Письма в ЖЭТФ, том 85, вып. 5, с. 275 – 278 © 2007 г. 10 марта

Об учете кулоновского взаимодействия в теории многофотонной ионизации

В. С. Попов[1], *В. Д. Мур*[+], *С. В. Попруженко*[+*1]

Институт теоретической и экспериментальной физики, 117218 Москва, Россия

[+]*Московский инженерно-физический институт (государственный университет), 115409 Москва, Россия*

[*]*Max-Planck Institut für Kernphysik, 69029 Heidelberg, Germany*

Поступила в редакцию 31 января 2007 г.

С помощью метода мнимого времени получена кулоновская поправка к скорости многофотонной ионизации атомов и ионов интенсивным лазерным излучением при больших значениях параметра адиабатичности Келдыша. Учет этой поправки увеличивает величину скорости ионизации на несколько порядков.

PACS: 03.65.Pm, 32.80.Rm

1. В расчетах многофотонной ионизации атомов интенсивным лазерным излучением обычно пренебрегается кулоновским взаимодействием вылетающего электрона с атомным остатком, что позволяет получить для вероятности ионизации w удобные аналитические формулы (см. [1 – 4] и дальнейшие ссылки в обзоре [5]). Между тем, в случае нейтральных атомов и положительных ионов ($Z \geq 1$) это взаимодействие приводит к увеличению плотности электронного облака на больших ($r \gg 1/\kappa$) расстояниях от ядра и существенно повышает значение w. Так, при ионизации постоянным электрическим полем $\mathcal{E}$ [6]

$$Q(\mathcal{E}) = \frac{w(\mathcal{E})}{w_{\rm sr}(\mathcal{E})} = \left(\frac{2\kappa^3}{\mathcal{E}}\right)^{2\nu} = \left(\frac{F}{2}\right)^{-2\nu} \gg 1, \qquad (1)$$

где $w_{\rm sr}$ – скорость ионизации уровня в короткодействующем потенциале с той же энергией связи $I = \kappa^2/2$, что и в атоме, $F = \mathcal{E}/\kappa^3$ – приведенное электрическое поле, $\nu = Z/\kappa$ – эффективное главное квантовое число[2], Z – заряд атомного остатка. Здесь и далее $\hbar = m = e = 1$ (m – масса электрона), поле $\mathcal{E}$ измеряется в атомных единицах $\mathcal{E}_a = m^2e^5/\hbar^4 = 5.14 \cdot 10^9$ В/см.

В поле электромагнитной волны формула (1) справедлива в пределе $\gamma \to 0$, где

$$\gamma = \frac{\omega\kappa}{\mathcal{E}_0} = (2K_0F)^{-1} \qquad (2)$$

– параметр адиабатичности, или параметр Келдыша [2], $\mathcal{E}_0$ – амплитуда волны, ω – ее частота, $\kappa = \sqrt{2I}$ – характерный импульс связанного состояния и $K_0 = I/\omega$ – параметр многоквантовости.

[1] e-mail: markina@itep.ru, poprz@theor.mephi.ru

[2] Которое в атомной физике обычно обозначается n^*.

В теории Келдыша предполагается, что $K_0 \gg 1$ и $F \ll 1$, при этом параметр γ может быть любым. Для вычисления кулоновского фактора Q была предложена [7] квазиклассическая теория возмущений по кулоновскому потенциалу, что справедливо при $\gamma \lesssim 1$ и дает для поля с линейной поляризацией результат, совпадающий с (1).

Целью данной работы является вычисление кулоновского фактора $Q(\mathcal{E}_0, \omega)$ в противоположном случае, $\gamma \gg 1$, то есть для быстро меняющихся полей. Рассматривается ионизация атомного уровня электромагнитной волной с линейной поляризацией $\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 \cos\omega t$, влиянием магнитного поля волны пренебрегается. В расчетах используем метод мнимого времени (ММВ)[3].

2. Рассмотрим одномерную траекторию электрона в поле ядра и электромагнитной волны. Уравнение движения

$$\frac{d^2x}{dt^2} = -Zx^{-2} + \mathcal{E}_0 \cos\omega t \qquad (3)$$

после перехода к безразмерным переменным

$$\xi = \omega x/\kappa = \kappa x/2K_0, \qquad \tau = -i\omega t, \qquad (4)$$

[3] В рамках ММВ рассматриваются подбарьерные траектории частицы, удовлетворяющие классическим уравнениям движения, но с мнимым "временем" ($t \to it$). Такие траектории физически нереализуемы в классической механике, но при переходе к квантовой механике они описывают туннелирование частиц сквозь барьер. Подробное изложение ММВ, его приложений в квантовой механике и атомной физике можно найти в [8]. Отметим, что ММВ является обобщением на нестационарный случай известного метода Ландау комплексных классических траекторий, развитого для вычисления матричных элементов с быстро осциллирующими волновыми функциями в случае постоянных во времени полей [6, 9].

удобным в случае $\gamma \gg 1$, принимает вид

$$\ddot{\xi} = \mu\xi^{-2} - \exp(\tau - \tau_0), \qquad \mu = Z\omega\kappa^{-3} = \nu/2K_0, \quad \tau_0 = \ln 2\gamma, \tag{5}$$

где $\ddot{\xi} = d^2\xi/d\tau^2$ и τ – мнимое время (далее считаем $\tau_0 \gg 1$). Заметим, что параметр μ, определяющий вклад кулоновского поля ядра в силу, действующую на электрон, мал: так, в поле титан-сапфирового лазера ($\hbar\omega$=1.55 эВ) $\mu = 0.057$ для атома водорода, $\mu = 0.023$ для атома He и $\mu = 0.059$ для иона Xe^+, а в поле рентгеновского лазера[4)] с энергией фотона 20 эВ $\mu = 0.11$ для иона Li^+.

Полагая $\xi(\tau,\mu) = \xi_0 + \mu\xi_1 + ...$, находим из (5):

$$\xi_0 = 1 - u, \quad \xi_1 = c_0 + c_1\tau + \frac{1}{2}\tau^2 - \ln(1-u) + L_2(u), \tag{6}$$

где $u = \exp(\tau - \tau_0)$, c_0 и c_1 – константы интегрирования и $L_2(u)$ – дилогарифм Эйлера [13]: $L_2(u) = u + u^2/4 + \ldots$ при $u \to 0$, $L_2(u) = \pi^2/6 + (1-u) \times \ln(1-u) + \ldots$ при $u \to 1$. Применяя к движению электрона после выхода из-под барьера (при $0 < t < \infty$) метод Капицы [14, 15], получаем для плавной траектории (усредненной по быстрым осцилляциям с частотой ω) уравнения

$$\frac{d^2\xi}{d\theta^2} = -\frac{\mu}{\xi^2}, \quad \frac{d\xi}{d\theta} = \sqrt{2\left(E + \frac{\mu}{\xi}\right)}, \quad \theta = i\tau = \omega t, \tag{7}$$

откуда следует, что в момент выхода из-под барьера $\tau = 0$ выполняются граничные условия[5)]

$$\dot{\xi}^2\xi = -2\mu, \qquad \frac{d}{d\tau}(\dot{\xi}^2\xi) = 0, \tag{8}$$

из которых находим[6)], что $c_0 = 0$, $c_1 = i\sqrt{2\mu}$. При этом подбарьерная траектория уже не является вещественной функцией τ, как в случае $\mu = Z = 0$ (короткодействующий потенциал, соответствующий отрицательным ионам H^-, Na^- и т.д.), а точка выхода из-под барьера при $\mu \neq 0$ не является точкой остановки частицы. Отметим, что

$$\xi(\tau) = 1 + i\sqrt{2\mu}\tau + \frac{1}{2}\mu\tau^2 + ..., \quad \tau \approx 0, \tag{9}$$

а также

$$\mu\dot{\xi}_1(\tau) = i\sqrt{2\mu} + O(\mu), \quad 0 < \tau < \tau_0, \tag{9'}$$

откуда видно, что разложение $\xi(\tau,\mu)$ ведется не только по целым, но и по полуцелым степеням малого параметра μ (что является следствием граничного условия (8)). Этот факт имеет непосредственное отношение к вычисляемой нами кулоновской поправке, см. (14) ниже.

Уравнению (5) соответствуют лагранжиан и укороченное действие W:

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2}\dot{\xi}^2 - u\xi - \frac{\mu}{\xi}, \quad W = \frac{i\kappa^2}{\omega}\int_0^{\tau_0}\left(\mathcal{L} + \frac{1}{2}\right)d\tau. \tag{10}$$

Для кулоновского потенциала этот интеграл расходится на верхнем пределе, поскольку $\xi(\tau) \to 0$ при $\tau \to \tau_0$. Поэтому мы воспользуемся процедурой сшивания [6, 7] с асимптотикой атомной волновой функции[7)]

$$\Psi_0(x) \sim (\kappa x)^\nu \exp\{-\kappa x\} = = \exp\{-2K_0[\xi - \mu\ln(2K_0\xi)\,]\}, \quad \kappa x \gg 1, \tag{11}$$

вводя точку сшивания x_* такую, что $\kappa^{-1} \ll x_* \ll b$, где b – ширина барьера. Поскольку $b \simeq \kappa/\omega$ при $\gamma \gg 1$ [4, 8], то получаем ограничение $(2K_0)^{-1} \ll \xi_* \ll 1$, которое всегда может быть выполнено в силу условия многоквантовости. В рамках ММВ вероятность ионизации определяется, с экспоненциальной точностью, мнимой частью функции укороченного действия, вычисленного вдоль подбарьерной траектории:

$$w(\mathcal{E}_0,\omega) \sim \exp\{-2K_0\, f(\gamma)\}, \tag{12}$$

где

$$f(\gamma) = \int_0^{\tau_*}\left(\dot{\xi}^2 - 2u\xi - 2\mu\xi^{-1}\right)d\tau + \tau_* + + 2\,[\,\xi_* - \mu\ln(2K_0\xi_*)\,], \tag{12'}$$

причем здесь $\xi_* = \xi(\tau_*)$. Последний член в (12$'$) задает ту часть мнимого действия, которая набирается на начальном ($\xi < \xi_*$) участке подбарьерной траектории электрона, где полем волны можно пренебречь.

Полагая $\xi = \xi_0 + \mu\xi_1$ и учитывая приведенные выше выражения для ξ_0, ξ_1 и u, можно убедиться, что интеграл в (12$'$) вычисляется аналитически и равен

$$-\left[\frac{1}{2}u^2 + 2u(\xi_0 + \mu\xi_1) + 2\mu\ln\frac{u}{1-u}\right]_0^{\tau_*} - 2\mu\tau_0.$$

4) В последние годы на основе лазеров на свободных электронах созданы источники мощного когерентного излучения в ультрафиолетовом и ближнем рентгеновском диапазонах ($\hbar\omega \simeq 10 \div 100$ эВ), интенсивность которых в настоящее время уже достаточна для наблюдения многофотонных процессов в этом диапазоне частот. В этой связи см. работы [10 – 12].

5) При этом считается, что на бесконечности скорость частицы равна нулю и энергия $E = 0$ (порог фотоионизации).

6) Подчеркнем, что выражения (5)–(8) и все вытекающие из них верны лишь в наинизшем порядке по $1/\gamma$, то есть представляют собой многофотонные разложения точных формул.

7) Для свободного атома, то есть пренебрегая полем волны.

Подставляя сюда значения всех функций при $\tau = 0$ и $\tau = \tau_*$, после несложных, хотя и довольно громоздких вычислений приходим к окончательному результату:

$$w \approx Q \cdot \exp\{-2K_0(\ \ln 2\gamma - 1/2\ )\}, \tag{13}$$

$$Q = \left(\frac{2}{F}\right)^{2\nu} (2\gamma)^{2\nu} = (8K_0\gamma^2)^{2\nu}, \quad \gamma \gg 1. \tag{14}$$

При этом произвольные параметры ξ_* и τ_* полностью сокращаются и выпадают из окончательного ответа, что показывает корректность процедуры сшивания. Экспоненциальный множитель в (13) соответствует теории Келдыша при $\gamma \gg 1$ (см. [2] или § 77 в [6]), кулоновская поправка $Q_0 = (2/F)^{2\nu}$ в случае линейной поляризации излучения была получена в работе [16] при $\gamma \ll 1$ и в [7] для любого γ. Заметим, что Q_0 вообще не зависит от γ, что справедливо не только в области $\gamma \gg 1$, но и для всех значений γ (это свойство, однако, является спецификой линейной поляризации излучения, см. следующий раздел). Новым является фактор $Q_1 = (2\gamma)^{2\nu}$, который при $\gamma \gg 1$ отнюдь не мал, хотя он все же меньше Q_0: $Q_1/Q_0 \sim K_0^{-2\nu}$.

Условие сшивания $\xi_0(\tau_*) + \mu\xi_1(\tau_*) = \xi_*$, использованное при получении (14), при подстановке выражений (6) дает связь между параметрами ξ_* и τ_*:

$$(1 - i\sqrt{2\mu})\ \tau_* = \tau_0 - \xi_* - \mu \ln \xi_* + \frac{1}{2}\mu\tau_0^2. \tag{15}$$

Поскольку ξ_* по определению вещественная величина (см. (11)), то при $\mu \neq 0$ начальный момент $t_* = i\omega^{-1}\tau_*$ подбарьерного движения смещается с мнимой оси "времени", причем $\Delta\tau = \tau_0 - \tau_* \sim \xi_* \ll 1$ при условиях $\xi_* \gg \exp(-\mu^{-1})$ и $\gamma \ll \exp(\mu^{-1/2})$, которые выполняются практически всегда. Аналогичное смещение возникает и в случае короткодействующего потенциала для подбарьерных траекторий, отвечающих ненулевому продольному импульсу p [4, 8]:

$$\begin{aligned} \tau_0 &= \mathrm{Arsh}[\ \gamma(1 + \mathrm{i}p/\kappa)\ ] = \\ &= \mathrm{Arsh}\gamma + i\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}\frac{p}{\kappa} + O\left(\frac{p^2}{\kappa^2}\right). \end{aligned} \tag{16}$$

3. Сделаем замечание о кулоновской поправке Q_0, формулу для которой, относящуюся к монохроматическому излучению [7], можно обобщить на случай электромагнитной волны произвольной формы[8])

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0\ \varphi(\theta), \qquad -\infty < \theta \equiv \omega t < \infty \tag{17}$$

(линейная поляризация):

$$Q_0(\mathcal{E}_0, \omega) = [\ 2K_0\ q(\tau_0)\ ]^{2\nu}, \tag{18}$$

где функция $\varphi(\theta)$ задает форму импульса и

$$q(\tau_0) = \frac{\tau_0}{2\gamma} \cdot \exp\left\{\int\limits_0^{\tau_0} \left([\xi_0^2(\tau)]^{-1/2} - (\tau_0 - \tau)^{-1}\right) d\tau\right\}. \tag{19}$$

Кулоновское взаимодействие $\delta U_C(r) = -Z/r$ электрона с атомным остовом учтено здесь по теории возмущений: $\xi_0(\tau)$ представляет собой подбарьерную траекторию при $Z = 0$, то есть без учета кулона, удовлетворяющую уравнению движения и граничным условиям ММВ [8, 18]:

$$\ddot{\xi}_0 = -\gamma^{-1}\varphi(i\tau), \quad \xi_0(\tau_0) = \dot{\xi}_0(0) = 0, \quad \dot{\xi}^2(\tau_0) = 1 \tag{20}$$

(об условиях применимости этого подхода см. [8]; последнее условие в (20) определяет "начальный момент" подбарьерного движения τ_0). Заметим, что $|\ \xi_0(\tau)\ | = \tau_0 - \tau + \ ...$ при $\tau \to \tau_0$, в силу чего полюсные особенности в (19) взаимно сокращаются и интеграл всегда сходится.

Для монохроматического лазерного поля

$$\varphi(\theta) = \cos\theta, \quad \tau_0 = \mathrm{Ar\,sh}\,\gamma, \quad \xi_0(\tau) = \gamma^{-1}(\mathrm{ch}\,\tau_0 - \mathrm{ch}\,\tau) \tag{21}$$

интеграл (19) берется в квадратурах, и в итоге имеем

$$Q_0(\mathcal{E}, \omega) = (2/F)^{2\nu}, \quad 0 < \gamma < \infty, \tag{22}$$

так что Q_0 не зависит от параметра Келдыша (то есть от частоты света ω, при фиксированной амплитуде $\mathcal{E}_0$). Это, однако, является спецификой данного поля, что мы продемонстрируем на примере модулированного импульса с гауссовской огибающей,

$$\varphi(\theta) = \exp\left(-\frac{1}{2}k\theta^2\right)\cos\theta, \quad k \geq 0 \tag{23}$$

(модель, часто встречающаяся в лазерной физике), когда в случае малых γ:

$$Q_0 = \left(\frac{2}{F}\right)^{2\nu}\left[1 + \frac{\nu}{9}(k^2 + 2k)\gamma^4 + O(\gamma^6)\right], \tag{24}$$

[8]) На эксперименте используются интенсивные ультракороткие импульсы [17], длительность которых составляет несколько периодов лазерного поля, а форма далека от идеальной синусоиды. В этой связи для различных полей вида (17) с помощью ММВ были рассчитаны [18] функции $f(\gamma)$, см.(12), определяющие зависимость скорости ионизации атомов от параметра Келдыша, а также импульсные спектры фотоэлектронов. При этом, однако, пренебрегалось кулоновским взаимодействием δU_C.

а для экспоненты в (12) получаем

$$f(\gamma) = \frac{2}{3}\gamma - \frac{1}{15}(k+1)\gamma^3 + \frac{1}{420}(7k^2+14k+9)\gamma^5 + \ldots \tag{25}$$

При $k \to 0$ в (24) исчезает зависимость от γ, а (25) переходит в известное разложение [2 – 5] функции Келдыша $f(\gamma)$ для низкочастотного монохроматического света. Отметим, что разложение (24) начинается с γ^4 (а не с γ^2), и это имеет место при любой форме импульса (17) с линейной поляризацией. Поэтому кулоновскую поправку в области $\gamma \lesssim 1$ можно брать в том же виде, что и для постоянного поля.

4. Для основных состояний нейтральных атомов эффективное главное квантовое число ν меняется в пределах от 0.744 (атом He) до 1.87 (Cs), $\nu = 1$ для атома водорода. При значениях $F = \mathcal{E}/\mathcal{E}_a \sim 0.05$ и $\gamma \sim 5$ учет кулоновского взаимодействия приводит к значительному росту вероятности ионизации: $Q_0 \sim 3 \cdot 10^2 \div 10^6$, $Q_1 \sim 30 \div 5 \cdot 10^3$, причем $Q_1(\gamma)$ быстро возрастает в области $\gamma \gg 1$.

Выше мы рассмотрели случай линейной поляризации падающей волны, когда подбарьерная траектория электрона имеет наиболее простой вид. Формулы (13),(14) совместно с результатами работ [7, 16] охватывают два предельных случая $\gamma \gg 1$ и $\gamma \ll 1$; в промежуточной области $\gamma \sim 1$ даже в рамках ММВ требуются численные расчеты. Точное численное решение (ab initio) трехмерного уравнения Шредингера для атома в поле световой волны пока еще, повидимому, превосходит возможности современных компьютеров.

Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, проект # 04-02-17157.

1. J. R. Oppenheimer, Phys. Rev. **31**, 66 (1928).
2. Л. В. Келдыш, ЖЭТФ **47**, 1945 (1964).
3. А. И. Никишов, В. И. Ритус, ЖЭТФ **50**, 255 (1966).
4. А. М. Переломов, В. С. Попов, М. В. Терентьев, ЖЭТФ **50**, 1393; **51**, 309 (1966).
5. В. С. Попов, УФН **174**, 921 (2004).
6. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика*, М.: Наука, 1989.
7. А. М. Переломов, В. С. Попов, ЖЭТФ **52**, 514 (1967).
8. В. С. Попов, препринт ИТЭФ № 13-04, Москва, 2004; ЯФ **68**, 717 (2005).
9. Е. Е. Никитин, Л. П. Питаевский, УФН **163**, 101 (1993).
10. H. Wabnitz, L. Bittner, A. R. B. de Castro et al., Nature **420**, 482 (2002).
11. T. Laarmann, A. R. B. de Castro, P. Gürtler et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 143401 (2004).
12. H. Wabnitz, A. R. B. de Castro, P. Gürtler et al., Phys. Rev. Lett. **94**, 023001 (2005).
13. H. Bateman and A. Erdelyi, *Higher Transcendental Functions*, **1**, ch.1, Mc Graw-Hill, New York, 1953.
14. П. Л. Капица, ЖЭТФ **21**, 588 (1951); УФН **44**, 7 (1951).
15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Механика*, § 30, М.: Физматлит, 2001.
16. А. И. Никишов, В. И. Ритус, ЖЭТФ **52**, 223 (1967).
17. G. A. Mourou, T. Tajima, and S. V. Bulanov, Rev. Mod. Phys. **78**, 309 (2006).
18. В. С. Попов, Письма в ЖЭТФ **73**, 3 (2001); ЖЭТФ **120**, 315 (2001).