

ДИНАМИКА МОЛЕКУЛЯРНЫХ СИСТЕМ В ПОЛЕ УЛЬТРАКОРОТКИХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ И ИНТЕРФЕРЕНЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ, ВОЗНИКАЮЩИЕ В ПРОЦЕССЕ ПЕРЕРАССЕЯНИЯ

*И. А. Буренков, Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова**

*Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 23 декабря 2008 г.

Методом прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера исследована динамика модельной молекулярной системы в поле мощного ультракороткого импульса. Проанализированы двумерные импульсные распределения электронов в континууме. В угловых диаграммах вылета электронов обнаружена резко немонотонная угловая зависимость, не объясняющаяся дифракцией на двухъямной структуре потенциала молекулярного иона. Продемонстрировано, что возникающие немонотонности имеют место и в случае ионизации атомных систем и обусловлены интерференцией различных частей электронного волнового пакета при его перерасеянии на родительском ионе. Построена аналитическая модель, объясняющая наблюдаемые эффекты.

PACS: 33.80.Eh, 32.80.Fb

1. ВВЕДЕНИЕ

Быстрый прогресс в развитии источников мощного лазерного излучения привел к возможности генерации интенсивных лазерных импульсов предельно короткой длительности в несколько периодов оптического поля [1]. Такие импульсы могут быть использованы для наблюдения и контроля динамики атомно-молекулярных квантовых систем и различных физических процессов с высоким временным и пространственным разрешением [2–9]. Одно из возможных направлений получения в реальном времени информации о структуре и динамике ядерной подсистемы в молекулах заключается в наблюдении картин дифракции, возникающих при ионизации молекулы интенсивным ультракоротким лазерным импульсом и проявляющихся в импульсных распределениях электронов в континууме [10, 11], в электронных энергетических спектрах надпороговой ионизации [12], а также в спектре генерации гармоник высокого порядка [13–15].

Возникновение дифракционных картин обуслов-

лено тем, что при ионизации молекулы лазерным импульсом оказавшийся в континууме электрон осциллирует под действием лазерного поля и, возвращаясь к родительскому молекулярному иону, рассеивается на нем. Такое рассмотрение процесса ионизации было впервые предложено в работе [16] и известно как модель перерасеяния, которая применима и к молекулам, и к атомам при ионизации низкочастотным лазерным полем. В случае молекул имеет место перерасеяние, по крайней мере, на двухъямном потенциале двух ядер, что приводит к наличию дифракционных максимумов и минимумов в энергетических спектрах фотоэлектронов и угловых диаграммах их вылета. Хотя проблеме анализа наблюдаемых дифракционных картин посвящено большое число работ [2, 3, 10–14, 17–20], целый ряд вопросов остается открытым.

Картина дифракции, возникающая при перерасеянии электрона на двуцентровом потенциале родительского молекулярного иона с межъядерным расстоянием R , в простейшем случае эквивалентна дифракции света на двух щелях или интерференции от двух точечных источников.

*E-mail: ovtikhonova@mail.ru

При этом, рассматривая рассеяние электрона на родительском ионе как упругое в борновском приближении [21], можно показать, что угловые положения минимумов дифференциального сечения рассеяния определяются из условий

$$R \sin \theta = (n + 1/2)\lambda, \quad (1a)$$

$$R(1 - \cos \theta) = (n + 1/2)\lambda. \quad (1б)$$

Здесь θ — угол рассеяния, R — межъядерное расстояние в молекуле, λ — дебройлевская длина волны рассеивающегося электрона, $n = 0, 1, 2, \dots$. Приведенные выражения получены соответственно для перпендикулярной и параллельной ориентаций оси молекулы по отношению к направлению движения электрона.

Отметим, что в модели упругого рассеяния электрона на родительском ионе условия минимумов в точности совпадают с результатами задачи дифракции на двух щелях, в то время как положения максимумов имеют отличия из-за наличия угловой зависимости дифференциального сечения рассеяния в случае одного потенциального центра [21]. Таким образом, необходимость характеризовать возникающую дифракционную картину по положению минимумов приводит к сложностям в случае наблюдения в реальном эксперименте.

Более того, для корректного определения мгновенного значения межъядерного расстояния R из условия минимумов (1a), (1б) необходимо с высокой точностью знать длину волны де Бройля перерассеянного электрона. Однако в случае ионизации атомно-молекулярной системы лазерным импульсом фемтосекундной длительности возникающий в континууме электрон представляет собой волновой пакет, существенно отличающийся от плоской волны с определенным значением волнового вектора и характеризующийся достаточно широким импульсным распределением. Вопрос о величине λ , входящей в условия (1a), (1б) и позволяющей интерпретировать наблюдаемые картины дифракции и их эволюцию во времени, неоднократно обсуждался, см. [2, 3, 12, 13]. Однако выход за рамки приближения плоской волны и учет распределения электронов в континууме по волновым векторам не были предприняты.

Еще одной важной особенностью взаимодействия атомно-молекулярных систем с ультракоротким лазерным импульсом является высокая когерентность процесса, включая процесс перерассеяния. Это приводит к невозможности в общем

случае отделить каналы прямой ионизации и перерассеяния при экспериментальном наблюдении, а также к проявлению интерференции указанных каналов в динамике ионизации лазерным импульсом.

Кроме того, с учетом достаточно широкого импульсного распределения электрона в континууме, перерассеивающегося на родительском ионе, оказывается возможной интерференция плоских волн, входящих в электронный волновой пакет и не испытывавших рассеяния, с волнами, отклоненными в процессе рассеяния в том же направлении. Указанный интерференционный эффект, обусловленный невозможностью отделить нерассеянный и рассеянный электронные волновые пакеты друг от друга, имеет принципиальное значение и может существенным образом повлиять на угловое и энергетическое распределение электрона в континууме, формирующиеся в процессе ионизации.

Возникновение интерференции рассеянных и нерассеянных волн впервые обсуждалось в работе [10]. Однако этот эффект не был описан аналитически и не был учтен при интерпретации дифракционных картин, проявляющихся в импульсных распределениях фотоэлектронов, а рассматривался как паразитный.

Отметим также, что с учетом указанной интерференции угловые и импульсные распределения перерассеивающегося фотоэлектрона несут информацию не только о мгновенной ориентации и удалении ядер в молекулярном ионе, но также и о структуре электронного волнового пакета до момента перерассеяния, т. е. образованного в процессе ионизации. Таким образом, возникает актуальная задача извлечения информации о динамике как ядерной, так и электронной подсистем в процессе ионизации с высоким временным разрешением из данных по угловым и импульсным распределениям фотоэлектронов.

В данной работе методом прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера исследована динамика ионизации модельной молекулярной системы ультракоротким лазерным импульсом. Получены угловые диаграммы вылета и двумерные импульсные распределения фотоэлектрона в континууме по окончании лазерного воздействия. Анализируется эффект интерференции прошедшей и рассеянной частей электронного волнового пакета в процессе перерассеяния и его влияние на формирующиеся распределения. Построена аналитическая модель, описывающая указанный эффект интерференции с учетом специфики процесса ионизации в ультракоротком лазерном импульсе, объяс-

няющая результаты численных расчетов и позволяющая получить информацию как о ядерной, так и об электронной подсистемах.

2. ЧИСЛЕННАЯ МОДЕЛЬ

В данной работе исследуется динамика двумерного молекулярного иона водорода H_2^+ в поле ультракороткого лазерного импульса. В приближении неподвижных ядер, которое оказывается правомерным в случае ультракороткой длительности лазерного воздействия, взаимодействие рассматриваемой модельной системы с лазерным импульсом в дипольном приближении описывается нестационарным уравнением Шредингера для единственного связанного электрона:

$$i\hbar \frac{\partial \psi(x, y, R, t)}{\partial t} = \left[\frac{\hat{p}^2}{2m} + V(x, y, R) - \mathbf{d} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}(t) \right] \psi(x, y, R, t) \quad (2)$$

с начальным условием

$$\psi(x, y, R, t = 0) = \varphi_g(x, y, R), \quad (3)$$

соответствующим заселению основного электронного состояния молекулярного иона для фиксированного значения межъядерного расстояния R . Здесь $\boldsymbol{\varepsilon}(t)$ — напряженность электрического поля волны, $\mathbf{d} = e\mathbf{r}$ — оператор дипольного момента электрона, волновая функция электрона зависит от межъядерного расстояния R параметрически, а потенциальная энергия взаимодействия электрона с двумя ядрами с учетом сглаживания кулоновской сингулярности имеет вид

$$V(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = -\frac{e^2}{\sqrt{x^2 + (y - R/2)^2 + \alpha^2}} - \frac{e^2}{\sqrt{x^2 + (y + R/2)^2 + \alpha^2}}, \quad (4)$$

что соответствует ориентации оси молекулы вдоль оси y . Параметр сглаживания α был выбран равным 0.35 \AA , чтобы обеспечить хорошее приближение параметров нашей модельной системы к экспериментально наблюдаемым (см. [22]).

Поскольку в работе рассмотрены предельно короткие лазерные импульсы длительностью вплоть до одного оптического цикла, напряженность электрического поля $\boldsymbol{\varepsilon}(t)$ задавалась через векторный потенциал $\mathbf{A}(t)$:

$$\boldsymbol{\varepsilon}(t) = -\frac{1}{c} \frac{d\mathbf{A}}{dt}. \quad (5)$$

При этом зависимость векторного потенциала от времени выбиралась в виде

$$\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0(t) \sin(\omega t), \quad (6)$$

где частота ω соответствует частоте лазера на кристалле титаната-сапфира с энергией кванта $\hbar\omega = 1.55 \text{ эВ}$, а огибающая векторного потенциала $\mathbf{A}(t)$ имела вид

$$A_0(t) = A_0 \sin^2 \frac{\pi t}{\tau_p} \quad (7)$$

с длительностью лазерного импульса τ_p , составляющей целое число оптических циклов несущей частоты:

$$\tau_p = \frac{2\pi}{\omega} n. \quad (8)$$

Такая процедура задания поля является принципиальной в случае ультракоротких лазерных импульсов, поскольку обеспечивает выполнение необходимого условия равенства нулю статической компоненты поля:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{\varepsilon}(t') dt' = 0 \quad (9)$$

для любых длительностей импульса, в том числе равных одному оптическому циклу.

Кроме того, в заданном таким образом лазерном импульсе как дрейфовая скорость, так и смещение свободного электрона по окончании такого лазерного воздействия оказываются равными нулю, что является важным при изучении динамики процесса перерассеяния.

Для описания процесса ионизации исследуемой системы и дальнейшей динамики электрона в континууме уравнение (2) с начальным условием (3) решалось численно прямым интегрированием на основе метода конечных элементов [23] по методике аналогичной [24]. Параметры сетки выбирались, исходя из необходимости достаточно длительного удержания полной волновой функции на сетке. На границах сетки введен поглощающий потенциал, так чтобы избежать переотражения электронной плотности вероятности от границ расчетной сетки.

С использованием найденной в полярной системе координат нестационарной волновой функции $\psi(r, \theta, R, t)$ на достаточном удалении \mathbf{r}_m от родительского иона рассчитывалась плотность потока вероятности вылетающего электрона:

$$\mathbf{j} = \frac{\hbar}{2mi} (\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*),$$

причем величина \mathbf{r}_m выбиралась так, чтобы на таком удалении тангенциальная составляющая \mathbf{j} оказывалась практически равной нулю.

С учетом этого угловая диаграмма вылета электрона в процессе ионизации и перерасеяния вычислялась интегрированием по времени радиальной составляющей потока вероятности в направлении угла вылета θ в течение действия импульса и достаточно долго по окончании лазерного воздействия:

$$J(\theta) = \int j_r(\theta, r = r_m, t') dt'. \quad (10)$$

Кроме того, были получены двумерные импульсные распределения электрона в континууме в момент времени t^* по окончании лазерного воздействия:

$$\Phi(\mathbf{k}) = \left| \int \psi_c(\mathbf{r}, t^*) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2, \quad (11)$$

где момент времени t^* соответствовал значительному «уходу» электронного волнового пакета в континууме из «зоны» действия потенциала, а волновая функция электрона в континууме вычислялась следующим образом:

$$\psi_c(\mathbf{r}, t) = \psi(\mathbf{r}, t) - \sum_n C_n \varphi_n(\mathbf{r}) \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_n t\right). \quad (12)$$

Здесь φ_n и E_n — волновые функции стационарных связанных электронных состояний молекулярного иона и соответствующие им энергии, C_n — амплитуды вероятности заселения этих состояний, вычисленные по окончании лазерного воздействия.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Ионизация в сильном поле и перерасеяние электрона на молекулярном остове

Процесс ионизации молекулярного иона интенсивным лазерным импульсом сопровождается формированием в континууме электронного волнового пакета, который характеризуется достаточно широким импульсным распределением, определяемым динамикой процесса ионизации. В случае режима ионизации, близкого к туннельному, ионизация существенна в интервале времен, когда поле максимально, при этом каждые полпериода поля происходит формирование и движение электронного волнового пакета вправо и влево вдоль направления поляризации лазерного поля. Кроме того, часть электронного волнового пакета в континууме может вернуться под действием поля к молекулярному иону и рассеяться на нем. В достаточно «длинных» (с точки зрения числа оптических циклов) лазерных

импульсах оба эти процесса — прямая ионизация и перерасеяние — происходят когерентно, и оказывается невозможным отделить их друг от друга.

В случае ультракороткого лазерного воздействия проблема преимущественного разделения этих каналов может быть решена. В наших расчетах был выбран предельно короткий лазерный импульс длительностью в один оптический цикл, имеющий единственный главный «всплеск» поля. В случае воздействия таким импульсом при ионизации основным «всплеском» поля в континууме образуется электронный волновой пакет, который движется преимущественно в одном направлении. В процессе выключения лазерного импульса часть указанного волнового пакета меняет направление движения на противоположное, движется навстречу родительскому молекулярному иону и рассеивается на нем. При этом существенно, что процесс перерасеяния происходит преимущественно уже по окончании лазерного воздействия. Таким образом, специальным выбором лазерных параметров обеспечивается разделение электронных волновых пакетов, образованных в процессе прямой ионизации и при перерасеянии за счет их движения в противоположных направлениях. Кроме того, в отличие от импульсов с большим числом оптических циклов, процесс перерасеяния в указанном случае происходит в отсутствие лазерного воздействия.

Электронная плотность вероятности, сформировавшаяся в результате взаимодействия молекулярного иона водорода с таким импульсом, представлена на рис. 1 для двух геометрий. Молекулярная ось ориентирована по оси y , а межъядерное расстояние R выбрано заведомо большим ($R = 4.8 \text{ \AA}$) для более яркого проявления возникающих дифракционных эффектов. Рисунок 1а соответствует так называемой перпендикулярной геометрии, когда поляризация лазерного поля направлена по оси x и перпендикулярна ориентации оси молекулы; рис. 1б — параллельной.

В случае «перпендикулярной» геометрии (рис. 1а), образовавшийся при прямой ионизации электронный волновой пакет движется в положительном направлении оси x , при этом вылет электронов в процессе ионизации происходит преимущественно вдоль направления лазерной поляризации. Канал перерасеяния характеризуется расположенной в левой полуплоскости электронной плотностью ($x < 0$), которая соответствует более широкому по углам распределению с наличием ряда преимущественных направлений вылета электронов.

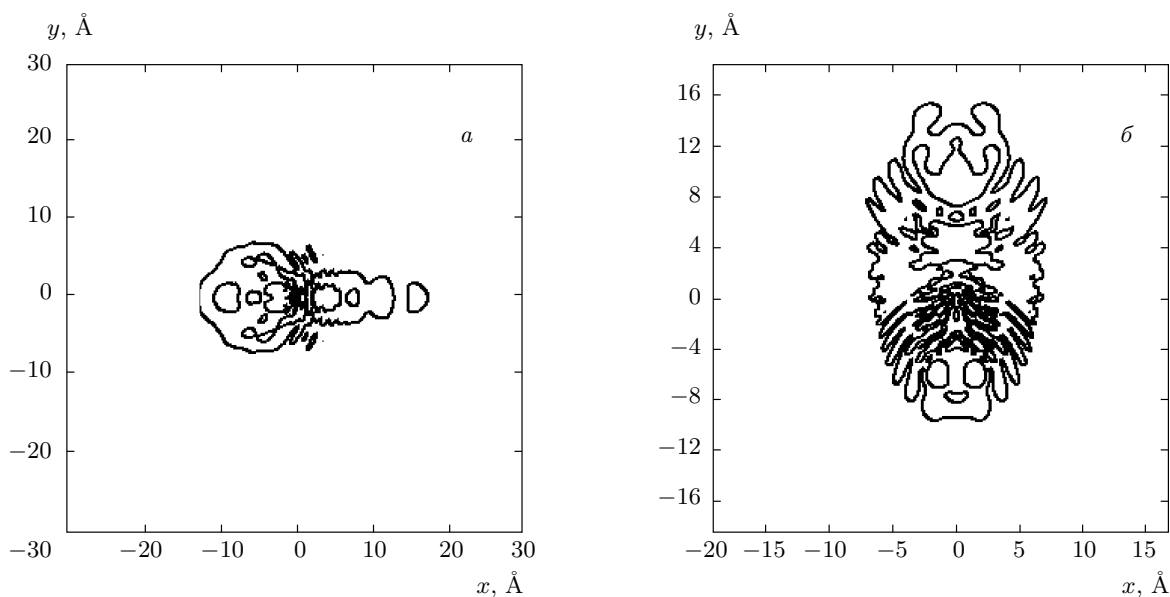


Рис. 1. Пространственное распределение электронной плотности вероятности в случае ионизации молекулярного иона водорода одноцикловым лазерным импульсом с $\hbar\omega = 1.55$ эВ для перпендикулярной (*а*) и параллельной (*б*) ориентации оси молекулы относительно направления лазерной поляризации; $R = 4.8$ Å, интенсивность лазерного излучения равна $3 \cdot 10^{14}$ (*а*), $6 \cdot 10^{14}$ (*б*) Вт/см². Данные соответствуют моменту времени $t^* = 3T$ (два оптических цикла после окончания лазерного импульса)

В случае «параллельной» геометрии (рис. 1*б*) каналы прямой ионизации и перерассеяния отвечают электронной плотности вероятности соответственно в верхней и нижней полуплоскостях.

Наличие преимущественных направлений вылета электрона, перерассеянного на родительском ионе, наиболее ярко иллюстрируется на двумерном импульсном распределении, представленном на рис. 2*а* для параллельной геометрии. Область $k_y < 0$ соответствует перерассеянному электронному волновому пакету, при этом явно видны «всплески» электронной плотности в одних направлениях по углу и подавление вылета электронов в других направлениях. Отметим, что канал прямой ионизации ($k_y > 0$) в случае параллельной геометрии также характеризуется достаточно широкой угловой диаграммой вылета электронов, что обусловлено спецификой геометрии, для которой электронный волновой пакет, образованный в прямой ионизации у одного ядра, может рассеяться на соседнем ядре. Таким образом, случай параллельной геометрии оказывается более сложным для интерпретации результатов. Заметим также, что на распределении рис. 2*а* присутствуют характерные концентрические структуры, отвечающие различным надпороговым максимумам в энергетическом распределении. На рис. 2*б* представлено

энергетическое распределение электронов для каналов прямой ионизации (кривая 1) и перерассеяния (кривая 2) для случая параллельной геометрии, оно позволяет оценить характерные энергии электрона в континууме. Отметим, что спектр простирается до энергий не более U_p , что обусловлено ультракороткой длительностью импульса. Кроме того, имеют место немонотонности в указанном распределении, а также проявлена структура надпороговых максимумов.

Данные, представленные на рис. 2*а*, можно рассматривать как типичное проявление «дифракционной картины», возникающей при рассеянии электрона на двуцентровой структуре. Наиболее ярко это характеризуется угловыми распределениями электрона в континууме, представленными на рис. 3 для двух геометрий (кривые 1).

В случае «перпендикулярной» геометрии (рис. 3*а*) видно, что канал прямой ионизации характеризуется монотонно спадающим одиночным пиком в направлении $\theta = 0$, в то время как угловое распределение электрона, формирующееся в процессе перерассеяния (в направлении $\theta = \pi$), имеет ряд дифракционных максимумов и минимумов.

В случае параллельной геометрии немонотонности по углу имеют место и в случае канала пря-

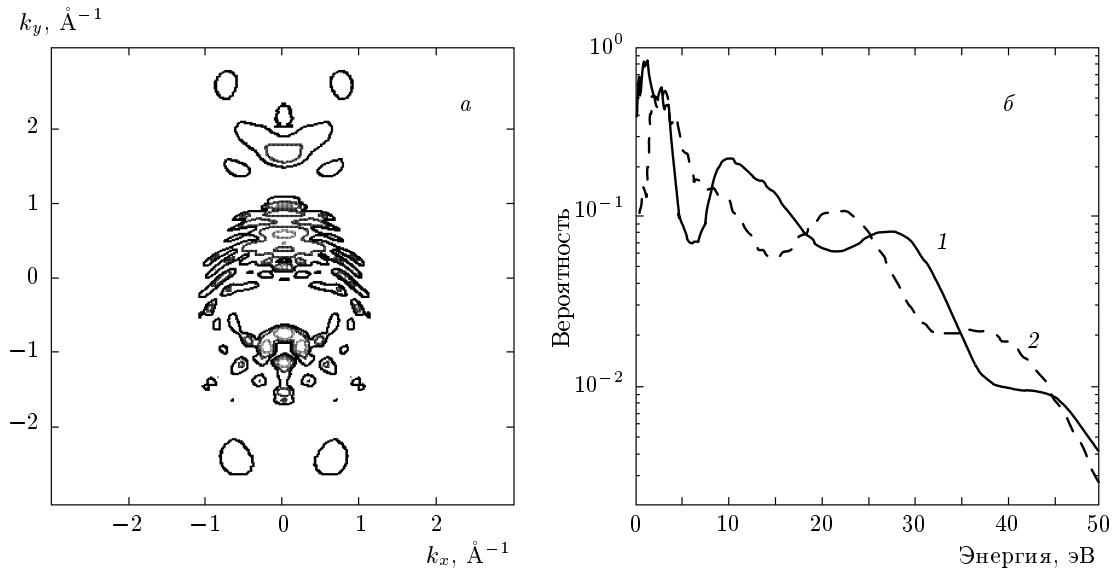


Рис. 2. Двумерное импульсное распределение (а) и оно же, проинтегрированное по углам (б), в верхней (канал прямой ионизации, кривая 1) и нижней (канал перерассеяния, кривая 2) полуплоскостях в случае ионизации молекулярного иона с $R = 4.8 \text{ \AA}$ одноцикловым импульсом интенсивностью $6 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ для параллельной ориентации оси молекулы относительно лазерной поляризации

мой ионизации по причинам, уже отмеченным выше. При этом для обеих геометрий частые осцилляции сопровождаются некоторой плавной модуляцией распределения. Таким образом, можно было бы предположить, что наблюдаемые немонотонности в угловых распределениях электрона обусловлены процессом рассеяния (перерассеяния) на родительском молекулярном ионе, характеризующимся двуцентровым потенциалом.

3.2. Борновское приближение для рассеяния электронного волнового пакета на молекулярном ионе

Поскольку в нашем случае, как уже отмечалось, перерассеяние электрона на родительском ионе происходит в отсутствие лазерного воздействия, анализ возникающих угловых распределений в простейшем случае может быть проведен в борновском приближении для упругого рассеяния [21]. Если первоначально до рассеяния состояние электрона характеризуется состоянием с определенным импульсом $p_0 = \hbar k$, то можно показать, что в случае двуцентрового потенциала с расстоянием R между центрами дифференциальное сечение рассеяния оказывается пропорциональным следующим выражениям соответственно для перпендикулярной и параллельной геометрий:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \propto |f(\theta)|^2 \cos^2 \left(\frac{kR}{2} \sin \theta \right), \quad (13a)$$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \propto |f(\theta)|^2 \cos^2 \left(\frac{kR}{2} (1 - \cos \theta) \right), \quad (13б)$$

где $f(\theta)$ — амплитуда рассеяния на одном центре, θ — угол рассеяния. Углы рассеяния, соответствующие минимумам в дифференциальном сечении, а следовательно, и в вероятности рассеяния, удовлетворяют условиям (1а), (1б) в предположении плавной зависимости амплитуды f от угла θ .

Аппроксимация результатов численных расчетов аналитическими зависимостями (13а), (13б) (в предположении $f(\theta) \approx \text{const}$) представлена на рис. 3 (кривые 2). При этом величина k была выбрана исходя из предположения, что энергия электрона равна пондеромоторной энергии. Сравнение теоретических и численных данных свидетельствует о невозможности корректного описания частых немонотонностей, полученных в расчетах, с помощью указанных выше формул. Выбор существенно больших значений энергии электрона, а значит и k , в формулах (13а), (13б) безоснователен, поскольку энергия порядка U_p фактически является границей энергетического спектра электрона (см. рис. 2б). Уменьшение величины k приведет к еще большему прорежению минимумов и увеличению наблюдаемых отличий от расчетных данных. Таким образом, традици-

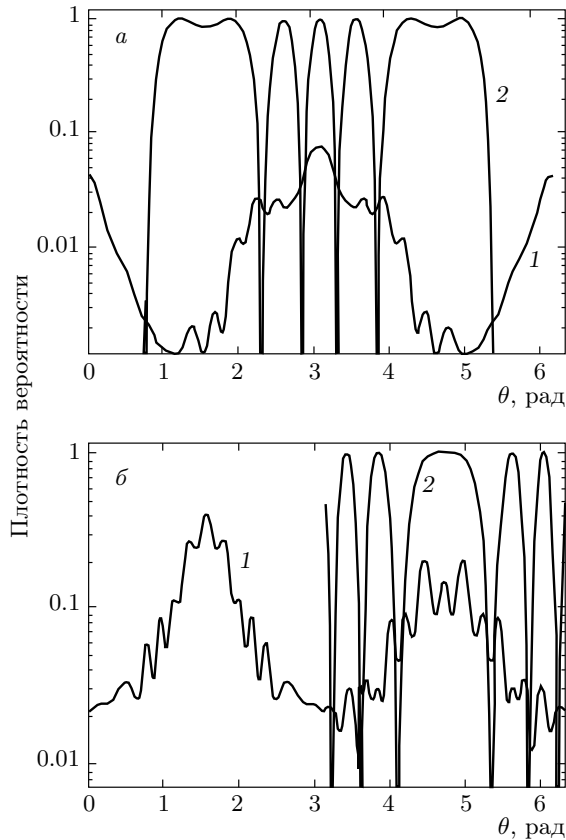


Рис. 3. Плотности вероятности углового распределения электронов в континууме, полученные в прямых численных расчетах ионизации молекулы однокцикловым импульсом (кривые 1) и в модели дифракции на двуцентровом молекулярном потенциале, формула (13), (кривые 2) для перпендикулярной (а) и параллельной (б) ориентаций молекулярной оси относительно лазерной поляризации

онный результат первого борновского приближения, обобщенный на случай двуцентрового потенциала, не позволяет корректно аппроксимировать полученные данные, и причина возникновения «дифракционной картины» с часто чередующимися максимумами и минимумами остается неясной.

В случае ионизации ультракоротким лазерным импульсом электронный волновой пакет в континууме существенным образом отличается от плоской волны и может характеризоваться достаточно широким импульсным распределением. В первом порядке теории возмущений по взаимодействию амплитуда упругого рассеяния электрона в состоянии с конечным импульсом p и углом θ (в двумерной геометрии) определяется следующим выражением:

$$C_p^{(1)} = -2\pi i m \int \langle \psi_p | V | \psi_{p'} \rangle C_{p'}^{(0)}(p', \theta') \Big|_{|p'|=|p|} d\theta'. \quad (14)$$

Здесь матричный элемент двуцентрового потенциала V вычисляется по состояниям с точно определенными импульсами $\mathbf{p} = \{p, \theta\}$ и $\mathbf{p}' = \{p', \theta'\}$, а $C_{p'}^{(0)}(p', \theta')$ — начальное импульсное распределение электрона в континууме до рассеяния. Однако угловые распределения электрона в результате рассеяния, полученные с помощью формулы (14), оказываются сильно сглаженными за счет усреднения по начальному электронному волновому пакету [25], аналогично эффекту исчезновения дифракционной картины в случае сильно немонахроматического излучения и не объясняют резких немонотонных угловых зависимостей, полученных в численном решении.

Отметим, что широкое начальное импульсное распределение электрона в континууме не только приводит к необходимости усреднения по этому распределению, но и открывает возможности для ряда интерференционных эффектов при описании процесса рассеяния, не имеющих места в случае начального электронного состояния в виде плоской волны. Действительно, задача рассеяния волнового пакета является существенно нестационарной. При этом в случае широких (в импульсном представлении) электронных волновых пакетов не представляется возможным отделить падающий электронный волновой пакет от рассеянного. В этих условиях полная вероятность вылета электрона под углом θ для двумерной геометрии может быть записана в виде

$$W^{tot}(\theta) \propto \int p dp \left| C_p^{(0)}(p, \theta) + C_p^{(1)}(p, \theta) \right|^2 = \int p dp \left\{ \left| C_p^{(0)} \right|^2 + \left| C_p^{(1)} \right|^2 + 2 \operatorname{Re} \left[C_p^{(0)*} C_p^{(1)} \right] \right\}, \quad (15)$$

где $C_p^{(1)}(p, \theta)$ дается выражением (14), а $C_p^{(0)}(p, \theta)$ — начальное двумерное импульсное распределение электрона до рассеяния. Согласно (15) угловая диаграмма вылета электрона после рассеяния определяется начальным угловым распределением $\left| C_p^{(0)}(\theta) \right|^2$, вероятностью рассеяния на угол θ $\left| C_p^{(1)}(\theta) \right|^2$ с учетом усреднения по начальному пакету (14) (которая в рамках теории возмущений представляет собой малую добавку) и интерференционным слагаемым. Физический смысл интерференционного члена заключается в интерференции падающей и рассеянной частей электронного волнового пакета. При

этом за счет широкого начального распределения электронов, в первую очередь по углам (обусловленного, в конечном счете, процессом ионизации), в направлении θ распространяются как падающая волна, имеющая данное направление изначально, так и волна, получившая данное направление в результате процесса рассеяния, что и приводит к возможности их интерференции. Указанная интерференция имеет принципиальное значение и играет определяющую роль в формировании угловых диаграмм вылета электронов в результате рассеяния. Отметим также, что в рамках аппарата теории возмущений интерференционное слагаемое в выражении (15) превалирует над вероятностью рассеяния, определяемой $|C_p^{(1)}|^2$, поскольку пропорционально только первой степени параметра малости. Кроме того, указанная интерференция является неотъемлемой особенностью рассеяния именно волновых пакетов, оказывается существенной в интервале углов, отвечающем начальному электронному распределению, и тождественно равна нулю в случае, когда начальное состояние электрона является плоской волной. Поскольку интерференционный член в общем случае является знакопеременным, его наличие может привести к заметным немонотонностям в общем угловом распределении электронов, возникающем в процессе рассеяния.

Отметим, что задача нестационарного рассеяния электронных волновых пакетов на потенциальных мишенях рассматривалась в работах [26, 27], в том числе в приближении отсутствия распыливания пакетов [27]. Однако в отмеченных работах проводилась процедура усреднения конечных результатов по ансамблю случайно распределенных рассеивающих центров, что привело к потере когерентности в процессе рассеяния и исчезновению соответствующих интерференционных эффектов. В случае ионизации квантовой системы и последующего «перерасеяния» специфика процесса как раз и заключается в том, что рассеяние происходит на своем родительском ионе с сохранением когерентности, а невозможность отделить друг от друга падающий и рассеянный волновые пакеты приводит к проявлению их интерференции в конечных угловых и импульсных распределениях электрона. При этом усреднение как по случайному распределению рассеивающих ионов, так и по начальному положению электронного волнового пакета, нивелирующее отмеченную интерференцию, оказывается физически неправомерным и в результате интерференционные компоненты в элек-

тронной плотности вероятности не исчезают.

Для анализа роли упомянутых выше интерференционных эффектов интерференционное слагаемое, входящее в формулу (15), было вычислено в предположении гауссового пространственного начального волнового пакета электрона, характеризующегося начальным средним импульсом p_0 и координатой r_0 на оси вдоль направления лазерной поляризации:

$$\psi_0(\mathbf{r}) = \frac{1}{b\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)^2}{2b^2}\right) \times \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathbf{p}_0 \cdot \mathbf{r}\right), \quad (16)$$

где b — характерная ширина волнового пакета, которая определяется процессом ионизации и может принимать значения порядка нескольких ангстрем. В импульсном представлении такой волновой пакет соответствует суперпозиции плоских волн:

$$\psi_0(\mathbf{r}) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int C_p^{(0)} \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathbf{p} \cdot \mathbf{r}\right) d^2p, \quad (17)$$

с начальными амплитудами вероятности, также приводящими к гауссовому распределению:

$$C_p^{(0)}(\mathbf{p}) = \frac{b}{\hbar\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{b^2}{\hbar^2}(\mathbf{p} - \mathbf{p}_0)^2\right) \times \exp\left(\frac{i}{\hbar}(\mathbf{p}_0 - \mathbf{p}) \cdot \mathbf{r}_0\right). \quad (18)$$

С учетом возможных малых значений параметра b характерная ширина начального углового распределения оказывается порядка радиана и более.

С учетом соотношения (18) интерференционное слагаемое для параллельной геометрии в случае двухцентрового потенциала

$$V_{mol}(x, y, R) = U_{nuc}(x, y + R/2) + U_{nuc}(x, y - R/2) \quad (19)$$

с одноцентровым взаимодействием

$$U_{nuc}(x, y) = -\frac{e^2 \exp(-\rho/\alpha)}{\rho} \quad (20)$$

принимает вид

$$\begin{aligned}
J_{int}^{parallel}(\theta) &= \frac{2\pi e^2 m}{\hbar} \left(\frac{b}{\sqrt{\pi}} \right)^2 \times \\
&\times \int dk \exp(-b^2(k^2 + k_0^2)) \exp(b^2 k_0 k \cos \theta) \times \\
&\times \int_0^{2\pi} d\tilde{\theta} \frac{\cos \left[\frac{kR}{2} (\sin \theta - \sin \tilde{\theta}) \right]}{\sqrt{\frac{1}{\alpha^2} + 4k^2 \sin^2 \frac{\theta - \tilde{\theta}}{2}}} \times \\
&\times \sin \left[k r_0 (\cos \theta - \cos \tilde{\theta}) \right] \exp(b^2 k_0 k \cos \tilde{\theta}), \quad (21)
\end{aligned}$$

где $k = p/\hbar$, $k_0 = p_0/\hbar$, а предел больших значений параметра α в формуле (20) соответствует кулоновскому взаимодействию электрона с потенциальными центрами.

На рис. 4 в линейном масштабе представлено сравнение углового распределения для перерассеивающегося электрона, полученное при численном расчете, и угловая зависимость интерференционного слагаемого (21) для тех же условий. При этом k_0 соответствует средней энергии электронного волнового пакета, оцененного из данных рис. 2 для канала перерассеяния, а начальное положение пакета r_0 было выбрано порядка амплитуды колебаний свободного электрона в поле волны при использованных в расчете лазерных параметрах. Из сравнения данных видно, что интерференционное слагаемое (21) прекрасно описывает положение нескольких первых максимумов и минимумов реального распределения,

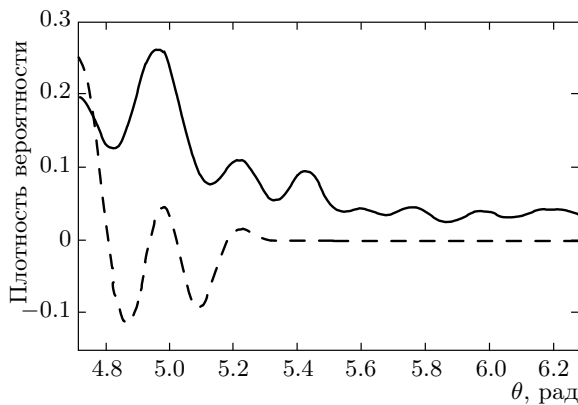


Рис. 4. Плотность вероятности углового распределения электронов в континууме (половина симметричного распределения), полученная в прямых численных расчетах ионизации молекулы одноцикловым лазерным импульсом интенсивностью $6 \cdot 10^{14}$ Вт/см² (сплошная кривая), и угловая зависимость, обусловленная интерференционным слагаемым (выражение (21), штриховая кривая) для случая параллельной ориентации оси молекулы

полученного при численном интегрировании задачи. Этот факт убедительно доказывает, что возникновение частых осцилляций в угловом распределении перерассеянного электрона обусловлено эффектами интерференции падающих и рассеянных волн в электронном волновом пакете. Таким образом, именно описанные выше интерференционные эффекты, а не двуцентровая природа потенциала взаимодействия электрона с остаточным молекулярным ионом являются причиной «дифракционных» немонотонностей, наблюдаемых в угловых распределениях.

3.3. Ионизация атомных систем ультракоротким лазерным импульсом и перерассеяние на атомном остатке

С учетом сказанного можно ожидать, что в случае ионизации атомов и перерассеяния электрона на родительском одноатомном ионе также будут проявляться упомянутые выше интерференционные эффекты и приводить к немонотонностям в угловых распределениях. На рис. 5а представлена угловая диаграмма вылета электронов, полученная при ионизации «плоского» (двумерного) атома водорода одноцикловым лазерным импульсом. В таком импульсе опять имеет место пространственное (вверх и вниз в данных обозначениях) разделение каналов прямой ионизации и перерассеяния, происходящего преимущественно по окончании лазерного воздействия. Как видно из рис. 5, угловое распределение электронов при прямой ионизации представляет собой достаточно широкий одиночный пик в направлении $\pi/2$, в то время как в канале перерассеяния угловая диаграмма характеризуется целым набором пиков с главным максимумом в противоположном $3\pi/2$ (или $-\pi/2$) направлении в отличие от результата первого борновского приближения для рассеяния плоской волны на одноцентровом потенциале. При этом какие-либо более плавные (низкочастотные) модуляции отсутствуют в отличие от случая перерассеяния на двуцентровом молекулярном ионе (ср. с рис. 3). На рис. 5б представлена часть распределения, соответствующая каналу перерассеяния на атомном ионе (в линейном масштабе) в сравнении с полным угловым распределением, полученным в аналитическом подходе по формуле (15) с учетом интерференционного слагаемого (21), вычисленного для межъядерного расстояния $R = 0$. Как видно, положение первых максимумов теоретической аппроксимации хорошо соответствует максимумам, полученным в численных расчетах. Таким образом, убедительно показано, что угловое распределение элект-

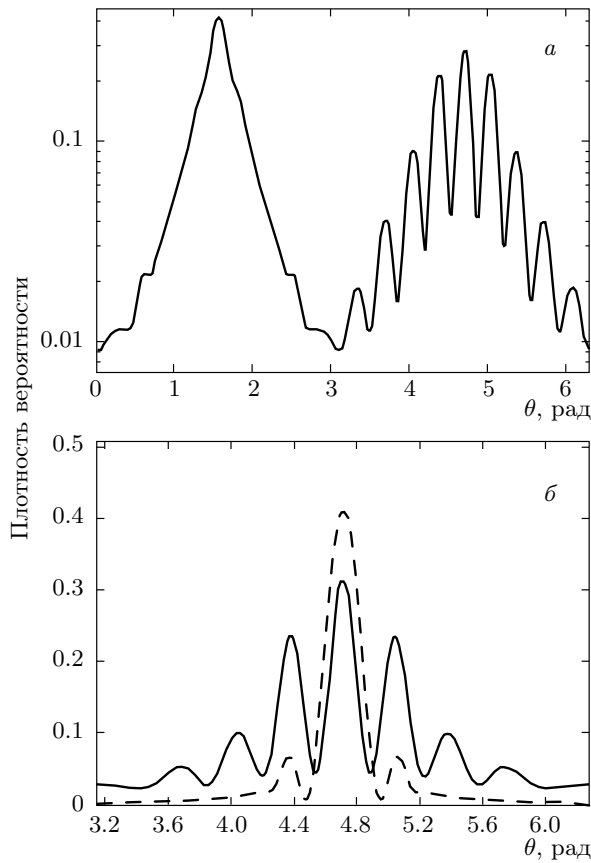


Рис. 5. а) Плотность вероятности углового распределения электронов в континууме, полученная в прямых численных расчетах ионизации двумерного атома одноцикловым импульсом интенсивностью $6 \cdot 10^{14}$ Вт/см². б) Сравнение тех же численных данных для канала перерасеяния (сплошная кривая) с угловым распределением, вычисленным в аналитической модели по формуле (15) с учетом интерференционных эффектов (пунктирная кривая) в линейном масштабе

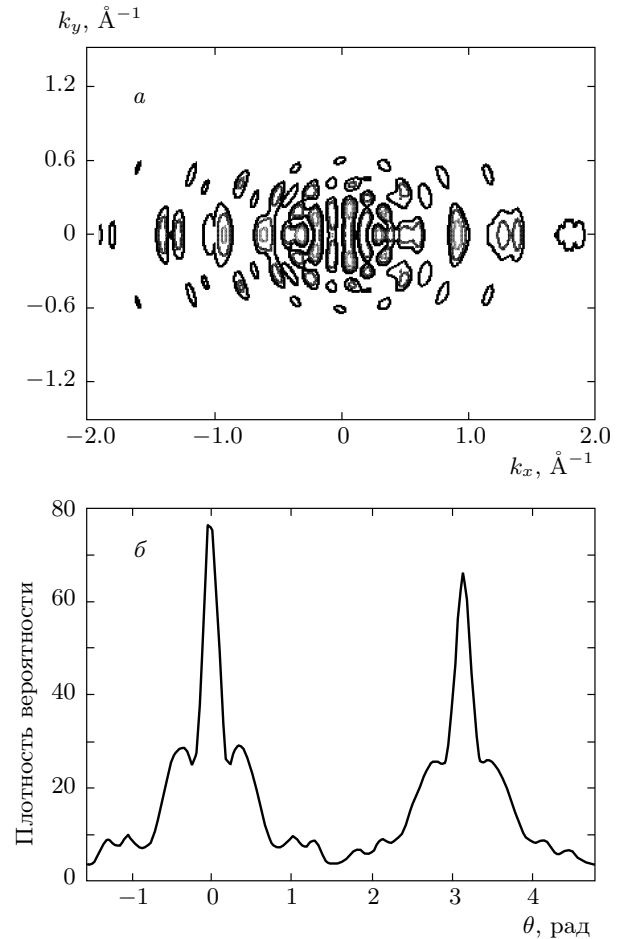


Рис. 6. Двумерное импульсное распределение (а) и плотность вероятности углового вылета электронов (б), полученные в прямых численных расчетах ионизации двумерного атома лазерным импульсом длительностью четыре оптических цикла и интенсивностью $1.5 \cdot 10^{14}$ Вт/см²

трона, перерасеянного как на молекулярном ионе, так и на атомном остатке, характеризуется сильно немонотонной зависимостью. Природа наблюдаемых немонотонностей обусловлена отнюдь не «дифракцией» на двуцентральной структуре, а является следствием интерференции рассеянной и нерассеянной частей электронного волнового пакета в континууме в направлении θ . При этом отмеченный эффект интерференции в области углов, соответствующих исходному распределению электронов, оказывается доминирующим по сравнению с результатом только рассеяния (в общепринятом понимании), что означает превалирование интерференционного сла-

гаемого в (15) над $|C_p^{(1)}|^2$. Кроме того, структура интерференционных максимумов и минимумов, возникающих в угловых распределениях электронов в процессе перерасеяния, в первую очередь определяется параметрами электронного волнового пакета, что открывает возможности для извлечения информации о характеристиках электрона в континууме и реконструкции электронного волнового пакета с высоким пространственным и временным разрешением.

Заметим, что все представленные выше результаты получены для случая предельно короткого одноциклового лазерного импульса. Для анализа динамики ионизации и перерасеяния в более длинных импульсах на рис. 6 представлены аналогичные дан-

ные, соответствующие более длительному лазерному воздействию. В этих условиях уже не представляется возможным разделить каким-либо образом каналы прямой ионизации и непосредственно перерасcеяния. Полученные двумерные импульсные распределения характеризуются достаточно высокой степенью симметрии динамики вдоль направления лазерной поляризации, что обусловлено большей длительностью лазерного импульса. Однако, аналогично каналу перерасcеяния при одноцикловом воздействии, угловое и импульсное распределения электронов, представленные на рис. 6, характеризуются преимущественным вылетом электронов вдоль определенных направлений и подавлением вылета в других направлениях. Угловое распределение (рис. 6б) представляет собой набор чередующихся максимумов и минимумов, имеющих природу интерференционных эффектов, описанных выше. Таким образом, интерференция различных частей электронного волнового пакета в процессе перерасcеяния играет определяющую роль в динамике ионизации атомно-молекулярных систем как в предельно коротких лазерных импульсах, так и в случае более длительного лазерного воздействия.

3.4. Рассеяние заданного электронного волнового пакета на молекулярном ионе

Для дополнительного доказательства интерференционной природы немоноктонностей, возникающих в угловых распределениях электрона, был проведен специальный цикл расчетов по рассеянию изначально заданного электронного волнового пакета в виде (16) на двуцентровом молекулярном потенциале в отсутствие лазерного поля. Такая постановка задачи фактически позволяет рассмотреть непосредственно стадию перерасcеяния электронного волнового пакета на молекулярном родительском ионе без учета лазерного воздействия. Удобной является возможность варьировать параметры налетающего электронного пакета в широких пределах как по энергии, так и по пространственному распределению.

На рис. 7а (сплошная кривая) представлено угловое распределение, возникающее при рассеянии пространственно узкого гауссового электронного волнового пакета на двуцентровом молекулярном потенциале с межъядерным расстоянием $R = 4.8 \text{ \AA}$. В этом случае в распределении опять имеют место часто чередующиеся максимумы и минимумы и представленная плотность вероятности оказывается очень похожей на угловое распределение элек-

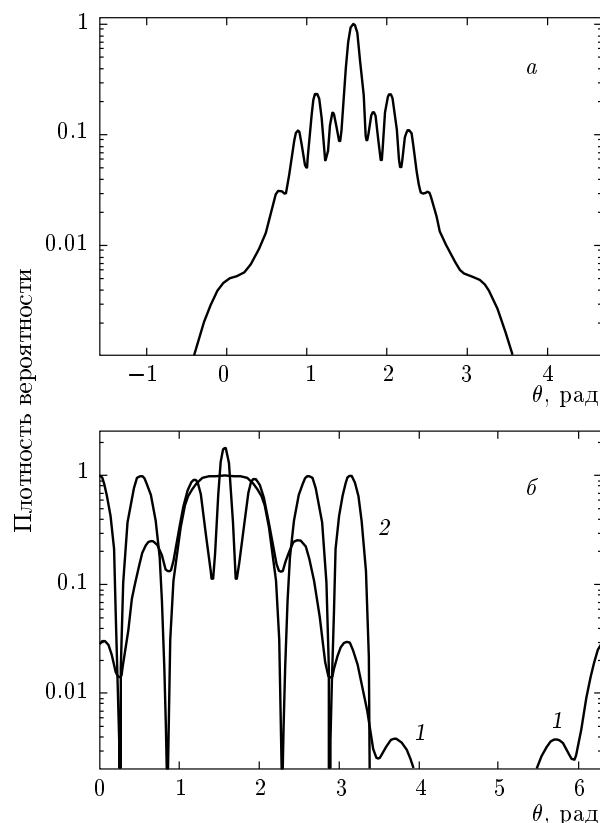


Рис. 7. Плотность вероятности углового распределения электронов, полученная при прямых численных расчетах процесса рассеяния электронного волнового пакета со средней энергией 15 эВ, начальной координатой $r_0 = 20 \text{ \AA}$ и характерной начальной шириной $b = 1.5$ (а), 5 (б) \AA на молекулярном ионе с межъядерным расстоянием $R = 4.8 \text{ \AA}$ для случая параллельной ориентации молекулярной оси относительно лазерной поляризации. Кривая 2 на рис. 7б соответствует формуле (136) в предположении слабой зависимости амплитуды рассеяния от угла θ

тронов, полученное в случае ионизации молекулярной системы (ср. с рис. 3). С учетом заданной изначально средней энергии пакета происхождение обнаруженных немоноктонностей невозможно объяснить, исходя из выражения (136), характеризующего рассеяние плоской волны на двуцентровом потенциале. Именно малая начальная пространственная ширина электронного волнового пакета, а значит, широкое импульсное распределение электронов приводит к возникновению немоноктонностей, обусловленных эффектом интерференции различных частей электронного волнового пакета друг с другом в процессе рассеяния. Различная высота пиков в распределе-

нии, приведенном на рис. 7а, может быть объяснена исходя из более плавной модуляции в соответствии с зависимостью (13б). Таким образом, в данном случае именно эффект интерференции различных волн, входящих в состав электронного волнового пакета, играет определяющую роль в формировании возникающих распределений.

Отметим, что возникновение интерференционных структур в угловых распределениях при рассеянии можно легко понять в терминах интерференции вкладов различных сферических гармоник, входящих в исходный электронный волновой пакет. Действительно, в процессе рассеяния на одноцентровом потенциале изменяются фазы амплитуд вероятностей для каждой гармоники, а вероятностные вклады остаются прежними (из-за сферической симметрии энергии взаимодействия с потенциальным центром). Поскольку суммарное распределение определяется квадратом модуля суммы всех гармоник, что включает интерференцию различных гармоник друг с другом, изменение фазовых соотношений приводит к появлению сильной немонотонности суммарного углового распределения.

В случае рассеяния на двуцентровом молекулярном потенциале картина оказывается еще более сложной. Отсутствие сферической симметрии рассеивающего потенциала приводит к взаимосвязи различных гармоник друг с другом в процессе рассеяния, что может вызвать появление новых гармоник в рассеянном волновом пакете по сравнению с начальной суперпозицией и, в конечном счете, привести к более богатому угловому распределению.

В случае же рассеяния волнового пакета с той же средней энергией, но изначально гораздо более широкого, фактически близкого к плоской волне, немонотонности, возникающие в угловом распределении, оказываются менее частыми (рис. 7б, кривая 1). В этом случае положения минимумов хорошо согласуются с минимумами выражения (13б) (рис. 7б, кривая 2), за исключением узкого интервала углов в окрестности главного максимума при $\theta = \pi/2$. Фактически имеется только один «паразитный» минимум, не согласующийся с положением дифракционных минимумов, определяемых выражением (13б). Указанный узкий интервал малых углов как раз соответствует малой угловой ширине начального пространственно широкого электронного волнового пакета, внутри которой оказываются существенными обсуждаемые выше интерференционные эффекты. Таким образом, в зависимости от параметров электронного волнового пакета интерференционные эффекты проявляются на угловых интервалах тем бо-

лее широких, чем шире исходное угловое электронное распределение.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе методом прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера исследуется процесс ионизации атомно-молекулярных систем интенсивным ультракоротким лазерным импульсом. Показано, что угловые диаграммы вылета электронов характеризуются резко немонотонной угловой зависимостью с появлением направлений преимущественного вылета электронов. Обнаруженные эффекты не обусловлены двухъямным характером потенциала молекулярного иона, поскольку аналогичная структура угловых распределений имеет место и в случае ионизации атомных систем. Обнаружено, что принципиальное значение для возникновения указанных немонотонностей имеет формирование в континууме в процессе ионизации именно волнового электронного пакета, который затем перерассеивается на родительском ионе. Продемонстрировано, что параметры электронного волнового пакета, образующегося в континууме, оказываются крайне существенными для дальнейшей динамики электронно-ядерного взаимодействия и перерассеяния на родительском ионе. Поскольку возникающий в континууме в процессе ионизации ультракоротким импульсом электрон характеризуется широким импульсным распределением как по модулю, так и по направлению, имеет место интерференция различных частей такого электронного волнового пакета при его рассеянии на атомном или молекулярном остатке. Принципиальное значение имеет широкий разброс по направлению импульса в исходном волновом пакете, что определяет характерный интервал углов, в котором интерференционные эффекты будут хорошо проявлены. Указанный диапазон углов определяется, в конечном счете, отношением неопределенности поперечного импульса Δp_{\perp} к характерной величине импульса в направлении лазерной поляризации и может быть порядка единицы, поскольку неопределенность поперечного импульса определяется характерным размером области локализации волновой функции связанного состояния $\Delta p_{\perp} \sim \hbar/b$, что может соответствовать разбросу по энергии вплоть до десятка электронвольт. Таким образом, обнаружено, что указанные интерференционные эффекты играют определяющую роль в формировании угловых и двумерных импульсных рас-

пределений, характеризующих электрон в процессе ионизации квантовой системы лазерным импульсом.

Аналогичные интерференционные эффекты проявляются как в электронных спектрах надпороговой ионизации, так и в спектрах гармоник высокого порядка. При этом предпринятая в работах [12, 13] попытка объяснить возникающие немонотонности в рамках дифракции электрона в состоянии плоской волны на двуцентровом потенциале родительского молекулярного иона приводит к выводу о необходимости введения поправок к энергии электрона. На самом деле, именно наличие в континууме электронного волнового пакета и возможность интерференции отдельных его частей друг с другом оказывается ответственным за проявляющиеся особенности в электронных распределениях.

Как уже отмечалось в работе [10], указанные интерференционные эффекты являются паразитными с точки зрения мониторинга динамики молекулы с высоким пространственным и временным разрешением, однако возникающие интерференционные структуры содержат информацию о параметрах электронного волнового пакета в континууме, что открывает возможность решения задачи о реконструкции возникающего при ионизации электронного волнового пакета с высоким разрешением.

Авторы благодарят М. В. Федорова за полезные обсуждения и ценные замечания.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 09-02-00317), гранта Президента РФ НШ № 133.2008.2, Фонда содействия отечественной науки (программа поддержки лучших студенческих НИР в области ядерной энергетики) и некоммерческого фонда «Династия» (программа поддержки студентов-физиков и молодых докторов наук).

ЛИТЕРАТУРА

1. P. Agostini and L. F. DiMauro, Rep. Prog. Phys. **67**, 813 (2004).
2. A. Scrinzi, M. Yu. Ivanov, R. Kienberger, and D. M. Villeneuve, J. Phys. B **39**, R1 (2006).
3. M. Lein, J. Phys. B **40**, R135 (2007).
4. H. Niikura, F. Legare, R. Hasbani et al., Nature **417**, 917 (2002).
5. H. Niikura, F. Legare, R. Hasbani et al., Nature **421**, 826 (2003).
6. B. Feuerstein and U. Thumm, Phys. Rev. A **67**, 063408 (2003).
7. Th. Ergler, A. Rudenko, B. Feuerstein et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 093001 (2005).
8. A. Rudenko, K. Zrost, Th. Ergler et al., J. Phys. B **38**, L191 (2005).
9. S. X. Hu and L. A. Collins, Phys. Rev. Lett. **94**, 073004 (2005).
10. M. Spanner, O. Smirnova, P. B. Corkum et al., J. Phys. B **37**, L243 (2004).
11. S. N. Yurchenko, S. Patchkovskii, I. V. Litvinyuk et al., Phys. Rev. Lett. **93**, 223003 (2004).
12. M. Lein, J. P. Marangos, and P. L. Knight, Phys. Rev. A **66**, 051404(R) (2002).
13. M. Lein, N. Hay, R. Velotta et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 183903 (2002).
14. M. Lein, N. Hay, R. Velotta et al., Phys. Rev. A **66**, 023805 (2002).
15. I. A. Gonoskov, M. Yu. Ryabikin, and A. M. Sergeev, J. Phys. B **39**, S445 (2006).
16. P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
17. T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai, Nature **435**, 470 (2005).
18. C. Vozzi, F. Calegari, J. P. Ganmes et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 153902 (2005).
19. A. D. Bandrauk and H. Z. Lu, Phys. Rev. A **68**, 043408 (2003).
20. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, J. Mod. Opt. **54**, 1087 (2007).
21. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Наука, Москва (1974).
22. Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова, ЖЭТФ **124**, 781 (2003).
23. Р. Галлахер, *Метод конечных элементов*, Мир, Москва (1984).
24. Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова, ЖЭТФ **114**, 1618 (1998).
25. I. A. Burenkov and O. V. Tikhonova, Proc. SPIE **6726**, 67261C (2007).
26. D. R. Bitouk and M. V. Fedorov, Phys. Rev. A **58**, 1195 (1998).
27. M. A. Efremov and M. V. Fedorov, Phys. Rev. A **65**, 052725 (2002).