

01

Многоуровневая модель многофотонных процессов в атоме гелия в сильном лазерном поле: учет ионизации

© И.Р. Хайрулин¹, В.А. Антонов¹, М.Ю. Емелин¹, М.М. Попова^{1,2,3}, Е.В. Грызлова^{1,3}, М.Ю. Рябикин¹

¹ Институт прикладной физики РАН,
603950 Нижний Новгород, Россия

² Физический факультет, Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119991 Москва, Россия

³ Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына
Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова,
119991 Москва, Россия

e-mail: khairulinir@ipfran.ru

Поступила в редакцию 29.11.2022 г.

В окончательной редакции 30.12.2022 г.

Принята к публикации 28.01.2023 г.

Предложена многоуровневая модель, позволяющая описать многофотонные процессы в многоэлектронном атоме, облучаемом интенсивным лазерным полем, с учетом ионизации. На примере атома He показано, что данная модель воспроизводит основные закономерности многофотонной ионизации атома интенсивным высокочастотным лазерным полем.

Ключевые слова: атом в сильном поле, генерация гармоник высокого порядка, многофотонные процессы, ионизация атома.

DOI: 10.21883/OS.2023.02.54994.5-23

Введение

Появление источников когерентного излучения вакуумного ультрафиолетового и рентгеновского диапазонов, основанных на генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) лазерного поля в газовых средах в режиме туннельной ионизации, привело к зарождению аттосекундной физики — области науки, посвященной исследованию и управлению динамикой физических и химических процессов в атомах, молекулах, наноструктурах и твердых телах на аттосекундных временных масштабах [1].

Первые эксперименты по ГГВП проводились с благородными газами, в которых были установлены основные закономерности этого процесса [2]. Основой качественного понимания и теоретического описания процесса ГГВП на микроскопическом уровне стала трехступенчатая полуклассическая модель перерасеяния [3]. Квантово-механические аналоги этой модели [4,5] позволили дать аналитическое описание процесса в туннельном и надбарьерном режимах ионизации. Одним из отличительных свойств указанных режимов ГГВП является то, что в этих режимах доминирующую роль играет динамика высвобожденного электрона в континууме. Вместе с тем, поскольку на квантово-механическом языке высокочастотная нелинейная поляризация, ответственная за ГГВП, индуцируется вследствие интерференции составляющих волновой функции, соответствующих высвобожденному и связанному электронам, особенности волновой функции связанного валентного электрона играют важную роль, что нашло свое применение в

ГГВП-спектроскопии атомов и молекул [6]. Более того, было обнаружено, что при умеренных интенсивностях лазерных импульсов эффективность ГГВП может резко повышаться при наличии резонансов генерируемой гармоники с переходами между определенными возбужденными атомарными состояниями и основным состоянием [7]. Однако описание ГГВП в многофотонном и промежуточных режимах ионизации представляет собой сложную задачу, поскольку приближения, используемые при описании ГГВП в туннельном и надбарьерном режимах, становятся неприменимыми. При этом важное значение приобретает точность учета реальной структуры и свойств атомных состояний, которые сильно различаются для различных атомов.

В настоящей работе предложена многоуровневая модель, позволяющая описать многофотонные процессы в атоме с учетом ионизации его связанных состояний.

Теоретическая модель

Рассмотрим атом He, который облучается интенсивным линейно поляризованным вдоль оси z лазерным импульсом, электрическое поле которого имеет вид

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{z}_0 E(t) = \mathbf{z}_0 E_L f(t) \sin(\Omega_L t), \quad (1)$$

где E_L и Ω_L — амплитуда и несущая частота лазерного импульса, $f(t)$ — его огибающая. Эволюция состояния электронов в атоме He, $|\Psi\rangle$, во внешнем лазерном поле описывается нестационарным уравнением Шредингера

(здесь и далее используются атомные единицы):

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi\rangle = [\hat{H}_0 + \hat{V}]|\Psi\rangle, \quad (2)$$

в котором \hat{H}_0 — гамильтониан атома He в отсутствие взаимодействия с лазерным полем (1), \hat{V} — оператор взаимодействия атома с лазерным полем, который в электродипольном приближении имеет вид

$$\hat{V} = \hat{d}_z E_L f(t) \sin \Omega_L t,$$

где \hat{d}_z — проекция оператора дипольного момента атома на ось z . Волновую функцию электронов в He можно представить в виде разложения по конечному числу связанных двухэлектронных состояний $|k\rangle$ с энергиями E_k и двухэлектронных состояний континуума $|\varepsilon, l\rangle$, которые характеризуются энергией $\varepsilon > 0$ и орбитальным квантовым числом l :

$$|\Psi\rangle = \sum_{k=1}^K a_k(t) |k\rangle + \sum_{l=0}^{\infty} \int_0^{\infty} d\varepsilon b_l(\varepsilon, t) |\varepsilon, l\rangle, \quad (3)$$

где $a_k(t)$ и $b_l(\varepsilon, t)$ — амплитуды возбуждения состояний $|k\rangle$ и $|\varepsilon, l\rangle$ соответственно, K — количество учитываемых связанных состояний. При этом набор связанных состояний определяется необходимостью учета наиболее вероятных путей многофотонного возбуждения атома, тогда как состояния континуума позволяют учесть ионизацию атома. Заметим, что так как атом He дипольно взаимодействует с полем линейной поляризации (1), то магнитное квантовое число состояний атома M не изменяется. Так, если в начальный момент времени атом находился в состоянии с нулевым магнитным квантовым числом, к примеру, в основном состоянии атома He $|1s^2\rangle$, то магнитное квантовое число каждого состояния в (3) будет равняться нулю. Стоит отметить, что число связанных состояний в (3) может быть произвольным и в конкретных расчетах определяется имеющейся информацией об энергетической структуре (в общем случае, многоэлектронного) атома, а также доступными вычислительными возможностями. Однако число учитываемых связанных состояний определяет максимальную фотонность процессов, которые могут быть корректно описаны в рамках модели: как правило, максимальная фотонность не больше $K - 1$. Ниже в качестве примера мы будем учитывать первые шесть связанных состояний атома He ($K = 6$) с $M = 0$, а именно $|1\rangle = |1s^2\rangle$, $|2\rangle = |1s2s\rangle$, $|3\rangle = |1s2p\rangle$, $|4\rangle = |1s3s\rangle$, $|5\rangle = |1s3p\rangle$, $|6\rangle = |1s3d\rangle$, используя спектроскопическую информацию об атоме He (энергии E_k и дипольные моменты переходов между связанными состояниями и связанными состояниями и континуумом), полученную с помощью программного комплекса MCHF, основанного на решении стационарного уравнения Шредингера многоконфигурационным методом Хартри-Фока [8]. При этом в континууме учитываются состояния с энергиями меньше 1 a.u., которым соответствует отрыв одного

электрона. Таким образом, используемый в приводимых ниже расчетах набор состояний двухэлектронного атома позволяет корректно описать процессы с возбуждением и/или ионизацией одного электрона.

Подставляя (3) в (2) и последовательно вычисляя скалярные произведения получающегося выражения на вектора состояний $|k\rangle$ и $|\varepsilon, l\rangle$, можно получить систему уравнений относительно амплитуд $a_k(t)$ и $b_l(\varepsilon, t)$, которая полностью описывает динамику состояния атома во внешнем поле. При описании многофотонных процессов, преимущественно обусловленных переходами между связанными состояниями атома, эту систему можно упростить, используя приближение адиабатического исключения состояний континуума [9]. Оно позволяет перейти от полной системы уравнений для $a_k(t)$ и $b_l(\varepsilon, t)$ к замкнутой системе уравнений для фурье-компонент амплитуд возбуждения $a_{k,n}(t)$, которые определяются выражением

$$a_k(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} a_{k,n}(t) e^{in\Omega_L t}.$$

Пренебрегая дополнительно связью между связанными состояниями через состояния континуума, другими словами, пренебрегая влиянием связанно-свободно-связанных переходов (т.е. рекомбинацией) на эволюцию волновой функции, можно получить систему уравнений для $a_{k,n}(t)$ в следующем виде:

$$\begin{aligned} \frac{da_{k,n}}{dt} = & -i[E_k + n\Omega_L - iw_{k,n}(t)]a_{k,n} \\ & - \sum_{k'} \left[\frac{E_L d_{z,k'k}}{2} f(t) a_{k',n-1} - \frac{E_L d_{z,k'k}}{2} f(t) a_{k',n+1} \right], \quad (4) \end{aligned}$$

где $d_{z,k'k} = \langle k | \hat{d}_z | k' \rangle$, $w_{k,n}(t)$ — скорость ионизации n -й фурье-компоненты состояния $|k\rangle$:

$$\begin{aligned} w_{k,n}(t) = & \frac{\pi}{4} E_L^2 f^2(t) [D_{kk}(E_k - (n-1)\Omega_L) \theta(E_k - (n-1)\Omega_L) \\ & + D_{kk}(E_k + (n+1)\Omega_L) \theta(E_k + (n+1)\Omega_L)], \quad (5) \end{aligned}$$

где $\theta(x)$ — функция Хэвисайда,

$$D_{kk}(\varepsilon) = \sum_l |\langle \varepsilon, l | \hat{d}_z | k \rangle|^2.$$

В (4) суммирование по k' ведется по всей совокупности K связанных состояний, в которые разрешен дипольный переход, а $n = [-\infty; \infty]$. Кроме того, при расчете скоростей ионизации (5) интегралы по энергии ε вычислялись в смысле главного значения, из-за чего возникли функции Хэвисайда.

Для решения системы (4) необходимо определить начальные условия для $a_{k,n}$. Так как в начальный момент времени определены лишь значения амплитуд возбуждения связанных состояний $a_k(t=0) = a_k^{(0)}$, то имеется неопределенность в выборе начальных условий

для фурье-компонент. Ниже мы предполагаем, что в начальный момент времени ненулевыми являются только фурье-компоненты амплитуд с $n = 0$:

$$a_{k,n}(t = 0) = a_k^{(0)} \delta_{n0}, \quad (6)$$

где δ_{n0} — символ Кронекера. Система (4) вместе с начальными условиями (6) позволяет описать внутриатомную динамику, возбуждаемую лазерным полем (1), с учетом ионизации атома. Ионизация в данной модели сводится к появлению скоростей затухания фурье-компонент амплитуд возбуждения связанных состояний $w_{k,n}(t)$. В этом случае ионизацию можно представить как процесс „безвозвратного перетекания“ электронного волнового пакета в процессе многофотонного возбуждения в некоторый „резервуар“ (в континуум).

Сопоставление с численным решением уравнения Шредингера

Для проверки способа учета ионизации в приведенной выше модели мы провели расчеты для атома He на основе численного решения нестационарного уравнения Шредингера:

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(x, z, t)\rangle = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{i}{c} A_z(t) \frac{\partial}{\partial z} + U(x, z) \right] |\Psi(x, z, t)\rangle, \quad (7)$$

где

$$A_z(t) = c \int_{-\infty}^t E(t') dt'$$

— векторный потенциал поля (1), c — скорость света. В этих расчетах атом He описывался двумерной одноэлектронной моделью с эффективным потенциалом, позволяющим воспроизвести энергии первых трех состояний реального атома He с нулевым магнитным квантовым числом ($|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$):

$$U(x, z) = U(r) = -\frac{1 + (1 + 8.125r)e^{-8.125r}}{\sqrt{r^2 + 0.01}} + \frac{0.6r^6}{r^8 + 10^{-4}}. \quad (8)$$

Уравнение (7) с потенциалом (8) решалось методом операторного расщепления с быстрым преобразованием Фурье [10].

Чтобы исключить влияние многофотонного резонансного возбуждения атома при его ионизации и тем самым провести непосредственный сравнительный анализ ионизации атома из выбранного связанного состояния, мы рассмотрели случай нерезонансного лазерного поля, частота которого не находится в резонансе какой-либо кратности с переходами между основным и возбужденными состояниями атома He: $\Omega_L = 0.33$ а.у. ($\lambda_L = 138$ нм). В качестве огибающей поля (1), $f(t)$,

мы рассмотрели огибающую в виде трапеции с полной длительностью в 36 периодов поля $T_L = 2\pi/\Omega_L$ и с равномерным включением и выключением за $3T_L$ (рис. 1, правая ось ординат).

На рис. 1 (левая ось ординат) представлен характерный вид временной зависимости среднего числа электронов $N(t)$ в атоме He, облучаемом лазерным полем (1) с пиковой интенсивностью $I_L = 2.86 \cdot 10^{-3}$ а.у. (10^{14} Вт/см², параметр Келдыша $\gamma = 16.8$). Предполагалось, что в начальный момент времени атом находился в состоянии $|2\rangle$. В квантово-механическом расчете на основе (7), (8) $N(t)$ вычисляется следующим образом:

$$N(t) = \iint_R dx dz |\Psi(x, z, t)|^2 + 1 \equiv N_{2D}(t), \quad (9)$$

где интегрирование ведется внутри круга радиуса $R = 20$ а.у. вокруг атома He. При таком выборе волновые функции первых трех стационарных состояний активного электрона в задаче (7), (8) укладываются внутри круга интегрирования. Таким образом, первое слагаемое в (9) соответствует атомам, у которых активный электрон при взаимодействии с полем (1) в момент времени t оказывается не оторванным, тогда как второе слагаемое соответствует второму „замороженному“ электрону, который вместе с ядром атома создает эффективный потенциал (8). В предложенной модели (4), (5) $N(t)$ соответствует следующей величине:

$$N(t) = 2 \sum_{k=1}^K |a_k(t)|^2 + \sum_{l=0}^{\infty} \int_0^{\infty} d\varepsilon |b_l(\varepsilon, t)|^2 = \sum_{k=1}^K |a_k(t)|^2 + 1 \equiv N_{ML}(t), \quad (10)$$

где первое слагаемое в первом равенстве соответствует вероятности обнаружить два электрона в атоме He, а второе слагаемое — вероятности обнаружить один электрон в атоме He; также во втором равенстве учитывается условие нормировки волновой функции (3):

$$\sum_{k=1}^K |a_k(t)|^2 + \sum_{l=0}^{\infty} \int_0^{\infty} d\varepsilon |b_l(\varepsilon, t)|^2 = 1. \quad (11)$$

Из рис. 1 видно, что временная зависимость $N_{ML}(t)$ (пунктирная линия) качественно и количественно близка к зависимости $N_{2D}(t)$ (сплошная линия): в начальный момент времени на переднем фронте импульса (1) среднее число электронов в атоме He близко к двойке; далее на интервале времени с постоянной интенсивностью поля (1) наблюдается плавное уменьшение $N(t)$ вследствие многофотонной ионизации атома (параметр Келдыша $\gamma = 16.8$); после окончания импульса среднее число электронов в атоме остается постоянным. При этом на переднем фронте лазерного импульса $N_{ML}(t)$ уменьшается немного быстрее $N_{2D}(t)$, что связано с

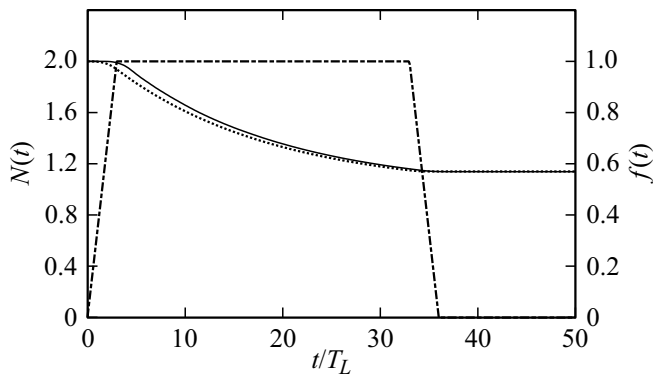


Рис. 1. Временная зависимость среднего числа электронов в атоме He (левая ось ординат, сплошная и пунктирная линии), а также форма огибающей поля (1) (правая ось ординат, штрихпунктирная линия). Сплошная линия соответствует численному решению уравнения (7) с потенциалом (8) и начальным условием $|\Psi(x, z, t = 0)\rangle = |2\rangle$, пунктирная линия — решению системы уравнений (4), (5) с начальными условиями (6) при $a_2^{(0)} = 1$ и $a_k^{(0)} = 0$ для $k \neq 2$. Рисунок построен при $\Omega_L = 0.33$ а.у. ($\lambda_L = 138$ nm) и $I_L = 2.86 \cdot 10^{-3}$ а.у. (10^{14} W/cm², параметр Келдыша $\gamma = 16.8$).

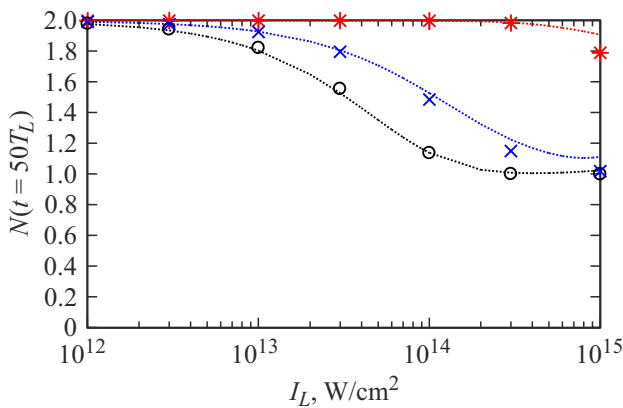


Рис. 2. Зависимость среднего числа электронов в атоме He после воздействия импульса (1) (в момент времени $t = 50T_L$) от его пиковой интенсивности. Представлены случаи, когда атом находится в начальный момент времени в состоянии |1> (красный цвет), |2> (черный цвет) и |3> (синий цвет). Пунктирные линии соответствуют данным, полученным на основе решения системы (4), (5), а маркеры (звездочки, крестики и кружки) — на основе численного решения уравнения Шредингера (7) с потенциалом (8) при соответствующих начальных условиях. Параметр Келдыша изменяется от 168 (при 10^{12} W/cm²) до 5.31 (при 10^{15} W/cm²).

задержкой в численных расчетах, необходимой для вылета свободной части волнового пакета за пределы круга интегрирования. С дальнейшим увеличением t скорость спадания $N_{2D}(t)$ стремится к скорости спадания $N_{ML}(t)$, а затем превышает ее. В результате для достаточно длинного импульса поля (1), начиная с определенного момента времени на участке постоянной интенсивности, величина $N_{ML}(t)$ становится больше величины

$N_{2D}(t)$, и с дальнейшим увеличением t разность между $N_{ML}(t)$ и $N_{2D}(t)$ будет увеличиваться. Такое поведение зависимостей $N_{ML}(t)$ и $N_{2D}(t)$ обусловлено как приближениями, используемыми при выводе системы уравнений (4), (5), так и приближениями, сделанными при численном решении уравнения Шредингера (7), (8). Однако для рассматриваемой на рис. 1 длительности импульса начальная разность между величинами $N_{ML}(t)$ и $N_{2D}(t)$ и скоростями их изменения настолько мала, что после окончания импульса поля (1), к примеру, при $t = 50T_L$, $N_{2D}(t) \simeq N_{ML}(t)$.

На рис. 2 представлены зависимости среднего числа электронов в атоме He после окончания импульса (при $t = 50T_L$) от интенсивности поля (1) с частотой $\Omega_L = 0.33$ а.у. для разных начальных состояний атома, посчитанные на основе численного решения уравнения (7) с потенциалом (8) (цветные маркеры), а также на основе предложенной модели (4), (5) (пунктирные линии). Видно, что в рассматриваемом интервале интенсивностей лазерного поля, при которых в процессе ионизации атома He участвует один электрон [11], наблюдается хорошее количественное согласие между решениями, полученными на основе модели (4), (5) и на основе численного решения уравнения Шредингера, что говорит о разумности используемых при выводе системы (4), (5) предположений.

Заключение

В настоящей работе предложена многоуровневая модель, позволяющая описать многофотонные, в том числе резонансные, процессы (к примеру, ГГВП с энергиями фотонов меньше или порядка потенциала ионизации) в атоме, облучаемом интенсивным лазерным полем, с учетом опустошения связанных состояний в режиме многофотонной ионизации. Описание многофотонных процессов в данной модели сводится к решению линейной системы уравнений относительно фурье-компонент амплитуд возбуждения связанных состояний, каждая из которых характеризуется собственной скоростью ионизации. В этом случае ионизацию можно представить как процесс „безвозвратного перетекания“ электронного волнового пакета в процессе многофотонного возбуждения в континуум. На примере атома He путем сопоставления с численным решением нестационарного уравнения Шредингера с модельным потенциалом, который воспроизводит структуру низколежащих состояний атома, показано, что предложенная модель описывает основные закономерности многофотонной ионизации атома интенсивным лазерным полем. Важной особенностью предложенной модели является возможность ее применения для расчетов внутренней динамики многоэлектронных атомов (при условии наличия информации о свойствах связанных состояний — энергиях связи и дипольных моментах переходов), что в рамках других

подходов является сложной с вычислительной точки зрения задачей.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда, грант № 22-12-00389.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] F. Krausz, M. Ivanov. *Rev. Mod. Phys.*, **81** (1), 163 (2009). DOI: 10.1103/RevModPhys.81.163
- [2] C. Winterfeldt, C. Spielmann, G. Gerber. *Rev. Mod. Phys.*, **80** (1), 117 (2008). DOI: 10.1103/RevModPhys.80.117
- [3] P.B. Corkum. *Phys. Rev. Lett.*, **71** (13), 1994 (1993). DOI: 10.1103/PhysRevLett.71.1994
- [4] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M.Yu. Ivanov, A. L'Huillier, P.B. Corkum. *Phys. Rev. A*, **49** (3), 2117 (1994). DOI: 10.1103/physreva.49.2117
- [5] М.Ю. Емелин, М.Ю. Рябикин, А.М. Сергеев. *ЖЭТФ*, **133** (2), 243 (2008). [M.Yu. Emelin, M.Yu. Ryabikin, A.M. Sergeev. *JETP*, **106** (2), 203 (2008). DOI: 10.1134/S1063776108020015].
- [6] H.J. Wörner, H. Niikura, J.B. Bertrand, P.B. Corkum, D.M. Villeneuve. *Phys. Rev. Lett.*, **102** (10), 103901 (2009). DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.103901
- [7] M. Chini, X. Wang, Y. Cheng, H. Wang, Y. Wu, E. Cunningham, P.-C. Li, J. Heslar, D.A. Telnov, S.-I. Chu, Z. Chang. *Nature Photon.*, **8** (6), 437 (2014). DOI: 10.1038/nphoton.2014.83
- [8] C. Froese-Fischer, T. Brage, P. Johnsson. *Computational Atomic Structure: An MCHF Approach* (IOP Publishing, Bristol, 1997).
- [9] J. Parker, C.R. Stroud. *Phys. Rev. A*, **41** (3), 1602 (1990). DOI: 10.1103/PhysRevA.41.1602
- [10] J.A. Fleck, J.R. Morris, M.D. Feit. *Appl. Phys.*, **10** (2), 129 (1976). DOI: 10.1007/BF00896333
- [11] D.N. Fittinghoff, P.R. Bolton, B. Chang, K.C. Kulander. *Phys. Rev. Lett.*, **69** (18), 2642 (1992). DOI: 10.1103/PhysRevLett.69.2642