

# Laseranregung elektronischer Wellenpakete in Rydberg-Atomen

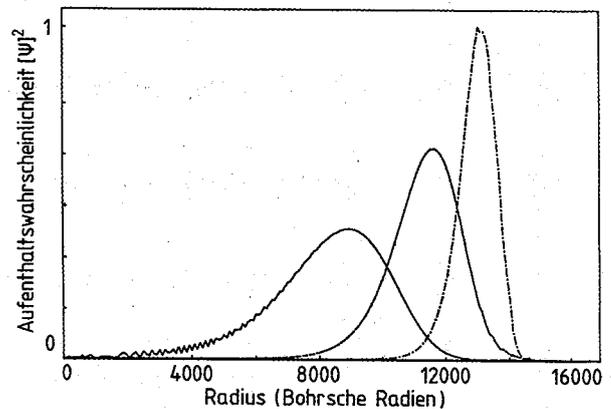
## Klassische Aspekte der Elektronenbewegung in Atomen

Von G. Alber, Freiburg und P. Zoller, Innsbruck\*)

Durch die Entwicklung kurzer und intensiver Laserpulse im optischen Frequenzbereich sind Prozesse kohärenter Anregungen im Rahmen der Atom- und Molekülphysik in den letzten Jahren immer aktueller geworden. Im Gegensatz zur frequenzaufösenden Laserspektroskopie mit Dauerstrichlasern, deren Hauptziel darin besteht, Energie-Eigenzustände selektiv anzuregen (siehe in diesem Zusammenhang auch die Übersichtsartikel [1–2]), bieten kurze Laserpulse die Möglichkeit, solche Energie-Eigenzustände kohärent zu überlagern, also Wellenpakete zu erzeugen. Energie-Eigenzustände beschreiben stationäre Zustände des Elektrons und sind räumlich delokalisiert. Die Wellenpakete hingegen stellen Elektronenzustände dar, deren Aufenthaltswahrscheinlichkeit sich zeitlich ändert. Die kurzen Laserpulse bieten somit eine Möglichkeit, nichtstationäre elektronische Ladungsverteilungen zu präparieren und deren Dynamik zu untersuchen. Das einfachste und bekannteste Beispiel für Wellenpakete sind die kohärenten Zustände des harmonischen Oszillators.

Im folgenden wollen wir über die Anregung von Wellenpaketen in Rydberg-Atomen berichten. Rydberg-Atome sind dadurch definiert, daß sich ein Valenzelektron in einem hochangeregten Zustand mit großer Quantenzahl  $n$  befindet. Da der mittlere Bahnradius  $\langle r \rangle$  eines Elektrons für kleine Bahndrehimpulse  $l$  mit dem Quadrat von  $n$  wächst, besitzen Rydberg-Atome eine beträchtliche Ausdehnung (z. B. Wasserstoff,  $n = 85$ ,  $l = 1$ :  $\langle r \rangle = 10\,836.5$  Bohrsche Radien). In der Literatur werden gegenwärtig zwei Arten von laserangeregten Wellenpaketen in Rydberg-Atomen diskutiert (im folgenden „Rydberg-Wellenpakete“ genannt [3–9]): Radial lokalisierte Wellenpakete, die durch die Überlagerung von Rydberg-Zuständen verschiedener Hauptquantenzahlen bei praktisch festgehaltenem Bahndrehimpuls  $l$  und magnetischer

Abb. 1: Radiales Rydberg-Wellenpaket von Wasserstoff als Funktion der radialen Koordinate  $r$  (in Einheiten des Bohrschen Radius) zu den Zeiten  $1/9 T$ ,  $2/9 T$ ,  $3/9 T$ , mit  $T$  der klassischen Umlaufzeit ( $T = 94$  ps). Ein Laserpuls (8 ps) regt  $p$ -Zustände mit der mittleren Hauptquantenzahl  $\bar{n} = 85$  an. Die Kurven zeigen Momentaufnahmen der Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons (in beliebigen Einheiten). Die Position der Schwerpunkte dieser Verteilung zu drei verschiedenen Zeiten beschreibt eine klassische radiale Kepler-Bewegung. Der Umkehrpunkt liegt bei etwa 14 000 Bohrschen Radien, was der Ausdehnung des Rydberg-Orbits  $n = 85$  entspricht. (Nach [4])



Quantenzahl  $m$  entstehen, und in den Winkelkoordinaten lokalisierte Wellenpakete, die durch Superposition von Zuständen mit unterschiedlichem  $l$  und  $m$  bei praktisch festgehaltenem  $n$  entstehen.

Die Untersuchung von Rydberg-Wellenpaketen wird durch eine Reihe von interessanten physikalischen Fragestellungen motiviert. Zu allererst ist das Studium von Rydberg-Atomen von grundsätzlichem Interesse, da es infolge der beträchtlichen Ausdehnung hochangeregter Rydberg-Zustände eines der Probleme an der Grenze zwischen mikroskopischer und makroskopischer Physik ist [1–2]. Wellenpakete zeigen klassische Züge, da sich ihr Zentrum, solange es wohldefiniert ist, wie ein klassisches Teilchen auf einer Bahn bewegt, und erlauben somit die Dynamik eines atomaren Elektrons zeitaufgelöst zu untersuchen. So beschreiben die radialen Rydberg-Wellenpakete die radiale Bewegung eines Elektrons auf der klassischen Kepler-Bahn. Gleichzeitig lassen sich darüber hinaus auch quantenmechanische Eigenschaften wie Zerfließen und Interferenz von Wellenpaketen beobachten. Von großem Interesse sind weiter auch Untersuchungen über die Zerstörung von Quantenkohärenz zwischen Wellenpaketen durch Ankopplung an eine Umgebung, z. B. an ein fluktuierendes Wärmebad.

Wir wollen uns zuerst der Frage zuwenden, warum die Anregung durch kurze Laserpulse zu radialen Rydberg-Wellen-

paketen führt [3, 4]. Wir betrachten dazu ein Atom, das von einem niedrigliegenden Zustand aus durch einen kurzen Puls der Dauer  $\tau$  in Zustände knapp unterhalb der Ionisationsschwelle angeregt wird. Die mittlere Hauptquantenzahl der angeregten Zustände sei mit  $\bar{n}$  bezeichnet, ihre Energie mit  $E_{\bar{n}}$ . Falls die spektrale Fourier-Breite  $\hbar/\tau$  des Pulses sehr viel größer ist als der mittlere Energieabstand  $\Delta E_{\bar{n}}$  zweier Rydberg-Zustände der mittleren Hauptquantenzahl  $\bar{n}$ , überlagern sich zahlreiche solche Zustände kohärent. Im Zeitbild entspricht dies der Bedingung, daß die Pulsdauer des Lasers sehr viel kleiner als die klassische Umlaufzeit

$$T_{E_{\bar{n}}} = 2\pi\hbar/\Delta E_{\bar{n}} = \pi n^{-3} \hbar/Ry$$

eines Kepler-Teilchens der Energie  $E_{\bar{n}}$  ist ( $Ry =$  Rydberg-Energie, entspricht der Ionisierungsenergie eines Wasserstoffatoms). Eine zweite Bedingung für das Entstehen von Wellenpaketen ist die der räumlich begrenzten Anregung. Diese Voraussetzung ist immer dann erfüllt, wenn der anfänglich besetzte Zustand energetisch tief liegt und seine Ausdehnung daher klein ist: Beide Bedingungen zusammen ergeben somit, daß ein kurzer Laserpuls  $\tau \ll T_{E_{\bar{n}}}$  ein Wellenpaket mit einer Ausdehnung sehr viel kleiner als die Größe der Rydberg-Zustände erzeugt. Man beachte allerdings, daß aufgrund der Dipolauswahlregeln bei der Laseranregung ( $l \rightarrow l \pm 1$ ) nur wenige Drehimpulszustände besetzt werden können und so

\* Dr. Gernot Alber, Physikalisches Institut der Universität Freiburg, Hermann-Herder-Str. 3, 7800 Freiburg; Univ.-Doz. Dr. Peter Zoller, Institut für Theoretische Physik der Universität Innsbruck, Technikerstr. 25, A-6020 Innsbruck.

mit die Winkelkoordinaten des angeregten Elektrons nach wie vor im quantenmechanischen Sinn delokalisiert sind. Die Ursache für die Entstehung eines solchen Rydberg-Wellenpaketes sind quantenmechanische Interferenzeffekte zwischen den zahlreichen, kohärent angeregten Energieeigenzuständen verschiedener Hauptquantenzahlen. Dies stellt somit einen Extremfall herkömmlicher, kohärenter atomarer Laseranregungsprozesse dar, bei denen typischerweise nur einige wenige Fein- oder Hyperfeinstrukturzustände angeregt und die daraus resultierenden Quanteninterferenzphänomene untersucht werden.

Abbildung 1 zeigt als Beispiel die zeitliche Entwicklung eines Rydberg-Wellenpaketes in einem Wasserstoffatom [4]. Aufgetragen ist die radiale Aufenthaltswahrscheinlichkeit des angeregten Elektrons, das von einem s-Zustand aus mit einem Laserpuls der Länge  $T = 8$  ps in einen Zustand mit mittlerer Hauptquantenzahl  $\bar{n} = 85$ , entsprechend einer mittleren klassischen Umlaufzeit von  $T = 94$  ps, angeregt wurde. Die Ausdehnung des angeregten Rydberg-Orbits beträgt etwa 14 000 Borsche Radien.

Der Nachweis von Rydberg-Wellenpaketen kann im Rahmen eines „Pump-Tast-Experimentes“ geschehen. Dem ersten Laserpuls, dem Pumpimpuls, der das Wellenpaket anregt, folgt zeitverzögert ein zweiter Puls, der Tastpuls, der einen Übergang in einen anderen atomaren Zustand induziert. Gemessen wird die Wahrscheinlichkeit, das Atom in diesem Endzustand zu finden (z. B. über ein Ionensignal oder mittels Fluoreszenz) als Funktion der Zeitverzögerung der beiden Pulse. Ein solcher Übergang kann nur dann stattfinden, wenn die Zeitverzögerung zwischen beiden Pulsen ein ganzzahliges Vielfaches der mittleren klassischen Umlaufzeit des Rydberg-Wellenpaketes ist, d. h. das Wellenpaket seine größte Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe des Atomkerns hat (innerer Umkehrpunkt). Diese Behauptung ist sofort einsichtig, wenn der Tastpuls das Wellenpaket auf einen der niedrigliegenden atomaren Zustände abregt, da in Umkehrung obiger Argumentation zur Erzeugung von Wellenpaketen (2. Bedingung!) der Endzustand wiederum nur eine Ausdehnung von einigen Bohrschen Radien hat. Detaillierte Untersuchungen zeigen, daß dieses Argument auch für einen Ionisations-

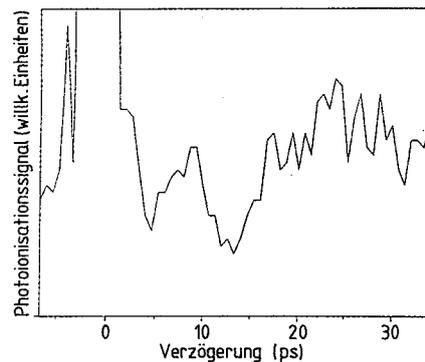


Abb. 2: Photoionisationssignal eines radialen Rydberg-Wellenpaketes als Funktion der Verzögerung zwischen Pump- und Tastpuls ( $\lambda = 594.8$  nm,  $\tau = 6$  ps). Die Rückkehr des Wellenpaketes zum inneren Umkehrpunkt der radialen Kepler-Bahn führt bei 9 ps zu einer Erhöhung des Ionisationssignals. Nach etwa zwei Umläufen ist das Wellenpaket durch Dispersion zerflossen. (Nach [8])

prozeß der Rydberg-Zustände ins Kontinuum gültig ist [10]. Wir erwarten somit, daß die Übergangswahrscheinlichkeit eines solchen Pump-Tast-Experimentes abhängig von der Zeitverzögerung der Pulse eine Modulation mit der klassischen Umlaufzeit zeigt.

Ein solches Pump-Tast-Experiment wurde kürzlich im FOM-Institut in Amsterdam erfolgreich durchgeführt [8]. Dabei wurden Rubidium-Atome in d-Zustände mit der mittleren Hauptquantenzahl  $\bar{n} = 42$  angeregt und mit einem Tastpuls ionisiert. Abbildung 2 zeigt die entsprechende Ionisationswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung zwischen den Pulsen. Die Struktur um 9 ps entspricht der klassischen Wiederkehr des Rydberg-Wellenpaketes; für größere Zeiten ist das Paket zerflossen.

Die theoretische Untersuchung und die experimentelle Beobachtung eines in bezug auf die Winkelkoordinaten lokalisierten elektronischen Wellenpaketes haben Yeazell und Stroud [5–6] kürzlich berichtet. Dabei wurden mittels eines Zweiphotonen-Anregungsprozesses ( $\lambda = 483,7$  nm,  $\tau = 500$  ps) in Anwesenheit eines zusätzlichen Mikrowellenfeldes ( $\nu = 65$  MHz) Rydberg-Zustände des Natriumatoms mit großen Drehimpulsquantenzahlen  $l$  innerhalb der  $n = 50$ -Mannigfaltigkeit überlagert. Auf diese Weise wurde ein Wellenpaket präpariert, das zwar in bezug auf den Azimut- und Polwinkel, nicht aber in

bezug auf die Radialkoordinate lokalisiert ist. Die Dynamik dieses Wellenpaketes spiegelt die zeitliche Entwicklung des Runge-Lenz-Vektors wider. Dieser Vektor ist eine Konstante der Bewegung im reinen  $e^2/r$ -Potential, er zeigt vom Brennpunkt der Kepler-Ellipse zum Perihel. Ein zeitlich sich ändernder Runge-Lenz-Vektor reflektiert die Abweichung des Kernpotentials von einem reinen Coulomb-Potential. Die Präzession des Runge-Lenz-Vektors unter dem Einfluß eines äußeren, schwachen, statischen elektrischen Feldes wurde in Rubidium ebenfalls vor kurzem experimentell untersucht (siehe [9]).

Es scheint in Zukunft möglich zu sein, Rydberg-Wellenpakete zu präparieren, die sowohl in radialer Richtung als auch in den Winkelkoordinaten lokalisiert sind. Im Rahmen der Grenzen die die Quantenmechanik auferlegt, würde ein solches Wellenpaket dem Bild eines Elektrons, das sich gemäß den Gesetzen der klassischen Mechanik auf einer Kepler-Bahn bewegt, am nächsten kommen (siehe auch [11]). Von besonderem Interesse ist in diesem Zusammenhang die Untersuchung der Dynamik von Rydberg-Wellenpaketen in Systemen, die klassisches Chaos zeigen, wie es bei Rydberg-Atomen in Gegenwart eines statischen Magnetfeldes der Fall ist (vgl. [2, 12]).

#### Literatur

- [ 1 ] H. Rinneberg et al., Phys. Bl. **42** (1986) 347.
- [ 2 ] G. Wunner, Phys. Bl. **45** (1989) 139.
- [ 3 ] J. Parker und C. R. Stroud Jr., Phys. Rev. **56** (1986) 716.
- [ 4 ] G. Alber, H. Ritsch und P. Zoller, Phys. Rev. **A34** (1986) 1058.
- [ 5 ] J. A. Yeazell und C. R. Stroud Jr., Phys. Rev. **A35** (1987) 2806.
- [ 6 ] J. A. Yeazell und C. R. Stroud Jr., Phys. Rev. Lett. **60** (1988) 1494.
- [ 7 ] G. Alber und P. Zoller, Phys. Rev. **A37** (1988) 377.
- [ 8 ] A. ten Wolde et al., Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 2099.
- [ 9 ] A. ten Wolde et al., (Vorabdruck).
- [ 10 ] A. Giusti-Suzor und P. Zoller, Phys. Rev. **36** (1987) 5178.
- [ 11 ] D. Delande und J. C. Gay, Europhys. Lett. **5** (1988) 303.
- [ 12 ] H. Friedrich und D. Wintgen, Phys. Rep., (im Druck).

**Bitte beachten Sie die Zimmerreservierungs- und Anmeldekarten  
für die DPG-Frühjahrstagungen 1990  
in diesem Heft!**