

Klassisch oder Quantenmechanisch - was moduliert die Spektren?

Ultraschnelle Elektronendynamik in Nahfeldern

L. Seiffert, T. Fennel, Institut für Physik, Universität Rostock

Kurzgefasst

- Nanostrukturen ermöglichen die Generierung von stark fokussierten Nahfeldern
- Die kohärente Elektronenemission von metallischen Nanospitzen lässt sich mit Zweifarben-Laserfeldern gezielt steuern

Ultrakurze Laserpulse mit Pulslängen im Femto- und Attosekundenbereich ermöglichen die detaillierte Untersuchung der Elektronenbewegung in Materie auf ihrer natürlichen Zeitskala. Das vorliegende Projekt widmet sich der Analyse der durch Laseranregung getriebenen Elektronendynamik in metallischen Nanospitzen. Diese Systeme erlauben die gezielte Erzeugung lokalisierter Nahfelder (Sub-Wellenlängen-Nanofokussierung) und sind daher ein ideales Modellsystem um korrelierte und kollektive Vielteilcheneffekte in der Attosekunden-Elektronendynamik lasergetriebener Nanostrukturen zu erforschen. Im Fokus der Untersuchungen stehen die gezielte Steuerung der Elektronenemission mit ultrakurz intensiven Zweifarben-Laserfeldern. Ein fundamentales Verständnis der dominanten Prozesse innerhalb der durch diese Anregung induzierten ultraschnellen Nichtgleichgewichtsdynamik ist zum Beispiel von großem Interesse für die Realisierung ultraschneller Optoelektronik mit Taktraten im Petahertzbereich [1].

Eine typische Herangehensweise zur Untersuchung der nahfeldgetriebenen Elektronendynamik ist die Aufnahme und Auswertung von Energiespektren der emittierten Elektronen. Von besonderem Interesse sind Elektronen, die nach dem Austreten aus der Nanostruktur zur Oberfläche zurück beschleunigt und dort elastisch rückgestreut werden. Dieser Rekollisionsprozess stellt einen effizienten Beschleunigungsmechanismus für die Erzeugung schneller Elektronen dar und führt bei Anregung mit intensiven Laserpulsen dazu, dass Rückstreuerelektronen den hochenergetischen Bereich der Elektronenspektren dominieren. Im Gegensatz zur Rückstreuung an atomaren oder molekularen Systemen kann der Beschleunigungsprozess an Nanostrukturen dabei substantiell modifiziert werden. Die dafür verantwortlichen physikalischen Mechanismen sind im wesentlichen die Struktur der Nahfelder [2][3], Ladungswechselwirkung infolge der

Emission vieler Elektronen [4] und Stoßprozesse der Elektronen im Material der Nanostruktur. Der Einfluss dieser Aspekte auf die Elektronenemission steht im Fokus dieses Projekts.

In hochaktuellen Experimenten der AG Prof. Hommelhoff (Erlangen) wurde gezeigt, dass die Anregung von metallischen Nanospitzen mit wellenform-kontrollierten Zweifarben-Laserpulsen nahezu perfekte kohärente Kontrolle der Photoemission von Elektronen ermöglicht [5][6]. Im Speziellen konnte demonstriert werden, dass die Anzahl an emittierten Elektronen mithilfe der relativen Phase zwischen den beiden spektralen Komponenten des Zweifarben Laserpulses - bestehend aus einer Fundamentalen und seiner zweiten Harmonischen - (siehe Abb. 1) stark moduliert werden kann. Schon durch Beimischen eines sehr schwachen Anteils der zweiten Harmonischen mit einer relativen Intensität von weniger als 3 % mit Bezug auf die Fundamentale konnte ein hoher Phasenkontrast von bis zu 97,5 % gemessen werden. Bisher ist jedoch noch nicht verstanden unter welchen Umständen diese Modulation durch den Einfluss der zweiten Harmonischen auf den quantenmechanischen Tunnelprozess oder die klassische Propagation der Elektronen verursacht wird.

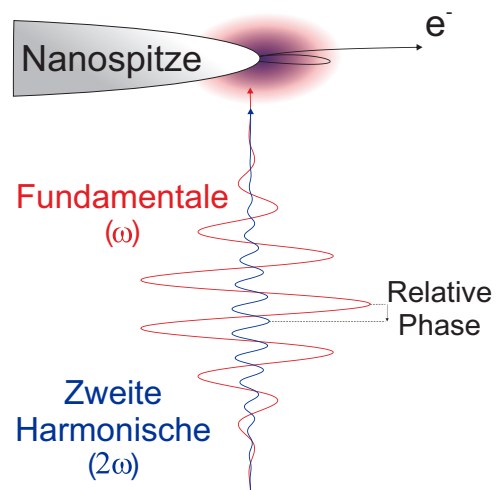


Abbildung 1: Schematische Darstellung eines Zweifarben-Experiments zur kohärenten Elektronenemission aus einer Nanospitze. Beide spektrale Komponenten des Zweifarben-Felds, bestehend aus einer Fundamentalen (rot) und seiner zweiten harmonischen (blau), erzeugen an der Spitze verstärkte Nahfelder. Mit der relativen Phase der Felder kann die Elektronenemission gesteuert werden. Aus [7].

Um dieses Rätsel zu Lösen wurden sowohl quantenmechanische also auch klassische Simulationen auf dem HLRN durchgeführt und Energiespektren der emittierten Elektronen in Abhängigkeit der relativen Phase der Laserfelder berechnet, siehe Abb. 2. Die grobe Struktur der experimentellen Spektren (nicht gezeigt) konnte sowohl durch die klassischen als auch die quantenmechanischen Rechnungen reproduziert werden und zeigt eine deutliche Abhängigkeit der phasenabhängigen Modulation der Spektren (schwarze Kurve) von der Energie. Obwohl nur die quantenmechanische Beschreibung die auch im Experiment sichtbaren sogenannten ATI-Peaks reproduzieren kann (Abb. 2a), ist auch die klassische Beschreibung von ungeheurem Nutzen, da nur sie eine klare Analyse des Einflusses der zweiten Harmonischen auf den Emissionsprozess erlaubt.

Durch selektives Einschalten der zweiten Harmonischen im Ionisationsprozess (Abb. 2b) oder bei der klassischen Trajektorienpropagation (Abb. 2c) konn-

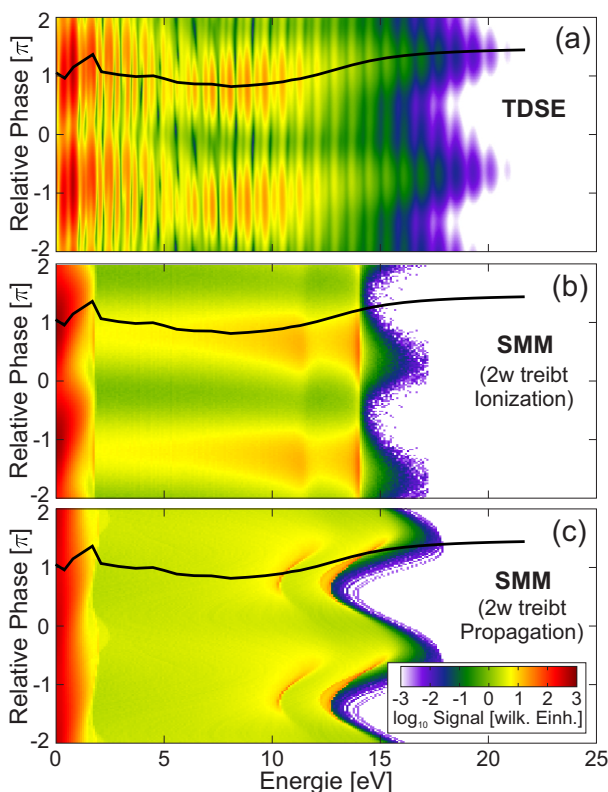


Abbildung 2: Aus quantenmechanischen (a) bzw. klassischen (b,c) Simulationen extrahierte Energiespektren der Elektronenemission von einer metallischen Wolfram-Nanospitze in Abhängigkeit von der relativen Phase des zur Anregung genutzten Zweifarben-Laserfeldes. In (b) wurde die zweite Harmonische des Zweifarben Feldes nur bei der Ionisation aktiviert und bei der Trajektorienpropagation vernachlässigt. In (c) wurde die zweite Harmonische nur in der Propagation berücksichtigt. Die schwarze Kurve zeigt die kritische Phase. Aus [7].

ten wir zeigen, dass die phasenabhängige Modulation der Energiespektren im Bereich kleiner Energien (< 12 eV) aus der Modifikation der (quantenmechanischen) Ionisationsrate resultiert. Im Gegensatz dazu ist die Modulation des energetischen Cutoffs durch den Effekt der zweiten Harmonischen auf die klassische Trajektorienpropagation dominiert, siehe Abb. 2c. Die Robustheit dieses Effekts im Bezug auf die genauen Parameter der Simulation untermauern, dass die Phasenmodulation des spektralen Cutoffs in Zukunft für die Charakterisierung der relativen Phase von Zweifarben-Laserfeldern genutzt werden könnte. Tatsächlich haben die Simulationsergebnisse weitere Experimente initiiert, in denen der vorausgesagte Effekte beobachtet werden konnte. Für eine detaillierte Beschreibung der hier vorgestellten Ergebnisse siehe [7].

WWW

<http://www.physik.uni-rostock.de/clustertheorie>

Weitere Informationen

- [1] F. Krausz *et al.*, *Nat. Photonics* **8**, 205 (2014). doi:10.1038/nphoton.2014.28
- [2] M. Krüger *et al.*, *Nature* **475**, 78-81 (2011). doi:10.1038/nature10196
- [3] G. Herink *et al.*, *Nature* **483**, 190-193 (2012). doi:10.1038/nature10878
- [4] S. Zherebtsov *et al.*, *Nat. Phys.* **7**, 656-662 (2011). doi:10.1038/NPHYS1983
- [5] M. Förster *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 217601 (2016). doi:10.1103/PhysRevLett.117.217601
- [6] T. Paschen *et al.*, *J. Mod. Opt.* **64**, 1054-1060 (2017). doi:10.1080/09500340.2017.1281453
- [7] L. Seiffert *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51**, 134001 (2018). doi:10.1088/1361-6455/aac34f

Projektpartner

P. Hommelhoff, Universität Erlangen, Erlangen

M. F. Kling, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Garching

Förderung

DFG SPP 1840 „Quantum Dynamics in Tailored Intense fields“