Письма в ЖЭТФ, том 113, вып. 5, с. 320 – 325 © 2021 г. 10 марта

О возможности наблюдения коллективного туннельного эффекта при ионизации атомов интенсивным лазерным полем

С. В. Попруженко[+*1)], *Т. А. Ломоносова*[×]

[+] *Федеральный исследовательский центр "Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН" 119991 Москва, Россия*

[*] *Воронежский государственный университет, 394018 Воронеж, Россия*

[×] *Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 18 января 2021 г.
После переработки 29 января 2021 г.
Принята к публикации 1 февраля 2021 г.

Обсуждается форма импульсного распределения двукратно заряженных ионов, возникающих при ионизации атомов в интенсивном низкочастотном циркулярно поляризованном лазерном поле. Показано, что два возможных канала ионизации – последовательное и коллективное туннелирование – приводят в этом случае к качественно различным импульсным распределениям ионов. Полученные результаты могут быть использованы для экспериментального поиска коллективного туннельного эффекта в атомах.

DOI: 10.31857/S1234567821050050

Исследования процессов нелинейной ионизации атомов и молекул относятся к числу наиболее динамично развивающихся областей физики взаимодействия интенсивного лазерного излучения с веществом. Благодаря развитию методов управления свойствами лазерного излучения и диагностики возникающих в процессе ионизации электронов, ионов и вторичного излучения, в последние десятилетия появились новые возможности исследования эффектов нелинейной атомной оптики в аттосекундном [1, 2] и релятивистском [3] режимах, а также в сверхкоротких лазерных импульсах [4, 5]. Описание современного состояния физики коротких интенсивных лазерных импульсов и различных примеров использования таких импульсов для исследования нелинейной ионизации и других многоквантовых процессов можно найти в работах [1, 2, 4, 6–11] и цитируемой в них литературе.

Многократная туннельная ионизация атомных систем в интенсивном лазерном поле наблюдается с середины 1970-х гг. Уже в первых экспериментах по двукратной ионизации атомов линейно поляризованным лазерным излучением высокой мощности [12, 13] было обнаружено, что вероятность такого процесса оказывается на много порядков выше, чем этого можно было бы ожидать, исходя из представления о последовательном независимом туннелировании электронов. Это аномальное увеличиение вероятности возникает вследствие электрон-электронной корреляции, физические сценарии реализации которой могут быть различными. Продолжающееся обсуждение этих сценариев, направленное на поиск условий, при которых вклады различных механизмов корреляции могут быть разделены и однозначно идентифицированы, определяет неослабевающий интерес к исследованиям эффекта многократной ионизации и, более широко, корреляционных эффектов в атомах в присутствии сильного электромагнитного поля. Современное состояние исследований в этой области отражено в обзоре [14], ряде более поздних работ, включая [15–18], и цитируемой в них литературе.

Применение техники COLTRIMS (Cold Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy) [19, 20] в экспериментах по атомной физике сильных полей дает возможность идентифицировать пары электронов, возникшие в результате ионизации одного и того же атома, и измерить импульсные распределения этих пар и двукратно заряженных ионов. Измерение таких импульсных распределений, форма которых оказывается, как правило, существенно зависящей от механизма корреляции, создает новые возможности для верификации теоретических моделей. В настоящее время считается твердо установленным, что при ионизации в линейно поляризованном поле доминирующим механизмом электрон-электронной корреляции является неупругое перерассеяние первоначально ионизованного валентного электрона на

[1)] e-mail: sergey.popruzhenko@gmail.com

атомном остове. Этот механизм был предложен для объяснения аномально высокого выхода двукратно заряженных ионов впервые в [21], затем в [22, 23], но только с появлением возможности измерения импульсных распределений ионов [24, 25] было доказано, что этот механизм является основным [26–28]. В настоящее время механизм перерассеяния хорошо изучен, идентифицированы его различные каналы, связанные с ударным возбуждением второго электрона в промежуточное связанное состояние, прямой ударной ионизацией, возможностью захвата одного из ионизованных электронов родительским ионом и др.

Другой механизм коррелированной двойной ионизации был предложен и теоретически исследован в работах [29, 30]. Он заключается в одновременном туннелировании двух электронов как квазичастицы. Коллективный туннельный эффект хорошо известен в физике конденсированного состояния, причем не только для электронов, но и для тяжелых частиц, однако при ионизации атомов и молекул во внешнем поле он до настоящего времени не наблюдался. Полученные в [29] квазиклассические формулы показывают, что вероятность одновременного туннелирования двух электронов может оказаться, в определенном диапазоне параметров, больше вероятности каскадной двойной ионизации. В частности, такая ситуация должна иметь место для некоторых атомов благородных газов, включая аргон, криптон и ксенон. Однако аналитические оценки [29] показывают, что вероятность коллективного туннелирования может превосходить вероятность каскадной ионизации всего в несколько раз, в то время как вероятность двойной ионизации через перерассеяние превышает их обе на несколько порядков. Кроме того, сильная антикорреляция в импульсном распределении электронных пар, $\mathbf{p}_{1m} = -\mathbf{p}_{2m}$, где $\mathbf{p}_m$ – наиболее вероятный импульс электрона, которая ожидается в случае коллективного туннелирования, наблюдается также в случае двойной ионизации через перерассеяние с возбуждением в промежуточное связанное состояние [14]. Приходится сделать вывод о том, что поиск эффекта коллективного туннелирования в линейно поляризованном лазерном поле имеет мало шансов на успех.

Эффект перерассеяния возникает в результате возвращения квазиклассически движущегося фотоэлектрона к родительскому атому [21, 22]. Как следствие, вклад перерассеяния в нелинейные эффекты лазер-атомного взаимодействия, включая двойную ионизацию [31], быстро падает с ростом эллиптичности лазерной волны, а в циркулрно поляризованном поле перерассеяние полностью исчезает. Напротив, туннельный эффект, одночастичный или коллективный, мало чувствителен к поляризации вызывающего его поля. Поэтому естественным представляется поиск проявлений коллективного туннельного эффекта при ионизации в циркулярно поляризованной лазерной волне, где главный конкурирующий канал двойной ионизации полностью запрещен. В данной работе мы приводим качественный анализ импульсных распределений двукратно заряженных ионов, возникающих в процессах каскадного и коллективного туннельного эффектов и показываем, что эти распределения должны сильно отличаться друг от друга. В случае, если вероятности ионизации по конкурирующим каналам сопоставимы, эти различия должны быть достаточны для экспериментального обнаружения коллективного туннельного эффекта в атомах.

Рассмотрим туннельную ионизацию атома с потенциалами ионизации двух внешних электронов, равными I_1 и I_2. Ионизацию можно считать туннельной при выполнении условия $\gamma \ll 1$, где

$$\gamma = \frac{\sqrt{2I}\omega}{E_0} \tag{1}$$

параметра Келдыша [32], а E_0 и ω – амплитуда и частота лазерной волны соответственно. Здесь и далее используем атомные единицы $e = m = \hbar = 1$. Будем считать, что это условие выполнено для обоих электронов, чего легко достичь при ионизации атомов лазерным излучением среднего инфракрасного диапазона с длиной волны $\lambda = 2{-}4$ мкм. С учетом кулоновских поправок к вероятности ионизации, величина этой вероятности в случае туннелирования одного электрона определяется формулой [33, 6]

$$W_s \simeq \left(\frac{2}{F}\right)^{2\nu} \exp\left\{-\frac{2}{3F}\right\}, \tag{2}$$

где

$$F = \frac{E_0}{(2I)^{3/2}}, \quad \nu = \frac{Z}{\sqrt{2I}} \tag{3}$$

соответственно приведенное электрическое поле волны и эффективное главное квантовое число уровня. Заряд атомного остатка Z равен 1 для нейтрального атома, 2 для однократно заряженного иона и т.д. В формуле (2) учтена главная, наиболее резкая зависимость вероятности от напряженности поля. Предэкспоненциальный фактор, слабо зависящий от F, опущен. Выражения для вероятности туннельной ионизации в единицу времени, учитывающие предэкспоненциальный фактор, зависящий от квантовых чисел уровня (l, m), можно найти в обзорах [6, 33].

В случае ионизации атомов благородных газов лазерным полем интенсивностью $\approx 10^{15}$ Вт/см^2 вероятность отрыва первого электрона за один период лазерного поля будет близка к насыщению, а вероятность туннельной ионизации второго – оставаться малой. В этом случае, если доминирует каскадный механизм, малое количество двукратно заряженных ионов, образующихся в лазерном фокусе, будет пропорционально вероятности (2), вычисленной для второго потенциала ионизации I_2. В случае одновременного туннелирования двух электронов вероятность такого процесса W_c дается той же формулой [29] с заменой

$$\nu \to \nu_* = \frac{\sqrt{2}Z}{\sqrt{I_*}}\ , \quad F \to F_* = \frac{\sqrt{2}E_0}{(2I_*)^{3/2}}\ , \tag{4}$$

где $I_* = I_1 + I_2$. Можно убедиться в том [29], что при интенсивности 10^{15} Вт/см^2 $W_c > W_s$ для атомов аргона и криптона. Тем не менее, даже кратное различие в вероятностях крайне сложно измерить в эксперименте из-за влияния усреднения по фокусу, неопределенности пикового значения интенсивности и влияния других трудно контролируемых эффектов. Поэтому выполнение условия $W_c > W_s$ само по себе недостаточно для достоверного наблюдения коллективного туннельного эффекта.

Рассмотрим теперь импульсные распределения двукратно заряженных ионов, возникающих в каждом из двух каналов ионизации. В нерелятивистском режиме взаимодействия, который для рассматриваемых параметров выполняется с большим запасом, импульсом поглощенных фотонов можно пренебречь, так что импульс двукратно заряженного иона

$$\mathbf{P} = -\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_2 \tag{5}$$

при любом механизме двойной ионизации. В случае одноэлектронного туннелирования при условии $\gamma \ll 1$ нормированное на единицу импульсное распределение в плоскости поляризации представляет собой узкий гауссов пик [33]:

$$dW_s(\mathbf{p}) = \frac{d^2p}{2\pi^{3/2}p_F\delta p}\exp\left\{-\frac{(p^2-p_F^2)^2}{4p_F^2\delta p^2}\right\},$$
$$p_F = \frac{E_0}{\omega}\ , \quad \delta p = \sqrt{2IF}. \tag{6}$$

Значение наиболее вероятного импульса $p_{\rm m} = p_F$ несложно получить, учитывая, что в момент выхода из-под барьера проекция скорости электрона на направление электрического поля равна нулю, а связь между зависящей от времени скоростью $\mathbf{v}(t)$ и сохраняющимся каноническим импульсом дается выражением:

$$\mathbf{p} = \mathbf{v}(t) + \mathbf{A}(t), \tag{7}$$

где $\mathbf{A}(t)$ – векторный потенциал лазерной волны, равный в нашем случае

$$\mathbf{A}(t) = p_F(\cos\omega t, \sin\omega t, 0). \tag{8}$$

Ширина распределения δp в (6) определяется малым разбросом по начальным поперечным скоростям, равным, в туннельном пределе, $\sqrt{2IF}$ [6, 33]. При одновременном туннелировании двух электронов кинематическая картина, определяющая вид импульсного распределения центра масс квазичастицы, остается той же, что и в случае одного электрона (рис. 1a). Удвоение заряда приводит к появлению множителя 2 перед векторным потенциалом. В результате, с учетом (5), для импульсного распределения $dW_c^{(2)}(\mathbf{P})$ двукратно заряженных ионов, образовавшихся в результате коллективного туннелирования, получим выражение (6) с заменой

$$p_F \to 2p_F, \quad \delta p \to \delta p_* = \sqrt{2I_*F_*}, \tag{9}$$

где величины I_* и F_* определены в (4). Таким образом, в случае коллективного туннельного эффекта распределение двукратно заряженных ионов по импульсам будет представлять собой узкий гауссиан с максимумом в точке $P_{\rm m} = 2p_F$ (рис. 1c).

В случае последовательного независимого туннелирования двух электронов, кинематика которого иллюстрируется рис. 1b, распределение по импульсу двукратно заряженного иона определяется, с учетом (5), известной формулой теории вероятности

$$dW_s^{(2)}(\mathbf{P}) = d^2P\int\delta(\mathbf{P}+\mathbf{p}_1+\mathbf{p}_2)dW_s(\mathbf{p}_1)dW_s(\mathbf{p}_2). \tag{10}$$

Отметим, что в этой формуле распределения, стоящие под знаком интеграла, вычисляются при значениях потенциалов ионизации I_1 и I_2 соответственно. Интегрирование по одному из импульсов выполняется элементарно, а оставшийся интеграл можно вычислить приближенно, учитывая, что распределение (6) по величине p_1^2 также близко к дельта-функционному, так что

$$\int dW_s(\mathbf{p}_1)F(\mathbf{P}+\mathbf{p}_1) \approx \frac{1}{2\pi}\int d\mathbf{n}_{p_1}F(\mathbf{P}+p_F\mathbf{n}_{p_1}). \tag{11}$$

Здесь единичный вектор $\mathbf{n}_{p_1}$ задает направление импульса $\mathbf{p}_1$. Вводя угол φ между направлением векторов $\mathbf{P}$ и $\mathbf{p}_1$, получим выражение для импульсного распределения двукратно заряженных ионов, образующихся в результате каскадного процесса:

$$dW_s^{(2)}(P) \sim PdP\int_0^\pi d\varphi\exp\left\{-\frac{P^2}{4p_F^2\delta p_2^2}\left(P+2p_F\cos\varphi\right)^2\right\}, \tag{12}$$

где $\delta p_2 = \sqrt{2I_2F}$. При сделанных нами предположениях о форме лазерного поля (8) и независимости двух актов туннелирования, распределение получается симметричным в плоскости поляризации.

Результат численного интегрирования выражения (12) показан на рис. 1c. Полученной форме распределения несложно дать качественное объяснение. При независимом туннелировании двух электронов импульс иона является векторной суммой двух импульсов, равных по величине p_F и равномерно распределенных по направлениям в плоскости поляризации (рис.1b). В результате распределение получается слабо изменяющимся в интервале $P \in (0, 2p_F)$, внутри которого зависимость $dW_s^{(2)}(P)/dP$ определяется в основном эффектами фазового объема. При $P > 2p_F$ вероятность экспоненциально спадает в соответствии с распределением (6), так как при этом хотя бы один из импульсов двух электронов должен существенно отличаться от p_F.

Полученные результаты проиллюстрированы для случая двойной ионизации атома аргона с $I_1 = 15.76$ эВ и $I_2 = 27.63$ эВ циркулярно поляризованным лазерным излучением с интенсивностью 10^{15} Вт/см^2 и длиной волны 2 мкм. Этим параметрам отвечают значения $E_0 = 0.12$, $\omega = 0.022$, для которых ионизация происходит в туннельном режиме: $\gamma_1 = 0.20$, $\gamma_2 = 0.27$, $\gamma_* = 0.24$. Величина p_F, задающая наиболее вероятное значение импульса при одноэлектронном туннелировании, равна $p_F = 5.29$ ат. ед., что соответствует кинетической энергии однозарядного иона аргона, равной приблизительно 5.3 мэВ.

Распределения, представленные на рис. 1c, различаются качественно, и поэтому их измерение может быть использовано для идентификации механизма двойной ионизации. Резкий пик распределения, отвечающего коллективному туннельному эффекту, оказывается, для выбранных параметров, примерно в пять раз выше максимума пологого распределения, возникающего в случае каскадного эффекта. Отметим, что оба распределения нормированы на единичное значение полной вероятности. Это означает, что вклад коллективного туннельного эффекта может быть надежно идентифицирован, даже если его вероятность в несколько раз меньше вероятности каскадного процесса.

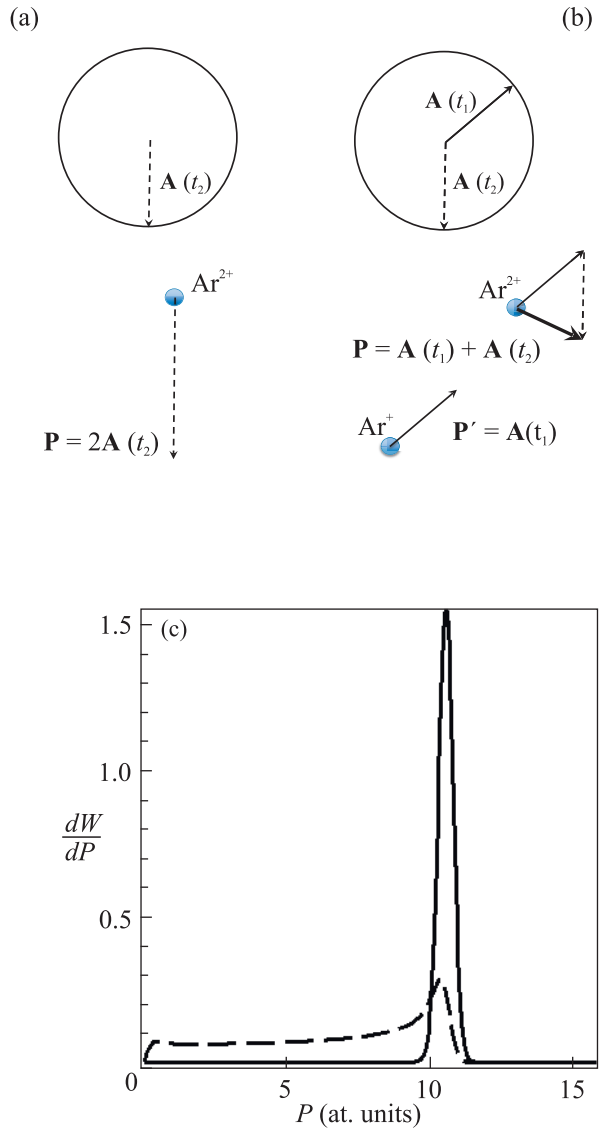

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема, иллюстрирующая формирование импульсного распределения в случае коллективного туннельного эффекта (a) и каскадной двойной ионизации (b). Распределение по абсолютному значению импульса двукратно заряженных ионов аргона (c) при коллективной (сплошная линия) и каскадной (пунктирная линия) двойной ионизации циркулярно поляризованным лазерным излучением с интенсивностью 10^{15} Вт/см^2 и длиной волны 2 мкм, нормированные на единичное значение полной вероятности

Следует отметить, что полученные результаты основаны на достаточно грубой модели, пренебрегающей несколькими существенными факторами. Во-первых, усреднение по пространственно-временному распределению интенсивности лазерного излучения в фокусированном импульсе, эквивалентное усреднению по величине p_F, приведет к уширению импульсного распределения. Однако в случае, когда полная вероятность двойной ионизации мала, как это и имеет место для выбранных параметров, подавляющее большинство событий будет происходить вблизи максимума поля, так что усреднение по фокусу лишь незначительно изменит ширину пика. Во-вторых, каскадное туннелирование электронов не является

последовательностью полностью независимых событий. Ионизация первого электрона будет происходить в основном при более низких значениях интенсивности, на фронте лазерного импульса, т.е. при меньших значениях p_F. Ионизация второго электрона будет, напротив, происходить в основном вблизи максимума поля. Таким образом, для количественно точного вычисления распределения, показанного штриховой линией на рис. 1c, требуется существенно более детальный расчет, включающий решение скоростных уравнений и учет эффекта истощения. Скорее всего, указанные эффекты, не учтенные в данной работе, приведут к еще большему выполаживанию распределения ионов, возникающих в результате каскадной ионизации. Наконец, следует отметить, что формулы для вероятности коллективного туннельного эффекта, полученные в [29], не учитывают отталкивания электронов, образующих туннелирующую квазичастицу. Учет отталкивания может существенно изменить величину вероятности, но не кинематику двукратно заряженного иона. Эти аргументы позволяют нам рассчитывать на то, что представленные здесь результаты верны на качественном уровне, а продемонстрированное различие импульсных распределений, возникающих в результате реализации двух механизмов, сохранится при переходе к более реалистическому расчету и будет вполне достаточным для того, чтобы экспериментально разделить вклады этих механизмов. Более точный анализ, учитывающий перечисленные выше факторы, а также эффекты электрон-электронного и электрон-ионного взаимодействия в континууме и позволяющий рассчитать также импульсные распределения электронных пар, будет представлен в последующей более детальной работе.

Один из авторов (С. В. Попруженко) выражает признательность Р. Мосхаммеру (R. Moshammer) за плодотворные обсуждения проблемы коллективного туннельного эффекта в атомах.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (проект # FZGU-2020-0035).

1. F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009).
2. F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, and M. Nisoli, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **49**, 062001 (2016).
3. A. Di Piazza, C. Müller, K. Z. Hatsagortsyan, and C. Keitel, Rev. Mod. Phys. **84**, 1177 (2012).
4. D. B. Milosevic, G. G. Paulus, D. Bauer, and W. Becker, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **39**, R203 (2006).
5. Б. М. Карнаков, В. Д. Мур, В. С. Попов, С. В. Попруженко, Письма в ЖЭТФ **93**, 256 (2011).
6. S. V. Popruzhenko, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **47**, 204001 (2014).
7. Б. М. Карнаков, В. Д. Мур, С. В. Попруженко, В. С. Попов, УФН **185**, 3 (2015).
8. W. Becker, S. P. Goreslavski, D. B. Milosevic, and G. G. Paulus, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **51**, 162002 (2018).
9. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. А. Шимко, А. В. Пахомов, Н. Н. Розанов, Письма в ЖЭТФ **110**, 9 (2019).
10. A. D. Koulouklidis, C. Gollner, V. Shumakova, V. Yu. Fedorov, A. Pugzlys, A. Baltuska, and S. Tzortzakis, Nat. Commun. **11** 292 (2020).
11. В. А. Костин, И. Д. Ларюшин, Н. В. Введенский, Письма в ЖЭТФ **112**, 81 (2020).
12. В. В. Суран, И. П. Запесочный, Письма в ЖТФ **1**, 973 (1975).
13. И. С. Алексахин, И. П. Запесочный, В. В. Суран, Письма в ЖЭТФ **26**, 14 (1977).
14. W. Becker, X. Liu, P. J. Ho, and J. H. Eberly, Rev. Mod. Phys. **84**, 1011 (2012).
15. C. A. Mancuso, K. M. Dorney, D. D. Hickstein, J. L. Chaloupka, J. L. Ellis, F. J. Dollar, R. Knut, P. Grychtol, D. Zusin, Ch. Gentry, M. Gopalakrishnan, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane, Phys. Rev. Lett. **117**, 133201 (2016).
16. H. Kang, K. Henrichs, M. Kunitski, Y. Wang, X. Hao, K. Fehre, A. Czasch, S. Eckart, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, T. Jahnke, X. Liu, and R. Dörner, Phys. Rev. Lett. **120**, 223204 (2018).
17. G. P. Katsoulis, A. Hadjipittas, B. Bergues, M. F. Kling, and A. Emmanouilidou, Phys. Rev. Lett. **121**, 263203 (2018).
18. S. Li, D. Sierra-Costa, M. J. Michie, I. Ben-Itzhak, and M. Dantus, Comm. Phys. **3**, 35 (2020).
19. J. Ullrich, R. Moshammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, and L. Spielberger, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 2917 (1997).
20. R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshammer, and H. Schmidt-Böcking, Phys. Rep. **330**, 95 (2000).
21. М. Ю. Кучиев, Письма в ЖЭТФ **45**, 319 (1987).
22. P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
23. K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **70**, 1599 (1993).
24. Th. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, F. Afaneh, G. Urbasch, M. Vollmer, H. Giessen, and R. Dörner, Phys. Rev. Lett. **84**, 443 (2000).
25. R. Moshammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann, and W. Sandner, Phys. Rev. Lett. **84**, 447 (2000).

26. A. Becker and F. H. M. Faisal, Phys. Rev. Lett. **84**, 3546 (2000).
27. R. Kopold, W. Becker, H. Rottke, and W. Sandner, Phys. Rev. Lett. **85**, 3781 (2000).
28. M. Lein, E. K. U. Gross, and V. Engel, Phys. Rev. Lett. **85**, 4707 (2000).
29. Б. А. Зон, ЖЭТФ **116**, 410 (1999).
30. U. Eichmann, M. Dörr, H. Maeda, W. Becker, and W. Sandner, Phys. Rev. Lett. **84**, 3550 (2000).
31. N. I. Shvetsov-Shilovski, S. P. Goreslavski, S. V. Popruzhenko, and W. Becker, Phys. Rev. A **77**, 063405 (2008).
32. Л. В. Келдыш, ЖЭТФ **47**, 1945 (1964).
33. В. С. Попов, УФН **174**, 921 (2004).