01;02;07

Фотоионизация атомов с аттосекундной разверткой: сравнение квантово-механического расчета и простой модели

© А.К. Казанский,[1] Н.М. Кабачник,[2] И.П. Сажина[2]

[1] Физический институт им. В.А. Фока, Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Санкт-Петербург, Россия
[2] Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына,
Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119991 Москва, Россия
e-mail: sazhina@hep.sinp.msu.ru

(Поступило в Редакцию 3 марта 2008 г.)

Предложено простое полуэмпирическое описание параметров атомной фотоионизации с аттосекундной разверткой, основанное на приближении внезапных возмущений. Результаты модельных расчетов хорошо согласуются с полным квантово-механическим описанием процесса, основанным на численном решении нестационарного уравнения Шредингера, которое включает в себя как поле атома, так и поля ВУФ- и ИК-импульсов.

PACS: 32.80.Fb, 32.80.Hd

Одной из проблем в физике ультракоротких атомных процессов является измерение характеристик аттосекундных импульсов в области вакуумного ультрафиолета (ВУФ) и мягкого рентгена, используемых в экспериментах, в которых изучается временна́я эволюция атомных процессов. Такие измерения включают длительности импульса, его интенсивности, базисной частоты, спектрального распределения и возможной зависимости частоты от времени („чирпа", chirp). В типичном эксперименте [1–4] ВУФ-импульсы длительностью в несколько сот аттосекунд получаются отфильтровыванием высокоэнергетической части спектра высоких гармоник, который является результатом нелинейного взаимодействия короткого интенсивного инфракрасного (ИК) лазерного импульса с газовой мишенью.

Типичная длительность лазерного импульса — 5–7 fs, длина его несущей волны — порядка 800 nm (энергия фотона $\tilde{E}_L \approx 1.6$ eV), таким образом, период лазерного ИК-импульса значительно больше, чем длительность ВУФ-импульса. Типичная интенсивность излучения лазера $3 \cdot 10^{13}-10^{14}$ W/cm^2. При такой интенсивности электрическое поле лазера $\tilde{E}_L \approx (0.1-0.3) \cdot 10^9$ V/cm много меньше, чем атомное поле (1 a.u. $= 5.14 \cdot 10^9$ V/cm), хотя достаточно сильно, чтобы произошла генерация высоких гармоник. Электрическое поле ВУФ-импульса много меньше — около $7 \cdot 10^7$ V/cm [4], поэтому для описания взаимодействия ВУФ-импульсов с атомами может быть использовано приближение линейного отклика. Типичная несущая частота ВУФ-импульса соответствует энергии фотона $E_X \approx 90$ eV.

Единственной методикой, позволяющей получить характеристики аттосекундного импульса, реализуемой до настоящего времени, является так называемая аттосекундная стрик-камера. Исследуемые аттосекундные импульсы ионизуют атомы газовой мишени в присутствии ИК лазерного импульса. Сгусток фотоэлектронов, временна́я структура которого отражает форму ВУФ-импульса, взаимодействует с полем ИК-импульса. Стрик-эффект, т. е. развертка электронного импульса во времени, достигается измерением спектра фотоэлектронов при различных задержках между ВУФ и лазерным импульсами.

Полученное в результате взимодействия электронов с ИК-полем энергетическое и угловое распределение фотоэлектронов, несущее информацию о первичном аттосекундном импульсе, измеряется методами электронной спектроскопии.

Для извлечения информации о первичном ВУФ-импульсе из фотоэлектронного спектра используется несколько теоретических методов. Они основаны на классических уравнениях движения [5,6], полуклассическом подходе [6,7] или квантово-механических расчетах в приближении сильного поля [7,8]. При сопоставлении расчетов экспериментальными спектрами было доказано, что получены единичные импульсы длительностью 250 as [3] и даже 150 as [9]. Также была измерена интенсивность ВУФ-импульса [4]. Кроме того, было показано, что „чирп" ВУФ-импульса близок к нулю. Несмотря на очевидный успех метода стрик-камеры остается по-прежнему много проблем в понимании детальной динамики фотоионизации атомов ультракороткими импульсами в присутствии сильного лазерного поля, а также проблем точности и ограничений методов расчета. Последняя проблема недавно была детально обсуждена в работе [10].

В этой статье представлена простая модель, которая позволяет производить быстрый анализ экспериментальных данных и изучать чувствительность измерений по отношению к параметрам аттосекундных импульсов. Модельные расчеты сравниваются с полными квантово-механическими расчетами двойных дифференциальных сечений атомной фотоионизации ультракоротким ВУФ-импульсом в присутствии короткого ИК-импульса.

В полном расчете фотоэлектронный спектр и угловые распределения рассчитывались с помощью численного решения нестационарного уравнения Шредингера. Атом описывается в модели независимых электронов, причем предполагалось, что орбитали всех электронов, кроме активного, заморожены. Это приближение работает при не очень сильных лазерных полях ($\tilde{E}_L$ много меньше 1 a.u.). Предположим, что оба (ИК и ВУФ) фотона линейно поляризованы и их векторы поляризации параллельны. В этом случае существует аксиальная симметрия по отношению к оси поляризации, которую выберем в качестве оси z. Разложим электронную функцию активного электрона в ряд по сферическим гармоникам

$$\Psi(r,t) = \sum_{l=0}^{L_{\max}} u_l(r,t)\, Y_{l0}(\theta,\varphi). \qquad (1)$$

Подставив это разложение в зависящее от времени уравнение Шредингера, получим следующий набор уравнений для коэффициентных функций $u_l(r,t)$:

$$i\,\frac{\partial}{\partial t}\,u_l(r,t) = -\frac{1}{2}\,\frac{\partial^2}{\partial r^2}\,u_l(r,t)$$
$$+\left[U_l(r) + \frac{l(l+1)}{2r^2}\right]u_l(r,l) + r\tilde{E}_L(t)\sum_{l'=0}^{L_{\max}} C(l,l')u_{l'}(r,t)$$
$$+\frac{1}{2}\,rC(l,l_0)\delta_{l,l_0\pm1}\varepsilon_X(t)\exp\bigl[-i(\omega_X+\varepsilon_0)t\bigr]u_{l_0}(r). \qquad (2)$$

Здесь и далее используются атомные единицы, если нет других указаний. В уравнении (2) $U_l(r)$ — одноэлектронный атомный потенциал, $C(l,l')$ — угловая часть дипольного матричного элемента, ε_0 — энергия связи активного электрона, $\tilde{E}_L(t)$ — электрическое поле лазерного импульса и $\varepsilon_X(t)$ — огибающая ВУФ-импульса. Так как ВУФ-поле мало, используются первый порядок теории возмущений и приближение однофотонного поглощения (rotating wave approximation). Тогда в дипольном приближении возможны только переходы $l_0 \to l_0 \pm 1$. Напротив, лазерное ИК-поле сильное и перемешивает состояния с разными орбитальными угловыми моментами. Для достижения приемлемой точности в расчет включены парциальные волны до $L_{\max}$ порядка $40-60$.

Система уравнений (2) решалась численно с использованием метода расщепленной эволюции. Детали численного расчета были опубликованы ранее (см. работы [11,12]). Рассчитав набор функций $u_l(r)$ при $t\to\infty$, мы вычислили парциальные амплитуды фотоионизации, проектируя эти функции на соответствующие функции непрерывного спектра $\chi_-^{(l)}(E,r)$:

$$A_l(E) = \exp\bigl(i\eta_l(E)\bigr)\int_0^\infty dr\, u_l(r,t\to\infty)\chi_-^{(l)}(E,r), \qquad (3)$$

где $\eta_l(E)$ — фаза фотоионизации (детали см. в [13]). Зная амплитуды $A_l(E)$, можно рассчитать двойное дифференциальное сечение (ДДС) фотоионизации:

$$\frac{d^2\sigma}{dE\,d\Omega} = 2\pi\omega_X\alpha K^{-1}\left|\sum_l A_l(E)Y_{l0}(\theta)\right|^2. \qquad (4)$$

Здесь a — константа тонкой структуры, $K = \int_{-\infty}^{\infty} dt|\varepsilon_X(t)|^2$. Проинтегрировав уравнение (4) по углу эмиссии, можно получить спектр фотоэлектронов.

В качестве примера рассмотрим фотоионизации $3s$-подоболочки Ar. При этом атом будем описывать в приближении Хартри–Слэтера с одним и тем же потенциалом для всех моментов l. Лазерный импульс предполагаем имеющим форму

$$\tilde{E}_L(t) = \varepsilon_L(t)\cos\bigl[\omega_L(t-\tau_L)+\phi_L\bigr] \qquad (5)$$

с огибающей, описываемой выражением:

$$\varepsilon_L(t) = \frac{1}{2}\,\varepsilon_{L0}(t)\left\{\cos\left[\pi\left(\frac{t}{t_L}-1\right)\right]+1\right\}, \qquad (6)$$

где τ_L дает полное значение ширины на середине высоты максимума (FWHM), а ϕ_L — фазовый сдвиг. Далее полагаем $\phi_L = 0$. ВУФ-импульс задержки по отношению к лазерному импульсу на время t_d

$$\varepsilon_X(t) = \frac{1}{2}\,\varepsilon_X(t-t_d)\cos\bigl[\omega_X(t-t_d)\bigr]. \qquad (7)$$

Для огибающей $\varepsilon_X(t)$ была выбрана форма обратного гиперболического косинуса. Параметры ИК- и ВУФ-импульсов указаны в подписи к рис. 1. Этот рисунок показывает двумерное распределение — рассчитанный спектр электронов как функции задержки между ВУФ- и ИК-импульсами. Результат, показанный на рис. 1, типичен для экспериментов с временнóй разверткой [2–4].

Если длительность ВУФ-импульса гораздо меньше, чем период лазерного поля, т. е. τ_X много меньше T_L, то можно рассматривать процесс в целом как двухступенчатый [6]: первая ступень — фотоионизация атома ВУФ-импульсом, которая не зависит от лазерного поля, вторая ступень — перенос испущенного электрона лазерным полем в конечное состояние. В приближении линейного отклика сечение фотоионизации коротким импульсом (без ИК-поля) может быть представлено как [13]

$$\frac{d\sigma_0}{dp_0} = \frac{a}{\sqrt{2E_0}}\,|D(E_0)|^2\,\bigl|f(E_0+|\varepsilon_0|-\omega_X)\bigr|^2\,Y_{10}^2(\theta_0). \qquad (8)$$

Здесь p_0 — импульс фотоэлектрона сразу же после фотоионизации (θ_0 — соответствующий полярный угол эмиссии, E_0 — энергия электрона), $D(E_0)$ — дипольный матричный элемент для перехода в состояние непрерывного спектра с энергией E_0, $f(\varepsilon)$ — фурье-образ ВУФ-импульса при энергии $E_0+|\varepsilon_0|-\omega_X$ и $a = 2\pi\omega_X\alpha K^{-1}$. Фактор $Y_{10}^2(\theta_0)$ описывает угловое распределение фотоэлектронов для рассматриваемого случая $s\to p$-перехода.

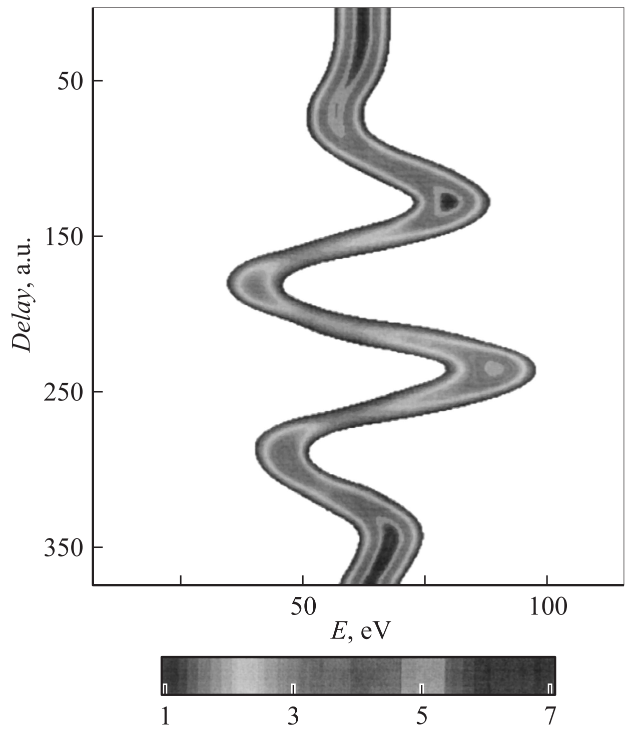

Рис. 1. Двумерная картина фотоэлектронного спектра Ar($3s$) (энергия электрона — ось x) при $0 < \theta < 15^\circ$ как функция времени в атомных едeницах, a.u. ($1\,\text{a.u.} = 24.2\,\text{as}$) между лазерным и ВУФ-импульсами (ось y). Расчеты выполнены для ИК-импульса косинусоидальной формы, длительностью $\tau_L = 5.0\,\text{fs}$, при интенсивности лазера $10^{13}\,\text{W/cm}^2$. Длительность ВУФ-импульса $\tau_X = 250\,\text{as}$, несущая частота 90 eV. Рассчитанная энергия связи Ar($3s$) равна 28.6 eV.

При наличии ИК-поля сечение модифицируется следующим образом:

$$\frac{d^3\sigma}{\sqrt{2E}\,dE\,d\Omega} = \frac{d^3\sigma}{d\mathbf{p}} = \frac{d^3\sigma_0}{d\mathbf{p}_0}\left|\frac{\partial(p_0)}{\partial(p)}\right|, \tag{9}$$

где p — конечный импульс электрона $|\partial(p_0)/\partial(p)|$ — детерминант преобразования. Установим связь переменных (θ_0, E_0) с экспериментально наблюдаемыми значениями (θ, E). Основные соотношения для компонентов импульса $\mathbf{p} = \{\mathbf{p}_\parallel, \mathbf{p}_\perp\}$, параллельного и перпендикулярного полю, имеют вид

$$p_\parallel = p_{0\parallel} - \int\limits_\tau^\infty \tilde{E}_L(t)dt \equiv p_{0\parallel} - A_L(\tau), \tag{10}$$

$$\mathbf{p}_\perp = \mathbf{p}_\perp, \tag{11}$$

из которых следует $|\partial(p_0)/\partial(p)| = 1$ и

$$\sin(\theta_0) = \sqrt{E/E_0}\,\sin(\theta). \tag{12}$$

Здесь τ — момент времени, в который произошла эмиссия фотоэлектрона и $A_L(\tau)$ — параллельная компонента векторного потенциала лазерного поля в кулоновской калибровке. Из уравнений (10) и (12) следует, что

$$E_0 = E + \sqrt{2E}\,A_L(\tau)\cos\theta + A_L^2(\tau)/2. \tag{13}$$

Конечное приближенное выражение для ДДС выглядит как

$$\frac{d^3\sigma}{dE\,d\Omega} = a\sqrt{\frac{E}{E_0}}\,|D(E_0)|^2\big|f(E_0 + |\varepsilon_0| - \omega_X)\big|^2\,Y_{10}^2(\theta_0), \tag{14}$$

где параметры E_0, θ_0 и E, θ связаны уравнениями (13), (12).

Из угловых и энергетических распределений, рассчитанных для каждого значения времени задержки, получим энергетический спектр фотоэлектронов при заданном угле путем интегрирования по некоторому малому углу (15°), представляющему апертуру детектора. Для определения ширины спектра он аппроксимировался функцией Гаусса. Именно изменение спектральной ширины со временем задержки обычно используется для определения параметров ВУФ-импульсов [1,3].

На рис. 2 показаны значения ширины Γ рассчитанных спектров в функции времени задержки для двух углов $\theta = 0$ и 180°. Сравнив результаты точных расчетов

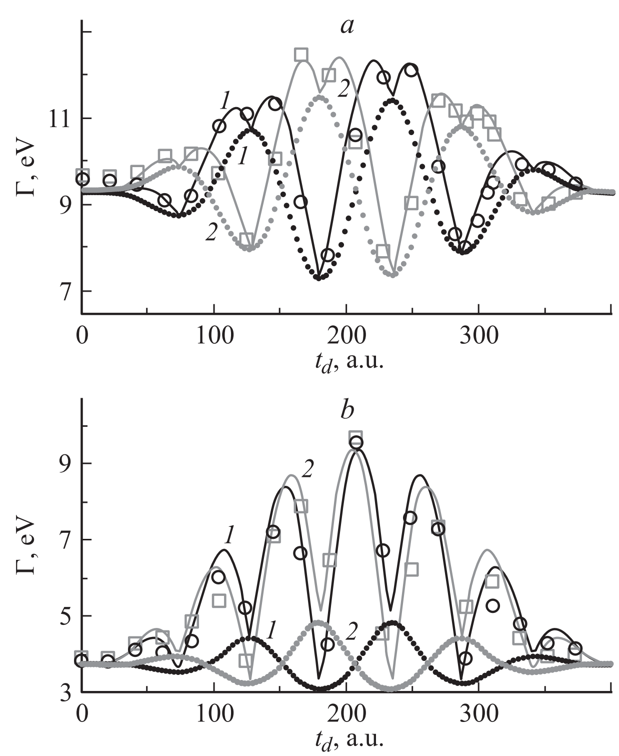

Рис. 2. Ширина фотоэлектронного спектра как функция временной задержки для двух значений длительности ВУФ импульса: a — $\tau_X = 100$, b — 250 as. Точные расчеты: кружки ($\theta = 0$) и квадраты ($\theta = 180^\circ$). Сплошные кривые показывают результаты, полученные с помощью уравнения (15). Кривые *1* соответствуют эмиссии вперед ($\theta = 0$), кривые *2* — эмиссии назад ($\theta = 180^\circ$), соответствующие пунктирные кривые показывают величину Γ_m, полученную с помощью модельных расчетов (14). Все параметры в расчетах те же, что и на рис. 1.

(символы) легко увидеть, что разница всегда пропорциональна величине ИК лазерного поля в момент фотоэлектронной эмиссии.

Как известно [6], уширение электронного спектра (для электронов, испущенных в одном направлении) определяется двумя факторами. Во-первых, спектр становится шире, если испускаемые электроны имеют различные энергии благодаря большой спектральной ширине ВУФ-импульса. Этот тип уширения учитывается уравнениями (13) и (14). Во-вторых, электроны испускаются в различные моменты времени во временном интервале, пока длится ВУФ-импульс и следовательно, в несколько разных фазах ИК-поля, что ведет к дополнительному разбросу электронных энергий в конечном состоянии.

Так как τ_X много меньше τ_L, это уширение линейно зависит от поля в момент электронной эмиссии и в первом приближении пропорционально длительности ВУФ-импульса. Таким образом, представим полуэмпирическое выражение для ширины:

$$\Gamma = \Gamma_m + \sqrt{2E_0}\,\tilde{E}_L(t_d)\tau_{1/2}/2, \qquad (15)$$

где Γ_m — модельная ширина, рассчитанная из спектра, полученного с помощью уравнения (14) и $\tau_{1/2}$ — FWHM огибающей ВУФ-поля. Используя это выражение, получим значения, показанные сплошной линией на рис. 2, которые находятся в согласии с результатами точных расчетов, показанных кружками (эмиссия вперед) и квадратами (эмиссия назад).

Кроме хорошего согласия между расчетами на рис. 2 можно увидеть, что есть структура двойных максимумов в результирующей модельной кривой для импульса длительностью в 100 as. Это не артефакт, так как точные расчеты с малым шагом при времени задержки около $t_d = 300$ a.u. прекрасно согласуются с модельными расчетами.

Указанная структура возникает потому, что в точках, где поле меняет знак, т. е. $\tilde{E}_L(t_d) = 0$, ширина спектра дожна быть равной получаемой из уравнения (14) и, следовательно, формируется минимум. Глубина минимума определяется вкладом спектральной ширины импульса (пунктир). Для более длинных импульсов (250 as) этот вклад меньше и минимум глубже. Анализ результатов, полученных с помощью модельного выражения (14), показывает, что для очень коротких ВУФ-импульсов ($\leq$ 100 as) модель описывает ширину достаточно хорошо, а также дает хорошее описание полной структуры ДДС. Таким образом, для таких коротких импульсов имеет значение только спектр ВУФ-импульса, а не его длительность и „чирп“.

С увеличением длительности ВУФ-импульса первый член в уравнении (15) уменьшается, в то время как второй член возрастает и становится доминирующим. Второй член дает информацию об FWHM огибающей ВУФ-импульса. Последняя величина может также зависеть от „чирпа“, хотя эта зависимость не очень сильная. Таким образом, „чирп“ может быть определн только в том случае, когда второй член в уравнении (15) достаточно велик. Значение этого члена пропорционально силе ИК-поля и длительности ВУФ-импульса, т. е. более сильные ИК-поля и длинные ВУФ-импульсы предпочтительны для регистрации „чирпа“.

В заключение отметим, что нами разработана полная квантово-механическая теория измерений с временно́й разверткой в аттосекундной области, основанная на численном решении зависящего от времени уравнения Шредингера, которое включает взаимодействие электрона с атомным кором, так же как и с ВУФ и лазерным полями. Предложено также простое модельное выражение для ширины фотоэлектронного спектра, которое очень хорошо согласуется с точными расчетами. Это выражение позволяет легко производить экспресс-анализ экспериментальных спектров для определения длительности ВУФ-импульса, а также анализировать чувствительность ширины спектра к параметрам ВУФ-импульса.

Благодарим за финансовую поддержку Российский фонд фундаментальных исследований (грант № 06-02-16289).

Список литературы

[1] *Hentschel M., Kienberger R., Spielmann Gh., Reider G.A., Milosevic N., Brabec T., Corkum P., Heinzmann U., Drescher M., Krausz F.* // Nature. 2001. Vol. 414. P. 509.

[2] *Drescher M., Hentschel M., Kienberger R., Uiberacker M., Yakovlev V., Scrinzi A., Westerwalbesloh Th., Kleineberg U., Heinzmann U., Krausz F.* // Nature. 2002. Vol. 419. P. 803.

[3] *Kienberger R., Goulielmakis E., Uiberacker M., Baltuska A., Yakovlev V., Bammer F., Scrinzi A., Westerwalbesloh Th., Kleineberg U., Heinzmann U., Drescher M., Krausz F.* // Nature. 2004. Vol. 427. P. 817.

[4] *Goulielmakis E., Uiberacker M., Kienberger R., Baltuska A., Yakovlev V., Scrinzi A., Westerwalbesloh Th., Kleineberg U., Heinzmann U., Drescher M., Krausz F.* // Sciecne. 2004. Vol. 305. P. 1267.

[5] *Constant E., Taranukhin V.D., Stolow A., Corkum P.B.* // Phys. Rev. A. 1997. Vol. 56. P. 3870.

[6] *Itatani J., Quéré F., Yudin G.L., Ivanov M.Yu., Krausz F., Corkium P.B.* // Phys. Rev. Lett. 2002. Vol. 88. P. 173 903.

[7] *Kitzler M., Milosevic N., Scrinzi A., Krausz F., Brabec T.* // Phys. Rev. Lett. 2002. Vol. 88. P. 173 904.

[8] *Scrinzi A., Brabec T., Walser M.* // Proc. Workshop on Super-Intense Laser-Atom Physics. 2001. P. 313.

[9] *Wonisch A., Neuhäusler U., Kabachnik N.M., Uphues T., Uiberacker M., Jakovlev V., Krausz F., Drescher M., Kleineberg U., Heinzmann U.* // Appl. Optics. 2006. Vol. 45. P. 4147.

[10] *Yakovlev V.S., Bammer F., Scrinzi A.* // J. Mod. Opt. 2005. Vol. 52. P. 395.

[11] *Kazansky A.K., Kabachnik N.M.* // Phys. Rev. A. 2005. Vol. 72. P. 052 714.

[12] *Kazansky A.K., Kabachnik N.M.* // J. Phys. B. 2006. Vol. 39. P. L53.

[13] *Kazansky A.K., Kabachnik N.M.* // Phys. Rev. A. 2006. Vol. 73. P. 062 712.

[14] *Herman F. and Skillman S.* Atomic Structure Calculations. Englewood Cliffs, NJ: Prentice-Hall, 1963.