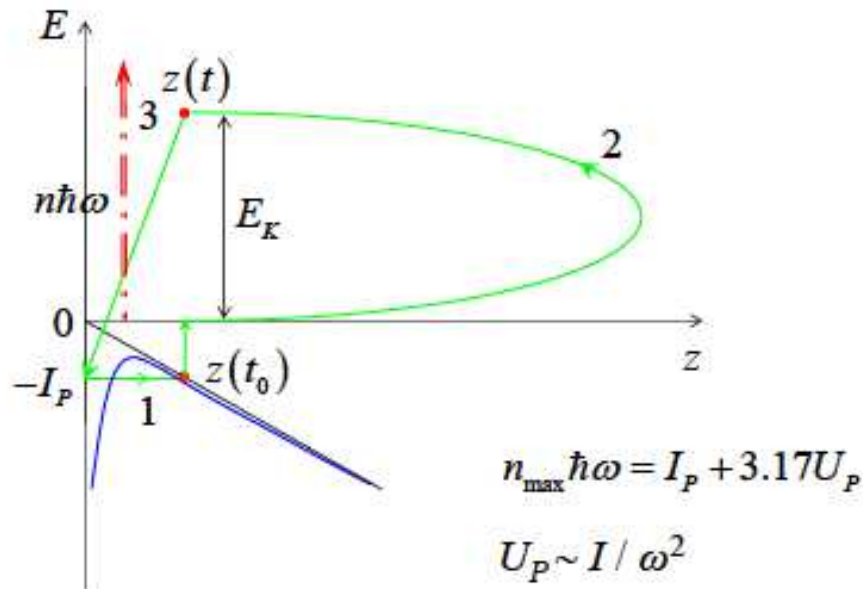
3.1 Mikroskopski aspekt

Jednostavan poluklasični model HHG-a dat je 1993. godine od strane Kulandera i Corkuma. U simulaciji atoma koji je izložen djelovanju laserskog polja, rješavanjem vremenski zavisne Schrödingerove jednačine (**T**ime-**D**ependent **S**chrödinger **E**quation-**T**DSE), pronađen je 1992. godine univerzalni zakon odsijecanja $I_p + 3.17U_P$, gdje je I_p -energija jonizacije, a U_P -ponderomotorna energija. Ponderomotorna energija je data formulom

$$U_P = \frac{E_L}{4\omega^2}$$

gdje su E_L amplituda jakog laserskog polja i ω frekvencija laserskog polja, respektivno. Zahvaljujući jonizaciji, elektron u nekom trenutku prelazi u

kontinuum. Nakon toga, lasersko polje ubrzava elektron. Međutim, kada polje promijeni znak, ono može vratiti elektron do njegovog matičnog jona, gdje se elektron može rekombinovati u vezano stanje, emitujući pri tome foton čija je energija jednaka sumi kinetičke energije stečene duž orbite i energije vezivanja. Ovaj model se često naziva *simple-man* model ili *three-step* (model tri koraka). Corkumov doprinos modelu leži u sugestiji da se elektron, pri povratku jonu, može i elastično i neelastično rasijati na njemu. Elastično rasijanje doprinosi HATI-u. Na slici 3.2 dat je grafički prikaz modela tri koraka.



Slika 3.2: Shematska prezentacija generacije viših harmonika u skladu sa modelom tri koraka. Lasersko polje je linearno polarizovano duž z -ose. Brojevi 1, 2 i 3, označeni na slici, predstavljaju karakteristične korake ovog modela. E -osa izražava energiju elektrona.

Predstavljeni poluklasični model se pokazao nedovoljnim za potpuno objašnjenje svih pojava vezanih za HATI i HHG. Ono je "ležalo" u potpunom kvantnomehničkom opisu HHG-a i HATI-a.

Za puno bolje razumijevanje ovih procesa primijenjen je koncept "kvantnih orbita", tj. kvantnomehnička generalizacija klasičnih orbita simple-man modela. Navedena generalizacija uzima u obzir interferenciju i efekat tuneliranja. U jakom polju sa nižim frekvencijama, elektron se u procesu tuneli-

ranja može osloboditi utjecaja jezgre. Poslije oslobađanja, elektron se kreće pod djelovanjem oscilirajućeg laserskog polja i utjecaj Coulombovog polja preostalog jona je zanemariv. Zbog oscilirajućeg karaktera laserskog polja, neke trajektorije mogu dovesti elektron ponovno do matičnog jona, usljed čega postoji vjerovatnoća da će se desiti rekombinacija sa matičnim jonom uz emisiju fotona. Energija ovako emitovanog fotona je $I_p - E_k$, pri čemu je E_k kinetička energija koju je elektron dobio krećući se u laserskom polju. Primjenom klasične mehanike pokazuje se da je maksimalna kinetička energija koju elektron može postići $3.17 U_p$. Ova maksimalna kinetička energija može biti znatno veća u prisustvu dodatnog statičkog električnog polja.

3.2 Teorijske metode opisa generacije viših harmonika

S -matrični formalizam, koji smo razvili u odjeljku 2.6.1, primijenit ćemo na generaciju viših harmonika. Razmotrit ćemo i aproksimaciju jakog polja i dati konačan izraz za T -matriču i vjerovatnoću emisije harmonika. Nakon toga ćemo predstaviti zavisnost vjerovatnoće emisije harmonika od reda harmonika.

3.2.1 S -matrični formalizam

S -matrični element koji opisuje prelaz iz početnog "i" stanja u konačno "f" stanje je dat sa

$$S_{fi} = i\hbar \lim_{t' \rightarrow \infty} \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \Phi_f(t') | G^{(+)}(t', t) | \Phi_i(t) \rangle, \quad (3.1)$$

gdje je $G^{(+)}(t', t)$ vremenski zavisni Greenov operator. Zajednička osobina navedenog i operatora $G^{(-)}(t', t)$ je da zadovoljavaju Schrödingerovu jednačinu sa delta funkcijom na desnoj strani

$$\left[i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H(t') \right] G^{\pm}(t', t) = \delta(t' - t),$$

gdje je $H(t')$ hamiltonijan sistema u trenutku t' , a $|\Phi_j(t)\rangle$ ($j=i, f$) su početno ($j=i$) i konačno ($j=f$) stanje. S obzirom na sljedeće uslove koji vrijede za Greenove operatore za $t' < t$ i $t' > t$

$$G^{+}(t', t) = 0,$$

$$G^{-}(t', t) = 0,$$

respektivno, u izrazu 3.1 je jasno je zašto se pojavljuje samo $G^+(t', t)$. Djelovanje Greenovog operatora na vektore stanja pojavljuje se u izrazu za jedinični matricni element. Definirat ćemo njegovo djelovanje na proizvoljne vektore stanja

$$\pm i\hbar G^\pm(t, t')|\phi(t)\rangle = |\phi(t')\rangle\theta[\pm(t - t')].$$

Hamiltonijan sistema posmatramo u obliku

$$H(t) = H_0(t) + e\vec{r} \cdot \vec{E}_H(t),$$

$$H_0(t) = \frac{\mathbf{p}^2}{2m_e} + V_A + H_L(t),$$

gdje je $\vec{p} = -i\hbar\nabla$. Član $e\vec{r} \cdot \vec{E}_H(t)$ predstavlja interakciju atoma i elektromagnetnog polja višeg harmonika dok izraz $H_L = e\vec{r} \cdot \vec{E}_L(t)$ predstavlja interakciju atoma sa laserskim poljem, a V_A atomski potencijal.

Uobičajeno je da se koristi semiklasični pristup. To znači da ćemo zbog velikog broja fotona u svakom modu, lasersko polje posmatrati kao klasično, a polje višeg harmonika kao kvantizirano. Kao što je navedeno u poglavlju 1 polje višeg harmonika je dato relacijom 1.16. Nakon uvrštavanja relacije 1.13 u 1.16 za modne funkcije u slučaju ravnog talasa u kocki sa dužinom stranice L dobijamo izraz za $\vec{E}_H(t)$

$$\vec{E}_H(t) = \sum_{\vec{K}} c_K \left[a_K^\dagger e^{i(\omega_K t - \vec{K} \cdot \vec{R})} \hat{e}_{\vec{K}}^* - a_{\vec{K}} e^{-i(\omega_K t - \vec{K} \cdot \vec{R})} \hat{e}_{\vec{K}} \right]. \quad (3.2)$$

Ovdje je $c_K = -i[\hbar\omega_K/(2\varepsilon_0 V)]^{1/2}$, a_K i a_K^\dagger su operatori stvaranja i poništavanja fotona respektivno, sa talasnim vektorom \vec{K} , frekvencijom ω_K i jediničnim vektorom polarizacije \hat{e} . \vec{R} je radijus-vektor centra masa, a $V = L^3$ je zapremina kvantizacije. Korištena je skraćena notacija $\vec{E}_H(t)$ umjesto $\vec{E}_H(\vec{R}, t)$. Pretpostavljamo da u početnom stanju $|\Phi_i(t)\rangle$ nema fotona, u slučaju rekombinacije elektrona sa matičnim jonom emituje se jedan harmonik sa talasnim vektorom \vec{K} , tako da ukupno konačno stanje posjeduje jedan visokoenergetski foton. Vrijedi

$$|\Phi_i(t)\rangle = |\Phi_{0i}(t)\rangle|0_K\rangle, |\Phi_f(t)\rangle = |\Phi_{0f}(t)\rangle|1_K\rangle, \quad (3.3)$$

gdje je $|\psi_{0j}(t)\rangle = |\psi_{0j}\rangle \exp(-iE_{0j}t/\hbar)$, $j=i,f$. Vektori stanja atoma $|\psi_{0j}\rangle$ i energije E_{0j} zadovoljavaju stacionarnu Schrödingerovu jednačinu

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V_A \right] |\psi_{0j}\rangle = E_{0j} |\psi_{0jk}\rangle.$$

Totalni Greenov operator $G^{(+)}(t, t')$ zadovoljava Lippmann-Schwingerovu jednačinu 2.10. Ukoliko uvrstimo izraze 3.2, 3.3 i 3.4 u 3.1 dobit ćemo

$$S_{fi} = \lim_{t' \rightarrow \infty} \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \psi_{0f}(t') | \int dt'' \langle 1_{\vec{k}} | G^{(+)}(t', t'') | 1_{\vec{k}} \rangle \times c_{\vec{K}} e^{\vec{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_{\vec{K}}^*} e^{i(\omega_K t - \vec{K} \cdot \vec{R})} G_0^{(+)}(t'', t) | \psi_{0i}(t) \rangle. \quad (3.4)$$

Prethodni izraz je egzakatan. Korištenjem Lippmann-Schwingerove jednačine 3.4 dobijamo

$$\langle 1_{\vec{k}} | G^{(+)}(t', t'') | 1_{\vec{k}} \rangle = G_0^{(+)}(t', t'') [1 + \mathcal{O}(H_H^2)],$$

gdje je sa $\mathcal{O}(H_H^2)$ označena interakcija sa poljem višeg harmonika u drugom redu, koju zanemarujemo. Pored toga, S -matrični element se dalje transformiše koristeći relacije

$$i\hbar \lim_{t' \rightarrow \infty} \langle \psi_{0f}(t') | G_0^{(+)}(t', t'') = \langle \Phi_f^{(-)}(t'') |,$$

$$i\hbar \lim_{t' \rightarrow -\infty} G_0^{(+)}(t'', t) | \psi_{0i}(t) \rangle = | \Phi_i^{(+)}(t'') \rangle.$$

Stanja $|\Phi_j^{(\pm)}(t)\rangle$, $j=i, f$ zadovoljavaju vremensku zavisnu Schrödingerovu jednačinu sa hamiltonijanom $H_0(t)$

$$\left[i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H_{0(t)} \right] |\Phi_j^{(\pm)}(t)\rangle = 0.$$

Korištenjem prethodne relacije na osnovu jednačine 3.4, dobijamo opći oblik S -matričnog elementa za emisiju višeg harmonika frekvencije $\omega_{\vec{K}}$, talasnog vektora \vec{K} i polarizacije $\hat{\mathbf{e}}_{\vec{K}}$.

$$S_{fi} = -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{K}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i(\omega_K t - \vec{K} \cdot \vec{R})} \hat{\mathbf{e}}_{\vec{K}}^* \cdot \vec{d}_{fi}(t),$$

gdje je sa $\vec{d}_{fi}(t)$ označen vremenski zavisni dipolni matrični element između početnog i konačnog atomskog stanja

$$\vec{d}_{fi}(t) = \langle \Phi_f^{(-)}(t) | e^{\vec{r}} | \Phi_i^{(+)}(t) \rangle. \quad (3.5)$$

3.2.2 Vremenski-zavisni dipolni matični element

U ovom poglavlju analizirat ćemo vremenski-zavisni matični element koji se pojavljuje u S -matičnom elementu. Vektori stanja $|\Phi_j^\pm(t)\rangle$, $j=i,f$ zadovoljavaju jednačinu

$$|\Phi_j^{(\pm)}(t)\rangle = |\psi_{0j}(t)\rangle - \int dt' G_0^\pm(t, t') H_L(t') |\psi_{0j}(t')\rangle. \quad (3.6)$$

Uvrštavanjem 3.6 u 3.5 dobijamo sljedeće izraze

$$\begin{aligned} \vec{d}_{fi}(t) &= \langle \psi_{0f}(t) | e\vec{r} | \psi_{0i}(t) \rangle + \vec{d}_a(t) + \vec{d}_e(t) + \vec{d}_{cc}(t), \\ \vec{d}_a(t) &= \langle \psi_{0f}(t) | e\vec{r} \int dt' G_0^{(+)}(t, t') H_L(t') | \psi_{0i}(t') \rangle, \\ \vec{d}_e(t) &= \int dt' \langle \psi_{0f}(t') | H_L(t') G_0^{(+)}(t', t) e\vec{r} | \psi_{0i}(t) \rangle \\ \vec{d}_{cc} &= \int dt' \int dt'' \langle \psi_{0f}(t') | H_L(t') G_0^{(+)}(t', t) e\vec{r} G_0^{(+)}(t, t'') H_L(t'') | \psi_{0i}(t'') \rangle \end{aligned}$$

Izraz za vremenski zavisni dipolni matični element sastoji se od četiri doprinosa i sada ćemo razmotriti svaki od njih.

Prvi doprinos $\langle \psi_{0f}(t) | e\vec{r} | \psi_{0i}(t) \rangle$ je jednak nuli ako je atomski potencijal sferno - simetričan i ukoliko se radi o istom početnom i konačnom stanju. Ovo je ispunjeno u slučaju generacije viših harmonika na atomima, tako da se u našem slučaju ovaj doprinos ne pojavljuje.

U slučaju **drugog doprinosa** \vec{d}_a u početnom trenutku t' dolazi do interakcije sa laserskim poljem nakon čega se atom jonizuje. Nakon jonizacije, elektron se kreće krpz lasersko polje koje ga vraća u blizinu matičnog jona. Vrijeme t' ćemo zvati vrijeme jonizacije. U trenutku t dolazi do rekombinacije elektrona sa jonom, nakon čega se emituje viši harmonik, a sistem prelazi u konačno stanje $|\psi_{0f}(t)\rangle$. Vrijeme t je vrijeme rekombinacije. Indeks "a" kod ovog doprinosa matičnom elementu označava apsorpciju fotona laserskog polja od strane atoma.

Treći doprinos \vec{d}_e opisuje vremenski potpuno inverzan proces prethodnom procesu, jer se u ovom procesu emituje viši harmonik.

Četvrti doprinos \vec{d}_{cc} predstavlja proces koji se može opisati u pet koraka. U početnom trenutku t'' dolazi do interakcije laserskog polja sa atomom, nakon čega se atom jonizuje. Drugi korak je kretanje elektrona u laserskom polju od trenutka jonizacije t'' do trenutka t . U trenutku t dolazi do emisije višeg harmonika. Zatim dolazi do prostiranja od trenutka t do trenutka t'' kada dolazi do laser-atomske interakcije uz prelaz atoma u konačno stanje $|\psi_{0f}(t')\rangle$. Indeks "c" označava kontinuum-kontinuum prelaze,

jer se viši harmonik emituje između dva prostiranja koja uglavnom uključuju kontinualna stanja.

Ovi doprinosi matičnom elementu mogu se izračunati koristeći aproksimaciju jakog polja. U slučaju \vec{d}_{cc} doprinosa, dva puta se pojavljuje Greenova funkcija. Smanjenje vjerovatnoće je direktna posljedica odvijanja ovog procesa u pet koraka. Pokazano je da je dominantan doprinos vremenski zavisnom matičnom elementu od $\vec{d}_a(t)$. Obzirom da je $\vec{d}_e(t) \approx \vec{d}_a(t)^*$ jedan od pristupa koji se naziva pristup efektivnog dipola uzima se

$$\vec{d}_{fi}(t) \approx \vec{d}_a(t) + \vec{d}_e(t) \approx \vec{d}_a(t) + \vec{d}_a^*(t) = 2\text{Re}[\vec{d}_a(t)].$$

Razlika u rezultatima za HHG spektre dobijenih S -matičnim pristupom i pristupom efektivnog dipola veoma je mala i odnosi se samo na prvih nekoliko harmonika.

3.2.3 Aproksimacija jakog polja (SFA)

Sušтина aproksimacije jakog polja je zanemarivanje međudjelovanja sa atomom u odnosu na međudjelovanje sa laserskim poljem, kada se radi o stanjima između jonizacije i rekombinacije. Greenov operator G_0 zamjenjuje se Gordon - Volkovljevim Greenovim operatorom G_L . Ukoliko izrazimo G_L preko Gordon - Volkovljevih talasnih vektora u $\vec{r} \cdot \vec{E}$ kalibraciji, dobit ćemo

$$\begin{aligned} \vec{d}_a(t) = & -\frac{i}{\hbar} \int d^3\vec{k} \langle \psi_{0f} | e\vec{r} | \vec{k} + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t) \rangle \int_{-\infty}^t dt' \exp \left[\frac{i}{\hbar} S(\vec{k}; t, t') \right] \\ & \times | \langle \vec{k} + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t') | H_L(t') | \psi_{0i} \rangle, \end{aligned} \quad (3.7)$$

pri čemu je kvaziklasična akcija data sa

$$S(\vec{k}; t, t') = E_{0f}t - \int_{t'}^t dt'' \frac{\hbar^2}{2m} \left[\vec{k} + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t'') \right]^2 - E_{0i}t'.$$

Trodimenzionalni integral po impulsu $\hbar\vec{k}$ se može se izračunati koristeći sljedeću formulu, koja se također pokazuje kao dobra aproksimacija

$$\begin{aligned} \hbar^3 \int d^3\vec{k} M(\vec{k}; t, t') \exp \left[\frac{i}{\hbar} S(\vec{k}; t, t') \right] &= \left[\frac{2\pi m \hbar}{i(t-t')} \right]^{3/2} \exp \left[\frac{i}{\hbar} S(\vec{k}; t, t') \right] \\ &\times \left[1 - i \frac{m \hbar}{2(t-t')} \frac{\partial^2}{\hbar^2 \partial \vec{k}^2} + \dots \right] M(\vec{k}; t, t')|_{\vec{k}=\vec{k}_s(t, t')}. \end{aligned}$$

$M(\vec{k}; t, t')$ označava proizvod matričnih elemenata koji se pojavljuje u izrazu 3.7. Stacionarni impuls $\hbar\vec{k}_s$ definisan je kao rješenje jednačine

$$\frac{\partial S(\vec{k}; t, t')}{\partial \vec{k}} = \vec{0}.$$

U razvoju po stacionarnim impulsima pojavljuju se stepeni od \hbar , pa u slučaju zanemarivanja članova višeg reda dobijamo kvaziklasičnu aproksimaciju. Zamjenom relacije $t' = t - \tau$ u relaciji za \vec{d}_a , dobijamo

$$\begin{aligned} \vec{d}_a(t) &\approx -\frac{i}{\hbar} \left(\frac{2m\pi}{i\hbar} \right)^{3/2} \int_0^\infty \frac{d\tau}{\tau^{3/2}} \exp \left(\frac{i}{\hbar} S(\vec{k}_s; t, t - \tau) \right) \\ &\times \left\langle \psi_{0f} | e^{i\vec{r} \cdot \vec{k}_s + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t)} \right\rangle \left\langle \vec{k}_s + \frac{e}{\hbar} \vec{A}(t - \tau) | H_L(t - \tau) | \psi_{0i} \right\rangle, \quad (3.8) \end{aligned}$$

gdje je

$$\hbar\vec{k}_s = -\frac{e}{\tau} \int_{t-\tau}^t dt'' \vec{A}(t'').$$

Integral po τ predstavlja integral po vremenu kretanja elektrona od trenutka jonizacije t' do trenutka rekombinacije t . Analogni izrazi se mogu izvesti i za matrične elemente $\vec{d}_e(t)$ i $\vec{d}_{cc}(t)$.

T-matrica i vjerovatnoća emisije harmonika

Polazimo od relacije za S -matricu

$$S_{fi} = -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega_{\vec{k}} t} \hat{\mathbf{e}}_{\vec{k}}^* \vec{d}_{fi}(t).$$

Ukoliko $e^{i\omega_{\vec{k}} t} \hat{\mathbf{e}}_{\vec{k}}^* \vec{d}_{fi}(t)$ označimo sa $f(t)$, za prethodnu relaciju dobijamo

$$S_{fi} = -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) dt.$$

Sada ćemo se koristiti matematički aparatom da bismo vidjeli čemu je jednako $\int_{-\infty}^{+\infty} f(t)dt$. Vrijedi

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x)dx &= \lim_{M \rightarrow \infty} \int_{-M}^M f(x)dx = \lim_{k \rightarrow \infty} \int_{-kT}^{kT} f(x)dx \\ &= \lim_{k \rightarrow \infty} \left[\int_{-kT}^{-kT+T} + \int_{-kT+T}^{-kT+2T} + \dots + \int_{kT-T}^{kT} \right] = \\ \lim_{k \rightarrow \infty} &\left[\int_{-kT}^{-T(k-1)} + \int_{-T(k-1)}^{-T(k-2)} + \int_{-T}^0 + \int_0^T + \dots + \int_{T(k-1)}^{kT} \right]. \end{aligned}$$

Posljednji izraz preko sume pišemo kao

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{i=-k}^{k-1} \int_{iT}^{(i+1)T} f(x)dx.$$

Uvodimo smjenu $x = iT + y$, pa je $dx = dy$ i $y = x - iT$. Granice integrala se mijenjaju, tj. vrijedi $\int_{iT}^{(i+1)T} \rightarrow \int_0^T$. Uvažavanjem prethodnog dobijamo

$$\int_{-\infty}^{+\infty} f(x)dx = \lim_{k \rightarrow \infty} \sum_{i=-k}^{k-1} \int_0^T f(iT + y)dy = \sum_{i=-\infty}^{+\infty} \int_0^T f(iT + t)dy.$$

Uvrštavanjem prethodnog u početnu relaciju za S -matricu, dobijamo

$$S_{fi} = -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \int_0^T f(kT + t)dt = -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_0^T \sum_{-\infty}^{+\infty} f(kT + t)dt.$$

U skladu sa $f(t) = e^{iat}g(t)$ vrijedi

$$\begin{aligned} S_{fi} &= -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega_{\vec{k}}t} e^{\frac{i}{\hbar} E_{0f}t - \frac{i}{\hbar} E_{0i}t} g(t) dt \\ &= -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i[\omega_{\vec{k}} + \frac{E_{0f}}{\hbar} - \frac{E_{0i}}{\hbar}]t} g(t) dt \\ &= -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{iat} g(t) dt. \end{aligned}$$

Sada ćemo potražiti čemu je jednak izraz $f(t + kT)$.

$$f(t + kT) = e^{ia(t+kT)}g(t + kT) = e^{iat}e^{iakT}g(t) = e^{iakT}f(t).$$

Vratit ćemo se izrazu za S -matricu:

$$S_{fi} = -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_0^T \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{iakT} f(t) dt.$$

Pošto vrijedi

$$\sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{-i2\pi kx} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(x - n).$$

Izračunat ćemo

$$\sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{iakT}.$$

Uvođenjem smjene $aT = -2\pi x$ iz koje slijedi $x = -\frac{aT}{2\pi}$ slijedi:

$$\begin{aligned} \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{iakT} &= \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{-i2\pi kx} \\ &= \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \delta\left(-\frac{aT}{2\pi} - n\right) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta\left(\frac{aT}{2\pi} + n\right) = \sum_n \delta\left(\frac{aT}{2\pi} - n\right). \end{aligned}$$

Slijedi

$$S_{fi} = -\frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_0^T f(t) dt \sum_n \delta\left(\frac{aT}{2\pi} - n\right).$$

S obzirom da je $a = \omega_{\vec{k}} + \frac{E_{of}}{\hbar} - \frac{E_{oi}}{\hbar}$ slijedi da je

$$\begin{aligned} \delta\left(\frac{aT}{2\pi} - n\right) &= \delta\left[\frac{T}{2\pi} \left(\omega_{\vec{k}} + \frac{E_{of}}{\hbar} - \frac{E_{oi}}{\hbar}\right) - n\right] \\ &= \delta\left[\omega^{-1} \left(\omega_{\vec{k}} + \frac{E_{of}}{\hbar} - \frac{E_{oi}}{\hbar}\right) - \frac{\omega^{-1}}{\omega^{-1}} n\right]. \end{aligned}$$

Jedna od osobina delta funkcije je $\delta(\alpha x) = \frac{1}{|\alpha|} \delta x$. Korištenjem navedene osobine dobijamo

$$\begin{aligned} \delta\left(\frac{aT}{2\pi} - n\right) &= \omega \delta\left[\frac{1}{\hbar} (\hbar\omega_{\vec{k}} + E_{of} - E_{oi} - n\omega\hbar)\right] \\ &= \hbar\omega \delta[\hbar\omega_{\vec{k}} + E_{of} - E_{oi} - n\hbar\omega]. \end{aligned}$$

Konačna relacija za S -matricu je

$$\begin{aligned} S_{fi} &= \frac{i}{\hbar} c_{\vec{k}} \int_0^T f(t) dt \sum_n \hbar \omega \delta [\hbar \omega_{\vec{k}} + E_{0f} - E_{0i} - n \hbar \omega] \\ &= -2\pi i c_{\vec{k}} \int_0^T \frac{dt}{T} f(t) \sum_n \delta [\hbar \omega_{\vec{k}} + E_{0f} - E_{0i} - n \omega \hbar]. \end{aligned}$$

Za periodično lasersko polje koje se mijenja sa periodom $T = 2\pi/\omega$, gdje je ω frekvencija laserskog polja, i za slučaj konstante obvojnice laserskog pulsa, vrijedi da je $H_0(t+T) = H_0(t)$. Tada je moguće uvesti T -matricu koja je sa S -matricom povezana gore izvedenom relacijom

$$S_{fi} = -2\pi i \sum_n \delta(\hbar \omega_{\vec{k}} + E_{0f} - E_{0i} - n \hbar \omega) c_{\vec{k}} T_{fi}(n).$$

Argument δ -funkcije izražava zakon očuvanja energije za generaciju viših harmonika. $T_{fi}(n)$ je T -matrični element, koji je izražen relacijom

$$T_{fi}(n) = \int_0^T \frac{dt}{T} e^{i\omega_{\vec{K}} t} \hat{\mathbf{e}}_{\vec{k}}^* \cdot \vec{d}_{fi}(t).$$

Konačno dobijamo izraz za vjerovatnoću emisije harmonika, frekvencije $\omega_{\vec{K}}$ i polarizacije $\hat{\mathbf{e}}_{\vec{k}}$ koji je dat preko T -matričnog elementa

$$w_{fi}(\omega_{\vec{K}}, \hat{\mathbf{e}}_{\vec{k}}) = \frac{\omega_{\vec{K}}^3}{8\pi^2 \varepsilon_0 \hbar c^3} |T_{fi}(n)|^2,$$

$$\hbar \omega_{\vec{K}} + E_{0f} = n \hbar \omega + E_{0i}. \quad (3.9)$$

3.3 Makroskopski aspekt

Ukoliko želimo vidjeti kakav je makroskopski odgovor sredine na koju djelujemo laserskim poljem sa ciljem generacije viših harmonika, potrebno je riješiti Maxwellove jednačine za slučaj prisutnog laserskog polja i polja višeg harmonika. Da bismo dobili više harmonike, koji imaju znatno veće energije od upadnog laserskog zračenja i koji imaju iste faze, dipole koji zrače moramo fazno podesiti (*phase – matching*). Osnovni cilj je da se upadna energija laserskog polja maksimalno iskoristi u konverziji u harmonijske talase reda q sa jačinom električnog polja E_q . Pri prolazu kroz nelinearnu sredinu (u našem slučaju je gas) harmonici moraju ostati u fazi sa upadnim zračenjem polarizacije P_q . Treba napomenuti da se kod generacije viših harmonika u gasovima idealno fazno podešavanje nikada nije postiglo. Polazna jednačina za proračun je nehomogena Maxwellova talasna jednačina po ukupnom električnom polju E sa polarizacijom P

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (3.10)$$

Da bismo dobili komponentu električnog polja E_q , potrebno je naći Fourierovu transformaciju jednačine 3.10.

Tehnike faznog podešavanja zavise od sredine na koju upada lasersko zračenje. U slučaju optičkih materijala poznate su dvije metode faznog podešavanja: ugaono podešavanje i temperaturno podešavanje. Za fazno podešavanje gasnih sredina koriste se dva gasa različitih indeksa prelamanja uz korištenje odgovarajućih talasnih dužina laserskog zračenja. Za dovoljno veliki intenzitet laserskog zračenja, talasna dužina na kojoj se dešava interakcija sa laserskim poljem je dovoljno mala, tako da nije neophodno vršiti lasersko podešavanje.

3.4 Uloga kvantnih orbita u generaciji viših harmonika

Proučavanje laserske atomske fizike je od izuzetnog značaja u nauci i tehnologiji. Generacija viših harmonika (HHG) i jonizacija iznad praga (ATI) su dva procesa najčešće izučavana u području intenzivne laserske atomske fizike. U tim procesima, elektron apsorbira i emituje veliki broj laserskih fotona u različitim vremenskim intervalima, tako da je broj puteva u kvantno-mehaničkom stanju prostora, koji povezuje početna i konačna kvantna stanja, beskonačan. Ovo proizlazi iz semiklasične aproksimacije relevantnih amplituda prelaza, što je veoma dobro opravdano za intenzivna laserska područja od interesa.

Kvantne orbite su usko povezane sa prostorno-vremenskim putanjama klasičnih čestica. Za određeni harmonik u HHG-u ili konačni elektronski impuls u ATI-u, mnoge kvantne orbite doprinose, što se razlikuje u vremenima kada jonizacijom dopiju u kontinuum i kasnijih vremena kada dođe do rekombinacije ili rasijanja. Vrijeme između jonizacije i rekombinacije može iznositi mnogo ciklusa laserskog polja. Kvantna mehanika je skrivena u ovaj opis na dva načina: doprinosi raznih putanja su predstavljeni u obliku Feynmanovog linijskog integrala. Gore navedeno je omogućilo kvantnim orbitama vrlo koristan alat za analizu različitih aspekata HHG-a, uzimajući u obzir samo nekoliko orbita ili čak samo jednu. To važi naročito u gornjem dijelu HHG platoa i njegovih kritičnih područja. Fokusirat ćemo se na situacije u kojima to nije tako, što je slučaj u određenoj sredini i niskoenergetskom dijelu platoa. Najvažnija odlika niskoenergetskog dijela platoa je rezonancija. Mala varijacija intenziteta laserskog polja za samo nekoliko postotaka može izazvati pojačanja pojedinih harmonika do određenog reda veličine. Takva poboljšanja razmatrana su eksperimentalno za ATI i HHG. Neki od eksperimentalnih rezultata pripisuju ove odlike multifotonskoj rezonanciji osnovnog stanja. U prisustvu laserskog polja, kontinuum stanja su pomjerena na viši stepen za vrijednost ponderomotorne energije U_P , pa se jonizacija može dogoditi tek nakon apsorpcije $n > (I_p + U_P)/\hbar\omega$ fotona energije $\hbar\omega$, gdje je I_p već poznata atomska jonizaciona energija. S povećanjem intenziteta laserskog polja, U_P se također povećava, dok n -fotonska jonizacija više nije moguća, a $n + 1$ fotona su potrebni. U formalizmu kvantnih orbita postoji mnogo odgovarajućih vjerovatnosti amplituda koje interferiraju. Konstruktivna interferencija tih amplituda će se manifestovati kao pojačanje u spektru HHG-a ATI-a.

3.4.1 Metod sedlaste tačke

Metod sedlaste tačke ili metod najbržeg spuštanja (eng. "Method of Steepest Descent") je metod koji služi za asimptotsku analizu integrala u kompleksnoj ravni. Ovaj metod predstavlja generalizaciju poznatog Laplaceovog metoda. Prvobitno ga je razvio B. Riemann krajem prethodnog stoljeća. Nezavisno od njega, metod je također razvio Debye. Ovaj metod se koristi kada je funkciju moguće izraziti u obliku integrala, čiji je opći oblik

$$I(s) = \int_C g(z) \exp[sf(z)] dz, \quad (3.11)$$

pri čemu je varijabla s realna. Kontura integracije C se bira tako da realni dio $f(z)$ teži minus beskonačno na obje granice i da integrant nestaje na granicama, ili se bira zatvorena kontura. Potrebno je još pretpostaviti da eksponencijalni faktor dominira nad faktorom $g(z)$ u posmatranoj oblasti. Ako je parametar s velik i pozitivan, vrijednost integranta će biti velika kada je realni dio $f(z)$ veliki, a mala kada je realni dio $f(z)$ mali ili negativan. S obzirom da s može biti proizvoljno veliko, kompletan doprinos vrijednosti integrala će dolaziti iz oblasti u kojoj realni dio $f(z)$ poprima pozitivnu maksimalnu vrijednost. U poređenju sa vrijednošću u ovom maksimumu, vrijednost integranda će biti zanemarljivo mala. To je očito ako se $f(z)$ izrazi kao

$$f(z) = u(x, y) + iv(x, y).$$

Osim u blizini maksimuma realnog dijela, imaginarni dio može proizvoljno da osciluje. Realni dio $f(z)$ je maksimalan kada je $u(x, y)$ maksimalan, odnosno kada vrijedi:

$$\frac{\partial u}{\partial x} = \frac{\partial u}{\partial y} = 0.$$

Upotrebom Cauchy-Riemannovih uslova, za prethodnu relaciju vrijedi

$$\frac{df(z)}{dz} = 0. \quad (3.12)$$

Treba naći vrijednosti z koje ovo zadovoljavaju. Potrebno je još napomenuti da je maksimalna vrijednost $u(x, y)$ maksimum samo za datu konturu, odnosno da apsolutni maksimum ne može imati ni realni ni imaginarni dio funkcije. Naime, oba moraju zadovoljavati Laplaceovu jednačinu

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} = 0.$$

Također, zbog pretpostavke da je funkcija $f(z)$ analitička isključene su singularne tačke. Dakle, treba izabrati konturu integriranja tako da budu zadovoljena sljedeća dva uslova. Prvi je da $u(x, y)$ ima maksimum u sedlastoj

tački, a drugi da ta kontura prolazi kroz sedlo na takav način da je imaginarni dio $v(x, y)$ konstantan. Drugi uslov vodi na putanju najbržeg spuštanja, po čemu je metod dobio ime. U sedlastoj tački, funkciju $f(z)$ je moguće razviti u Taylorov red, što znači:

$$f(z) = f(z_0) + \frac{1}{2}(z - z_0)^2 f''(z_0) + \dots$$

Član $(z - z_0)^2 f''(z_0)/2$ je realan i negativan. Uz pretpostavku da je $f''(z_0) \neq 0$, dobija se

$$f(z) - f(z_0) \approx \frac{1}{2}(z - z_0)^2 f'' = -\frac{1}{2s} t^2. \quad (3.13)$$

Prethodna relacija služi za definisanje nove varijable t . Ako napišemo $(z - z_0)$ u polarnoj formi, dobijamo

$$(z - z_0) = \delta \exp(i\alpha). \quad (3.14)$$

Faza α je konstantna te se dobija

$$t^2 = -s f''(z_0) \delta^2 \exp(2i\alpha). \quad (3.15)$$

S obzirom da je t realno, može se napisati kao $t = \pm \delta |s f''(z_0)|^{1/2}$. Iz jednačina 3.12 i izraza za t koji imamo

$$\frac{dz}{dt} = \left(\frac{dt}{dz} \right)^{-1} = \left(\frac{dt}{d\delta} \frac{d\delta}{dz} \right)^{-1} = |s f''(z_0)|^{-1/2} \exp(i\alpha).$$

Jednačina (3.24) postaje

$$I(s) \approx \frac{g(z_0) \exp[sf(z_0)] \exp(i\alpha)}{|s f''(z_0)|^{1/2}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{t^2}{2}\right) dt. \quad (3.16)$$

Integral u prethodnom izrazu je tzv. Gaussov integral greške i iznosi $\sqrt{2\pi}$ te se konačno dobija

$$I(s) \approx \frac{\sqrt{2\pi} g(z_0) \exp[sf(z_0)] \exp(i\alpha)}{|s f''(z_0)|^{1/2}}. \quad (3.17)$$

Potrebno je još napomenuti da kontura može prolaziti kroz dvije ili više sedlastih tačaka sukcesivno. S ciljem da dobijemo bolji uvid u fizikalni smisao rješenja metoda sedlaste tačke, uzet ćemo u obzir odgovarajuće kvantne orbite. Rješavanje Newtonove jednačine za elektron u laserskom polju, dobije se

$$x(t) = x(t_0) + [v(t_0) - A(t_0)](t - t_0),$$

gdje su $x(t_0)$ i $v(t_0)$ početna koordinata elektrona i brzina, respektivno. Sa $v(t_0) = q_s + A(t_0)$ i $x(t_0) = 0$, orbite $x(t)$ su određene (kompleksnim) rješenjima jednačina metoda sedlaste tačke. Možemo povezati njihove realne dijelove sa orbitama elektrona, koji putuje u vremenu i prostoru. Oni su

$$x_{ns} = \frac{A}{\omega} \text{Re}[\sin\varphi_R - \sin\varphi_{0s} + k_s(\varphi - \varphi_{0s})],$$

$$(\text{Re}\varphi_{0s} \leq \varphi_R \leq \text{Re}\varphi_s) \quad (3.18)$$

kao funkcija realnog vremena φ_R . To je nastajanje elektrona na kraju tunela na poziciji $x_{ns}(\text{Re}\varphi_{0s})$, a zatim se kreće u području laserskog polja, i u vremenu $(\text{Re}\varphi_s/\omega)$, vraća se u položaj iona, gdje se rekombinuje emitujući n -ti harmonik. Primjećujemo da, dok vrijedi $x_{ns}(\varphi_{0s}) = x_{ns}(\varphi_s) = 0$ za kompleksna rješenja φ_{0s} i φ_s , $x_{ns}(\text{Re}\varphi_{0s})$ i $x_{ns}(\text{Re}\varphi_s)$ su jednaki nula. Međutim $x_{ns}(\text{Re}\varphi_s)$ je vrlo blizu nule, za razliku od $x_{ns}(\text{Re}\varphi_{0s})$, koji je reda veličine nekoliko atomskih jedinica i određuje kraj tunela.

Poglavlje 4

Numerički rezultati

U ovom poglavlju razvit ćemo formule i prikazati ih u pogodnom formatu koji se direktno primjenjuje u numeričkim proračunima. Nakon toga prezentovat ćemo rezultate numeričkih proračuna za rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG. Također, predstaviti ćemo i rezultate dobijene primjenom teorije kvantih orbita.

4.1 Rezultati za vodikov atom

Polazimo od relacije za kvaziklasičnu akciju koja je data sa

$$S(\vec{k}; t, t_0) = - \int_{t_0}^t dt' \frac{[\vec{k} + \vec{A}(t')]^2}{2} + I_p. \quad (4.1)$$

Dodavanjem člana $n\omega t$ u prethodnu relaciju slijedi

$$S_n(\vec{k}; t, t_0) = S(\vec{k}; t, t_0) + n\omega t. \quad (4.2)$$

Uvrštavanjem (4.1) u (4.2) dobijamo:

$$S_n(\vec{k}; t, t_0) = - \int_{t_0}^t dt' \frac{[\vec{k} + \vec{A}(t')]^2}{2} + I_p + n\omega t. \quad (4.3)$$

Iz uslova

$$\frac{\partial S_n(\vec{k}; t, t_0)}{\partial t_0} = 0$$

uz korištenje formule

$$\frac{\partial}{\partial a} \int_a^b f(x) dx = -f(a)$$

dobijamo prvu jednačinu korištenu u numeričkom proračunu

$$[\vec{k} + \vec{A}(t_0)]^2 = -2I_p. \quad (4.4)$$

Prethodna relacija fizikalno predstavlja zakon očuvanja energije u trenutku jonizacije.

Iz uslova

$$\frac{\partial S_n(\vec{k}; t, t_0)}{\partial t} = 0$$

korištenjem formule

$$\frac{\partial}{\partial b} \int_a^b f(x) dx = f(b)$$

dobijamo drugu jednačinu korištenu u numeričkom proračunu

$$[\vec{k} + \vec{A}(t)]^2 = 2(n\omega - I_p). \quad (4.5)$$

Električno polje uzimamo u obliku

$$\vec{E}(t) = E_0 \sin(\omega t) \hat{e}_z, \quad (4.6)$$

odakle dobijamo potencijal

$$\vec{A}(t) = \frac{E_0}{\omega} \cos(\omega t) \hat{e}_z.$$

Stacionarni impuls \vec{k}_s je definisan kao rješenje jednačine

$$\frac{\partial S_n(\vec{k}; t, t_0)}{\partial \vec{k}} = \vec{0}.$$

U slučaju električnog polja (4.6) za \vec{k}_s dobijamo:

$$\vec{k}_s = -\frac{1}{t - t_0} \int_{t_0}^t \vec{A}(t'') dt'' = -\frac{E_0}{\omega^2} \frac{1}{t - t_0} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0)] \hat{e}_z.$$

Sređivanjem izraza u uglastoj zagradi u (4.1) i integriranjem, dobijamo sljedeće:

$$S = -\frac{1}{2} \int_{t_0}^t \vec{k}_s^2 (t - t_0) - \frac{1}{2} \int_{t_0}^t \vec{A}^2(t'') dt'' - I_p (t - t_0).$$

Vrijedi da je $t_0 = t - \tau$. Uvrštavanjem rješenja za $\vec{k}_s = \vec{k}_s(\varphi, \varphi_0)$ u jednačine 4.4 i 4.5, dobijamo sistem od dvije nelinearne jednačine koji se rješava numerički za kompleksne varijable φ i φ_0 . Vrijedi $\varphi = \omega t$ i $\varphi_0 = \omega t_0$.

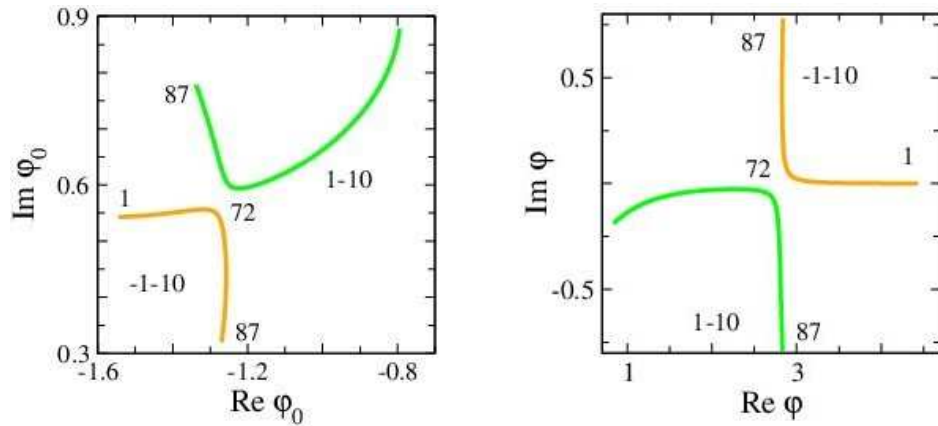
Sada ćemo prezentovati rezultate tih proračuna. Razmotren je atom vodika (H) u linearno polarizovanom laserskom polju. Jonizaciona energija I_p iznosi 13.6 eV, intenzitet laserskog polja je $2 \cdot 10^{14}$ W/cm², a energija fotona je 1.17 eV.

Za opisivanje raznih rješenja jednačina 4.4 i 4.5 koristimo tri broja $\alpha\beta m$. Naime, za vrijeme t unutar jednog ciklusa polja $0 \leq t < T$ postoji mnogo parova rješenja, koji su određeni početnim vremenom t_0 .

Za $-(m+1/2)T \leq t_0 < -(m-1/2)T$, gdje je $m = 0, 1, 2 \dots$ postoje dva para rješenja. Par koji ima najduže (najkraće) vrijeme putovanja $t-t_0$ ima indeks $\beta = -1$ ($\beta = +1$). Svaki par posjeduje dvije orbite čije se vrijeme putovanja razlikuje za nijansu (Lewensteinov model HHG-a). Pravimo razliku između duge i kratke orbite pomoću indeksa α . Indeks m predstavlja aproksimaciju dužine trajanja putovanja elektrona laserskog perioda $m = [(t-t_0)/T]$. Za $m = 0$ postoji jedan par rješenja sa $\beta = -1$.

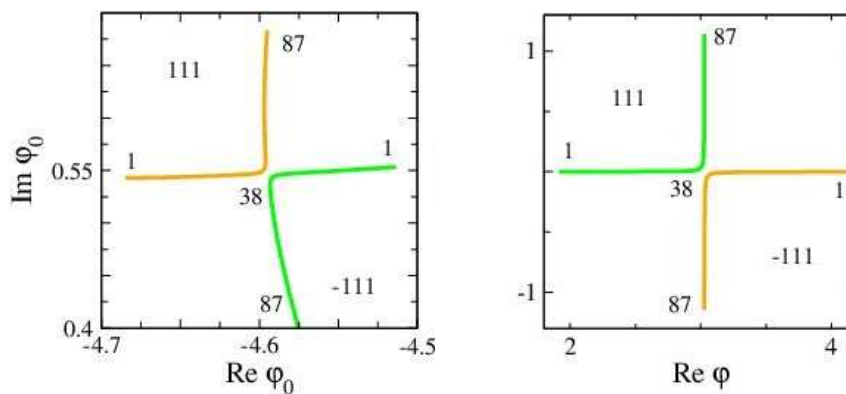
Lijevi paneli slika predstavljaju $\text{Im}\varphi_0$ u funkciji $\text{Re}\varphi_0$, dok je na desnim panelima predstavljena funkcionalna zavisnost $\text{Im}\varphi$ od $\text{Re}\varphi$. Promjenom reda harmonika n mijenja se kontinuirano duž svake krive. Odgovarajuće vrijednosti reda harmonika su prikazane na početku i kraju svakog pojedinačnog rješenja. Za sva ova rješenja, imaginarni dio varijable $\varphi = \omega t$ je veoma mali, dok realni dio leži u intervalu $[0, 2\pi]$.

Na slici 4.1 prikazano je rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke $\alpha\beta m = -1 - 10$ na vodikovom atomu.



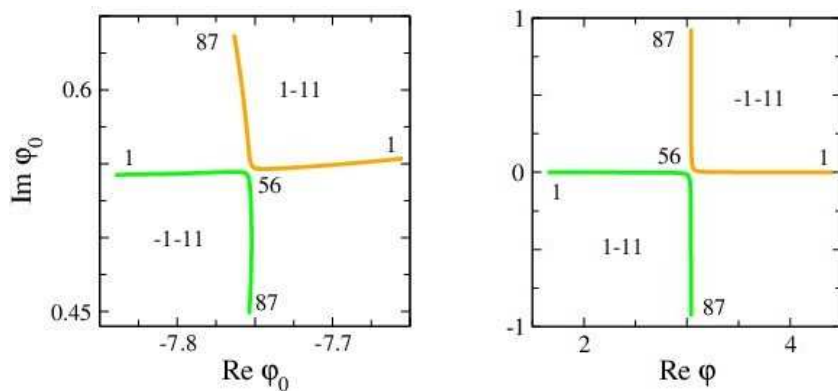
Slika 4.1: Rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na vodikovom atomu, $\alpha\beta m = -1 - 10$.

Na slici 4.2 dato je rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke $\alpha\beta m = -111$ i 111 na vodikovom atomu.



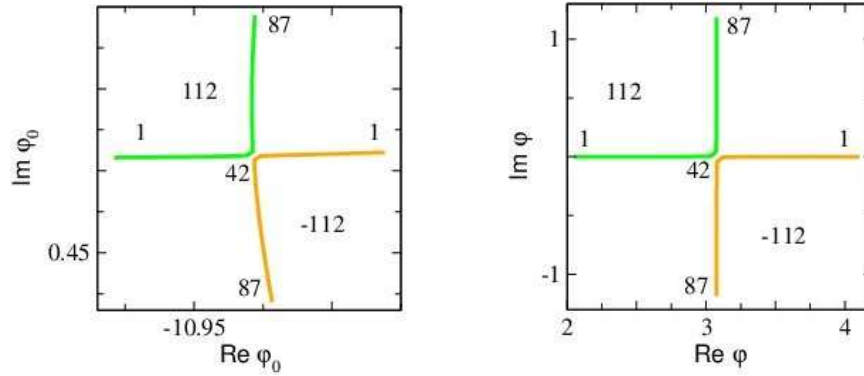
Slika 4.2: Rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na vodikovom atomu, $\alpha\beta m = -111i111$.

Slika 4.3 predstavlja rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke $\alpha\beta m = -1 - 11$ i $1 - 11$ na vodikovom atomu.



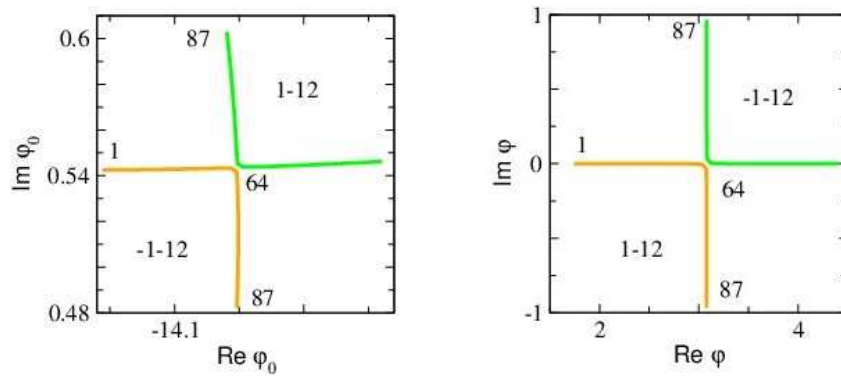
Slika 4.3: Rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na vodikovom atomu, $\alpha\beta m = -1 - 11$ i $1 - 11$.

Na slici 4.4 prikazano je rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke $\alpha\beta m = -112$ i 112 na vodikovom atomu.



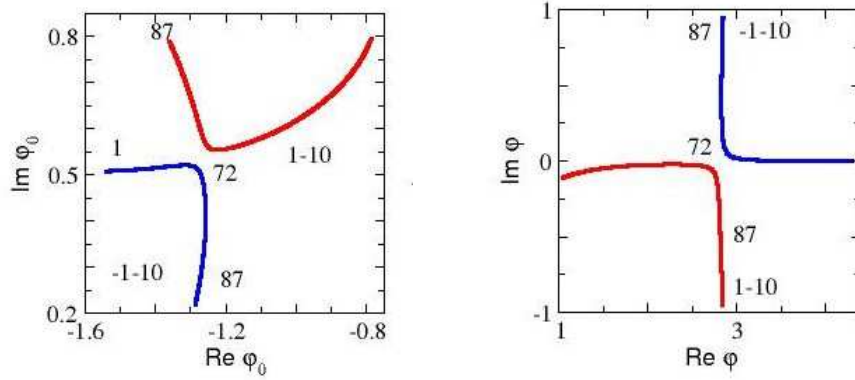
Slika 4.4: Rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na vodikovom atomu, $\alpha\beta m = -112$ i 112 .

Na slici 4.5 dato je rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke $\alpha\beta m = -1 - 12$ i $1 - 12$ na vodikovom atomu.

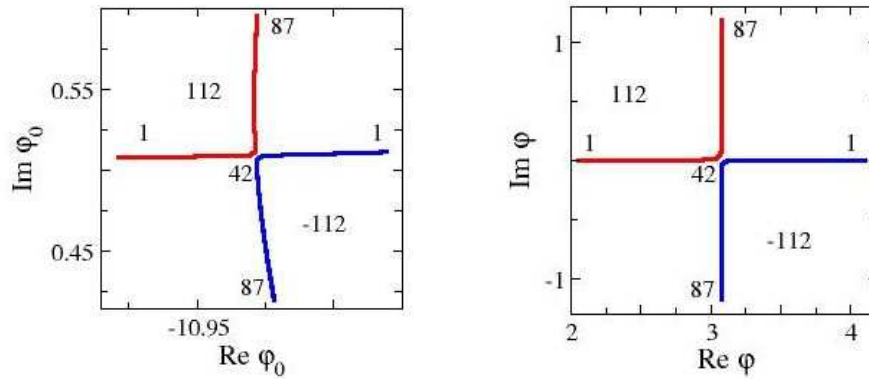


Slika 4.5: Rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na vodikovom atomu, $\alpha\beta m = -1 - 12$ i $1 - 12$.

Na slikama 4.6 i 4.7 predstavljeni su rezultati proračuna za sljedeće parametre: jonizacijska energija I_p iznosi 13.6 eV, intenzitet laserskog polja je $4 \cdot 10^{14}$ W/cm², a energija fotona je 1.54 eV.



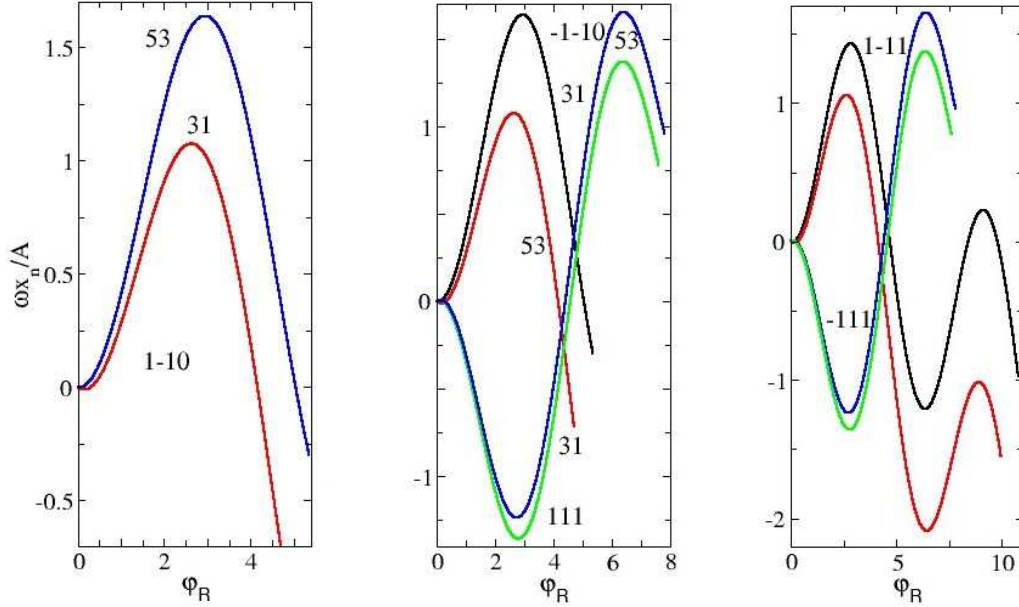
Slika 4.6: Rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na vodikovom atomu, $\alpha\beta m = -1 - 10$ i $1 - 10$.



Slika 4.7: Rješenje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na vodikovom atomu, $\alpha\beta m = 112i - 112$.

Sada ćemo predstaviti numeričke rezultate za realni dio kvantnih orbita dobijene korištenjem jednačine 3.18 i metoda sedlaste tačke. U spomenutoj jednačini φ_R predstavlja realno vrijeme i nalazi se na apscisama slike 4.8 dok je A amplituda vektorskog potencijala. Elektron se "rodi" na kraju tunela na poziciji $x_{ns}(\text{Re}\varphi_{0s})$, a zatim se kreće u oblasti djelovanja laserskog polja, i u vremenu $(\text{Re}\varphi_s/\omega)$, vraća se u položaj iona, gdje se rekombinuje emitujući n -ti harmonik. Primjećujemo da, dok vrijedi $x_{ns}(\varphi_{0s}) = x_{ns}(\varphi_s) = 0$ za kompleksna rješenja φ_{0s} i φ_s , $x_{ns}(\text{Re}\varphi_{0s})$ i $x_{ns}(\text{Re}\varphi_s)$ su različiti od nule.

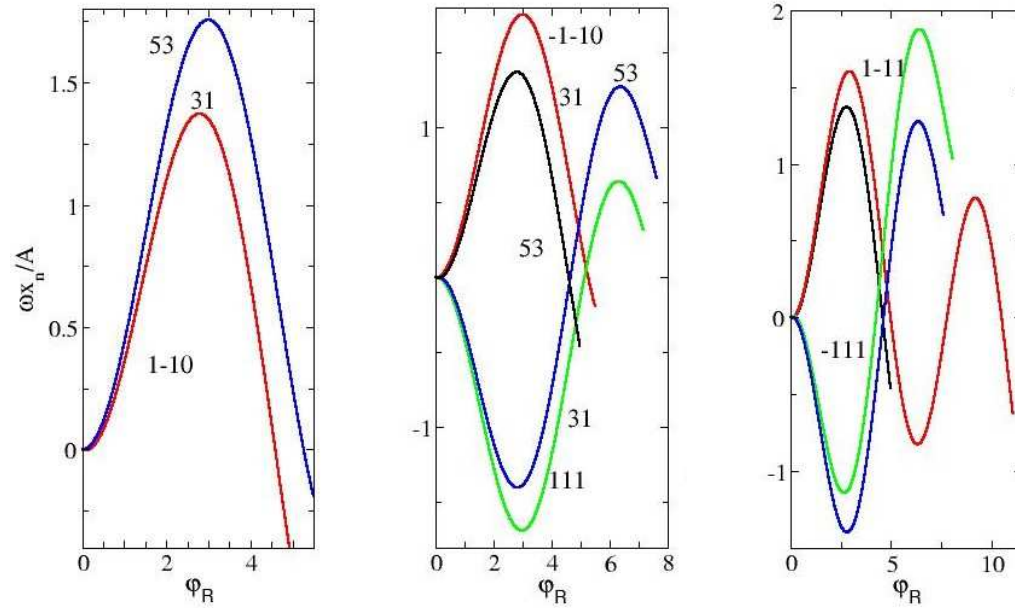
Međutim $x_{ns}(\text{Re}\varphi_s)$ je vrlo blizu nule, za razliku od $x_{ns}(\text{Re}\varphi_{0s})$, koji je reda veličine nekoliko atomskih jedinica i određuje kraj tunela.



Slika 4.8: Realni dijelovi kvantnih orbita za red harmonika $n=9,31$ i $n=53$. Realni dijelovi kvantnih orbita za red harmonika $n=9,31$ i $n=53$. Vrijednosti $\alpha\beta m$ su 1-10 za prvu, -1-10 i 111 za drugu i 1-11 i -111 za treću sliku, respektivno.

Rezultate proračuna predstaviti ćemo za sljedeće parametre: jonizaciona energija I_p iznosi 13.6 eV, intenzitet laserskog polja je $4 \cdot 10^{14}$ W/cm², a energija fotona je 1.54 eV.

Na slikama 4.8 i 4.9 predstavljene su orbite za različite vrijednosti reda harmonika n i za različita rješenja metoda sedlaste tačke $s = \alpha\beta m$. Na lijevoj strani navedenih slika najkraća orbita 1-10 je opisana za red harmonika $n=9$, $n=31$ i $n=53$. Rješenja i orbita 1-10 opisuju elektron koji je "rođen" na kraju tunela i kreće se nazad do jezgre jona, bez napuštanja atoma uz sticanje dovoljne energije za pojavu devetog harmonika. Sve ostale orbite sa slike odgovaraju tunelirajućoj rekombinaciji modela tri koraka HHG-a. Za duže orbite ($m = 1$), elektron se više puta vraća jezgri atoma, prije nego što se rekombinuje.



Slika 4.9: Realni dijelovi kvantnih orbita za red harmonika $n=9, 31$ i $n=53$. Za prvu sliku $\alpha\beta m = 1 - 10$, $\alpha\beta m = -1 - 10$ i 111 za drugu sliku i za treću sliku $\alpha\beta m = 1 - 11$ i -111 .

Za visoko nabijene jone, niži dio spektra može sadržavati stotine harmonika, koji su nazvani netunelirajući harmonici, jer se njihova generacija u cijelosti odvija unutar atoma. Formirana klasična slika u potpunosti opisuje ovaj proces. Odgovarajuće orbite izgledaju poput orbita za $n = 9$ na lijevom panelu slike 4.8. Međutim, njihov detaljan oblik je povezan s prisustvom i oblikom atomskog potencijala. U ovom slučaju, deveti harmonik doprinosi metodi sedlaste tačke i omogućava identifikaciju kvantnih orbita, iako se njegova generacija odvija potpuno u kvantnom režimu.

Poglavlje 5

Primjena generacije viših harmonika

Za širok spektar primjene viših harmonika najzaslužnije su koherentne osobine, tj. činjenica da se viši harmonici mogu generisati u obliku kratkih prostorno-vremenskih koherentnih pulseva. Navest ćemo tri oblasti primjene viših harmonika: nelinearna optika u XUV području, interferometrija i atofizika.

5.1 Nelinearna optika u XUV području

Primjenom sfernih ogledala snop viših harmonika se može vrlo jednostavno refokusirati na veoma uske snopove reda veličine nekoliko μm . Cilj je fokusirati pulseve viših harmonika na male površine, čime se znatno povećava njihov intenzitet. Ukoliko proces refokusiranja sačuva karakter kratkog pulsa, dobija se vrlo intenzivan snop u XUV području, vrlo pogodan za primjene. Mikroskopija bioloških uzoraka jedna je od najvažnijih primjena ovako dobijenog zračenja viših harmonika u bliskom XUV području. Za posmatranje živih organizama u sredini okruženoj vodom, prednost im daju visok stepen prostorne rezolucije i velika prodornost kroz vodu. Oblast od praktičnog interesa za primjene u biologiji je tzv. "water window" iz razloga što je u ovoj oblasti kontrast živih ćelija najbolji. U holografiji i trodimenzionalnoj spektroskopiji visoke rezolucije se također može iskoristiti visok stepen prostorne koherencije.

5.2 Interferometrija

Zbog veoma visoke frekvencije i kratkog trajanja pulseva viših harmonika, ovo područje primjene je od izuzetnog značaja. Razlozi za primjene ove vrste su praktični. Naime, koherentni harmonici visokih frekvencija mogu proći kroz materijalnu sredinu bez značajnih apsorpcija. Od interesa su laserski indukovane plazme. Zračenje kraćih talasnih dužina je mnogo manje osjetljivo na prostiranje kroz materijale koji posjeduju znatne promjene indeksa prelamanja te se iz tog razloga koristi u sredinama veoma promjenljivog indeksa prelamanja, kao što je plazma. Zbog svog veoma kratkog vremena trajanja, viši harmonici su veoma pogodni za „kvazi-trenutno“ ispitivanje dinamike sistema. Razlog zbog kojeg se koristi prefiks „kvazi“ jeste konačno vrijeme trajanja impulsa koje, iako veoma kratko traje, ipak postoji.

Zbog navedenih razloga, interferometrija pomoću viših harmonika se pokazala kao vrlo snažno dijagnostičko sredstvo za različite sredine, među kojima je i plazma. Visoka frekvencija harmonika (povezano s kratkoćom pulsa) čini prilično teškim korištenje interferometara koji rade na principu dijeljenja amplitude i njihovoj ponovnoj interferenciji (Michelsonov interferometar). S druge strane, izvanredna prostorna koherencija viših harmonika je pogodna za poboljšanje interferometara koji rade na principu dijeljenja talasnog fronta (interferometri Youngovog tipa).

Eksperimentalni fizičari su predložili dva tipa interferometrijskih eksperimenata. Ideja ovih eksperimenata je korištenje dva usaglašena harmonijska snopa od kojih prvi prolazi, a drugi ne prolazi kroz sredinu koju ispitujemo. Oba snopa nakog toga interferiraju. Realizacija jednog ovakvog eksperimenta zahtijeva postizanje što boljeg prostornog i vremenskog preklapanja dva harmonijska pulsa, što je i uslov nastajanja interferencije. Druga vrsta eksperimenata se zasniva na korištenju jednog harmonijskog snopa koji prolazi kroz sredinu sa prostorno-promjenljivim indeksom prelamanja. Pri prolasku kroz takvu sredinu, dolazi do dijeljenja snopa i nakon toga se dešava interferencija. Na taj način se iz interferencione slike dobijaju interesantni podaci o ispitivanoj sredini.

5.3 Atofizika

Harmonici višeg reda predstavljaju najčešće korišten način generacije atosekundnih pulseva. Pri tome se koriste različite sheme. Prva od shema radi na principu faznog usaglašavanja emitovanih harmonika u području platoa. Ukoliko su emitovani harmonici u platou spektra u fazi, odgovarajući vremenski profil sadrži niz pulseva sa razmakom od pola perioda laserskog polja i trajanjem u atosekundnom području.

S druge strane Corkum i saradnici su predložili generisanje jednog izdvojenog pulsa korištenjem činjenice da je generacija viših harmonika dobijenih u gasnoj sredini veoma osjetljiva na polarizaciju laserskog polja. Tako se korištenjem laserskog polja čija je polarizacija linearna samo u kratkom vremenskom intervalu, bliskom periodu laserskog polja, trajanje emisije viših harmonika može ograničiti ovim intervalom. Proračuni su potvrdili valjanost ove ideje. U originalnom prijedlogu Corkuma i saradnika, sugerisano je korištenje dva ukrštena linearno polarizovana laserska polja neznatne razlike u frekvenciji sa ciljem dobijanja traženog oblika vremenski – zavisne polarizacije. Wahlström i saradnici su realizovali ovu ideju na nešto drugačiji način. Naime, oni su koristili površinu kristala sa dvojnim prelamanjem i kratak upadni puls, raširen CPA tehnikom po frekvenciji, čiji vektor polarizacije zaklapa ugao od 45° u odnosu na optičku osu kristala. Usljed dvojnog prelamanja, upadni puls se cijepa na dva međusobno okomito polarizovana pulsa sa vremenskim pomakom. Kada je fazna razlika između ta dva polarizovana pulsa jednaka nuli, dobija se linearno polarizovani puls. Tako se mogu dobiti dva ili više izdvojenih pulseva ultrakratkog vremena trajanja, sa mogućnošću podešavanja vremena kašnjenja.

Predložena je i nešto drugačija tehnika generacije atosekundnih pulseva. Za modulisanje polarizacije laserskog polja se koristi obična kombinacija dvije kvarcne pločice sa dvojnim prelamanjem. Očekuje se da će se kombinovanjem te tehnike sa "few – cycle" laserskim pulsevima sa stabilizovanom fazom moći ostvariti pulsevi trajanja ispod 100 as.

Pored problema generacije atosekundnih pulseva, izazov predstavlja i detekcija i primjena ovakvih pulseva. S obzirom na veoma kratko trajanje pulsa mogućnosti primjene su mnogobrojne. Ovi pulsevi se mogu koristiti u fizikalnoj hemiji za postizanje mnogo bolje vremenske rezolucije pri proučavanju dinamike molekularnih procesa.

Poglavlje 6

Zaključak

U okviru poglavlja 1 upoznali smo se sa kvantizacijom elektromagnetnog polja i interakcijom sa atomskim sistemom. Pokazali smo da je u razmatranoj oblasti frekvencija elektromagnetnog polja dovoljno uzeti u obzir dipolnu električnu interakciju elektromagnetnog polja i atoma. Predstavili smo i neke od reprezentacija elektromagnetnog polja među kojima su Fockova i koherentna stanja. Zanimali su nas samo slučajevi kada imamo laserska polja veoma velikog inteziteta te smo korištenjem kvantno-mehaničkog pristupa došli do izraza za vektorski potencijal u interakcionoj reprezentaciji. Pristup koji je uglavnom korišten u ovom radu je semiklasični, pri kojem polje razmatramo kao klasično, a čestice opisujemo kvantno-mehaničkim talasnim funkcijama. U okviru kalibracionih transformacija obradili smo tri vrste kalibracija te dali relacije za odgovarajuće hamiltonijane. Razmotreni su i mehanizmi jonizacije, nakon čega je uveden Keldyshev parametar.

U poglavlju 2 predstavljeni su atomski procesi u jakom laserskom polju, kao što su atomsko rasijanje, multifotonska jonizacija, jonizacija iznad praga, jonizacija iznad praga višeg reda, kao i rasijanje X-zraka na atomu. Teorijske metode koje se koriste pri njihovom razmatranju, S -matrični formalizam i aproksimacija jakog polja detaljno su predstavljene.

U poglavlju 3 obrađen je teorijski pristup za generaciju viših harmonika u okviru kojeg su razmotreni mikroskopski i makroskopski aspekt, S -matrični formalizam te uloga kvantnih orbita u generaciji viših harmonika. Uvedeni su osnovni termini koji karakterišu spektar viših harmonika, kao što su plato i cutoff. U okviru razmatranja mikroskopskog aspekta posebna pažnja je posvećena modelu tri koraka. U ovom poglavlju dali smo detaljno izvođenje relacije koja predstavlja vezu T -matrice i S -matrice.

Poglavlje 4 je rezervisano za numeričke rezultate u okviru kojeg smo prilagodili formalizam numeričkom rješavanju. Napisani su računarski programi u programskom jeziku Fortran 77 za rješavanje sistema nelinearnih jednačina primjenom metoda sedlaste tačke za HHG na osnovu relacija 4.4, 4.5 i za dobijanje realnog dijela kvantnih orbita pomoću relacije 3.18. Rezultati računarskog modeliranja predstavljani su na graficima, koji su dati u ovom poglavlju. Navedeni rezultati su u skladu sa rezultatima rada [12].

Na samom kraju ovog rada, u poglavlju 5 dat je pregled osnovnih primjena generacije viših harmonika. Neke od razmotrenih oblasti su: nelinearna optika u XUV području, interferometrija i atofizika. Zbog veoma visoke frekvencije i kratkog trajanja pulseva viših harmonika, interferometrija sa višim harmonicima je područje primjene od izuzetnog značaja. Unutar ovog područja razmotrena su dva tipa interferometrijskih eksperimenata na osnovu kojih se iz interferencione slike dobijaju interesantni podaci o ispitivanoj sredini. Treća oblast, atofizika, bazirana je na činjenici da harmonici višeg reda predstavljaju najčešće korišten način generacije atosekundnih pulseva. Ovi pulsevi mogu se koristiti u fizikalnoj hemiji za postizanje mnogo bolje vremenske rezolucije pri proučavanju dinamike molekularnih procesa.

Bibliografija

- [1] M. Busuladžić, *Jonizacija atoma jakim laserskim poljem*, magistarski rad, Univerzitet u Tuzli, 2007.
- [2] B. Fetić, *Rasijanje X-zraka na atomima u prisustvu laserskog polja*, diplomski rad, Univerzitet u Sarajevu, 2010.
- [3] W. Greiner, *Quantum Mechanics: An Introduction*, Springer, Berlin, 2001.
- [4] D. Habibović, *Generacija viših harmonika na atomima*, diplomski rad, Univerzitet u Sarajevu, 2013.
- [5] A. Kramo, *Jonizacija jakim laserskim poljem*, diplomski rad, Univerzitet u Sarajevu, 2004.
- [6] M. Kurepa, *Uvod u fiziku atoma i molekula*, Novi Sad, 1996.
- [7] M. H. Mittleman, *Theory of Laser - Atom Interactions*, Plenum Press, New York, 1993.
- [8] S. Odžak and D. B. Milošević *High-order harmonic generation in the presence of a static electric field*, Phys. Rev. A **72**, 033407 (2005)
- [9] S. Odžak, *Generacija viših harmonika u prisustvu jakog statičkog električnog polja*, magistarski rad, Univerzitet u Sarajevu, 2006.
- [10] D. B. Milošević, *Osnove lasera (sa zbirkom riješenih zadataka)*, Sarajevo, 1996.
- [11] D. B. Milošević *X-ray-atom scattering in the presence of laser field*, Phys. Rev. A **58**, 2319 (1998)
- [12] D. B. Milošević, W. Becker *Role of long quantum orbits in high-order harmonic generation*, Phys. Rev. A **66**, 063417 (2002)
- [13] D. B. Milošević, *Kvantna mehanika I*, Sarajevo, 2012.