

АТТОСЕКУНДНАЯ ДИНАМИКА ФОТОВОЗБУЖДЕНИЯ АТОМА ВОДОРОДА УЛЬТРАКОРОТКИМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

*В. А. Астапенко**

*Московский физико-технический институт (Национальный исследовательский университет)
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 11 июля 2019 г.,
после переработки 25 июля 2019 г.
Принята к публикации 29 июля 2019 г.

В рамках теории возмущений проанализирована динамика фотовозбуждения атома водорода в дискретном и непрерывном спектрах под действием лазерных импульсов в аттосекундном диапазоне времени и длительностей импульсов. Показано, что на временах меньших и порядка длительности импульса зависимость вероятности фотовозбуждения от времени имеет, вообще говоря, осциллирующий характер. Установлено, что при определенных значениях параметров огибающая указанной зависимости имеет максимум, положение которого определяется длительностью и несущей частотой импульса.

DOI: 10.31857/S0044451020010071

1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие технологии генерации ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) с заданными параметрами (несущей частотой, длительностью, амплитудой и фазой) [1] делает актуальным анализ закономерностей фотопроцессов на аттосекундной временной шкале [2]. Действительно, в последнее время получены импульсы в мягком рентгеновском диапазоне с длительностью 43 ас [3], что менее чем в два раза превышает атомную единицу времени (24 ас). Взаимодействие столь коротких импульсов с веществом имеет свои специфические черты, отсутствующие в случае длинных импульсов: такие как, например, нелинейная зависимость вероятности фотопроцесса от длительности импульса. Эта нелинейность, включающая в себя возможное появление максимумов и минимумов, проявляется уже для относительно слабых полей при описании в рамках первого порядка теории возмущений [4–7].

Развитие аттосекундной физики предполагает также исследование динамики фотопроцесса в реальном времени. Эксперименты по наблюдению аттосекундной динамики формирования резонанса

Фано при поглощении УКИ атомом гелия были выполнены в работах [8, 9].

Зависимости вероятности фотоионизации атома водорода chirпированным УКИ гауссовой формы от времени и параметров импульса рассчитывались в статье [10] путем прямого интегрирования уравнения Шредингера. Отметим, что длительность данных вычислений с использованием базиса с хорошей сходимостью занимает несколько дней [11].

Настоящая работа посвящена теоретическому исследованию аттосекундной динамики возбуждения атома водорода в дискретном и непрерывном спектрах с использованием простого выражения для вероятности фотопроцесса, полученного в рамках теории возмущений, которое позволяет проводить вычисления в течение нескольких минут.

2. ОСНОВНЫЕ ФОРМУЛЫ

В рамках теории возмущений в дипольном приближении можно получить следующее выражение для «мгновенной» в момент времени t вероятности возбуждения атома (иона, молекулы, наночастицы) под действием электромагнитного импульса (см. Приложение):

$$W(t) = \frac{c}{4\pi^2} \int_0^\infty d\omega \frac{\sigma(\omega)}{\hbar\omega} \left| \int_{-\infty}^t dt' \exp(i\omega t') E(t') \right|^2, \quad (1)$$

* E-mail: astval@mail.ru

где $\sigma(\omega)$ — сечение фотовозбуждения мишени, $E(t)$ — временная зависимость напряженности электрического поля в импульсе. Таким образом, вероятность фотовозбуждения в заданный момент времени выражается через спектральное сечение фотовозбуждения и квадрат модуля «неполного» фурье-образа напряженности электрического поля в импульсе.

Очевидно, что в пределе $t \rightarrow \infty$ формула (1) совпадает с выражением для полной вероятности фотопроцесса за все время действия импульса, полученным в статье [12].

Рассмотрим сначала фотовозбуждение связанно-связанного перехода в атоме. Используя выражение для сечения радиационного перехода в дискретном спектре, из формулы (1) имеем

$$W_{21}(t) = \frac{e^2 f_{21}}{2m\hbar} \int_0^\infty d\omega \frac{G_{21}(\omega)}{\omega} D(t, \omega), \quad (2)$$

где e — элементарный заряд, m — масса электрона, f_{21} — сила осциллятора, $G_{21}(\omega)$ — спектральная форма линии возбуждаемого перехода,

$$D(t, \omega) = \left| \int_{-\infty}^t dt' \exp(i\omega t') E(t') \right|^2 \quad (3)$$

— квадрат модуля «неполного фурье-образа» напряженности электрического поля в импульсе.

Для достаточно коротких импульсов, длительность которых много меньше обратной ширины спектральной линии перехода, $\tau \ll 1/\Delta\omega$, функцию $G_{21}(\omega)$ под знаком интеграла в правой части равенства (2) можно заменить на дельта-функцию $\delta(\omega - \omega_{21})$, тогда получаем

$$W_{21}(t) = \frac{e^2 f_{21}}{2m\hbar\omega_{21}} D(t, \omega_{21}). \quad (4)$$

Здесь ω_{21} — собственная частота перехода.

Таким образом, динамика возбуждения связанно-связанного перехода для достаточно коротких импульсов и узких спектральных линий определяется возбуждающим электромагнитным полем и собственной частотой перехода.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ОБСУЖДЕНИЕ

Рассмотрим возбуждение перехода $1s \rightarrow 2p$ в атоме водорода под действием скорректированно-

го гауссова импульса [13] (СГИ). Временная зависимость СГИ дается формулой

$$E(t) = \text{Re} \left[-iE_0 \frac{(1 + it/\omega_c\tau^2)^2 + 1/(\omega_c\tau)^2}{1 + 1/(\omega_c\tau)^2} \times \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2} + i\omega_c t + i\varphi\right) \right], \quad (5)$$

где ω_c — несущая частота, φ — начальная фаза, E_0 — амплитуда электрического поля в импульсе. При $\omega_c\tau \gg 1$ скорректированный гауссов импульс совпадает с обычным гауссовым. Заметим, что фурье-образ СГИ обращается в нуль на нулевой частоте в отличие от фурье-образа гауссова импульса, что важно для корректного описания взаимодействия мало- и субцикловых импульсов с веществом.

Результаты расчета динамики возбуждения перехода $1s \rightarrow 2p$ ($\omega_{21} = 0.375$ ат. ед.) под действием УКИ приведены на рис. 1 для заданных относительных отстроек несущей частоты от собственной частоты перехода: $\delta = (\omega_c - \omega_{21})/\omega_{21} = 0.05, 0.1, 0.15$ и различных длительностей импульса; $E_0 = 0.01$ ат. ед., $\varphi = 0$. Величина t вдоль оси абсцисс измеряется в атомных единицах времени (1 ат. ед. = 24 ас).

Видно, что с ростом относительной отстройки и длительности импульса максимум огибающей функции $W_{21}(t)$ становится более проявленным, а его положение сдвигается в область максимума огибающей СГИ. Кроме того, имеют место высокочастотные осцилляции вероятности, амплитуда которых максимальна вблизи максимума временной зависимости. Для времен, превышающих длительность импульса, вероятность возбуждения принимает стационарное значение.

В случае мультициклового импульса ($\omega_c\tau \gg 1$) СГИ (5) совпадает с обычным гауссовым импульсом. Тогда для огибающей функции (3) можно получить следующее выражение:

$$D_{env}(t, \omega) = \frac{\pi}{8} E_0^2 \tau^2 Dn(t/\tau, |\omega - \omega_c|\tau), \quad (6)$$

где

$$Dn(\tilde{t}, \Delta) = \exp(-\Delta^2) \left| \text{erfc}\left(-\frac{\tilde{t} + i\Delta}{\sqrt{2}}\right) \right|^2. \quad (7)$$

Здесь $\text{erfc}(z)$ — дополнительная функция ошибок, $\tilde{t} = t/\tau$ — нормированное на длительность импульса время, $\Delta = |\omega - \omega_c|\tau$ — параметр неадиабатичности. График функции (7) при различных значениях параметра Δ представлен на рис. 2.

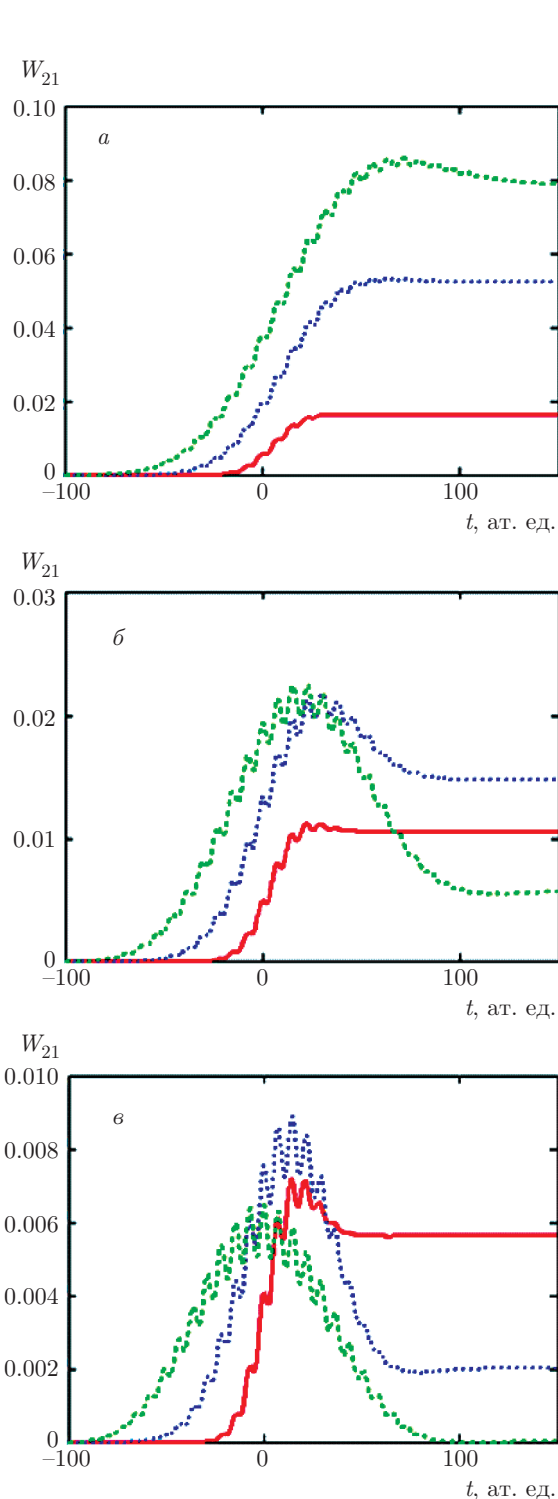


Рис. 1. (В цвете онлайн) Динамика возбуждения перехода $1s-2p$ в атоме водорода под действием СГИ различной длительности: $\tau = 16$ ат. ед. (сплошные кривые), 32 ат. ед. (пунктирные синие), 48 ат. ед. (штриховые зеленые); $\delta = 0.05$ (а), 0.1 (б), 0.15 (е), $E_0 = 0.01$ ат. ед.

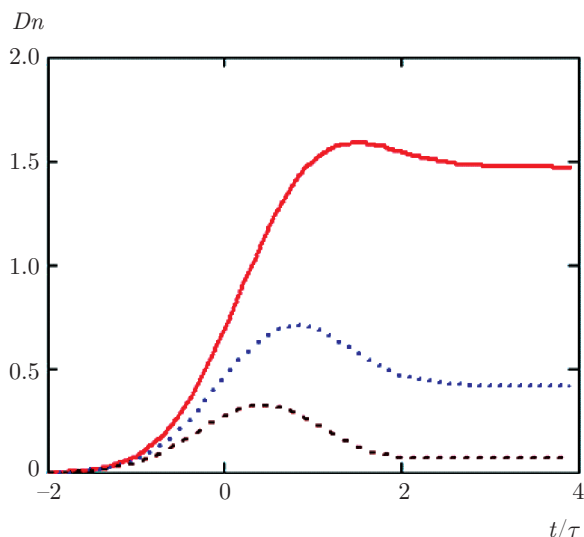


Рис. 2. (В цвете онлайн) График функции $Dn(\tilde{t} = t/\tau)$ (7) при разных значениях параметра неадиабатичности: $\Delta = 1$ (сплошная синяя кривая), 1.5 (пунктирная), 2 (штриховая коричневая)

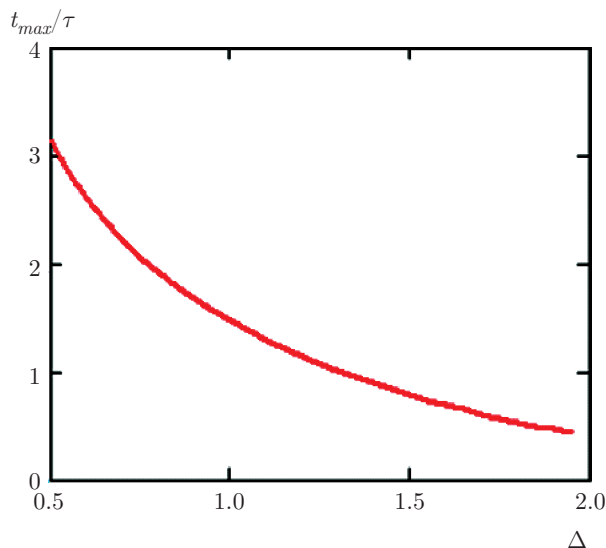


Рис. 3. Зависимость нормированного времени в максимуме функции (3) от параметра Δ

Из рис. 2 следует, что функция $Dn(\tilde{t}, \Delta)$ имеет выраженный максимум \tilde{t}_{max} при $\Delta > 1$. Данное обстоятельство демонстрируется также рис. 1: с ростом относительной отстройки несущей частоты от собственной частоты перехода (т. е. с ростом Δ) максимум вероятности возбуждения становится все более проявленным.

Зависимость $\tilde{t}_{max}(\Delta)$ представлена на рис. 3. Кривая на рис. 3 соответствует данным на рис. 1б: с ростом параметра $\Delta = |\omega - \omega_c|\tau$ максимум зависи-

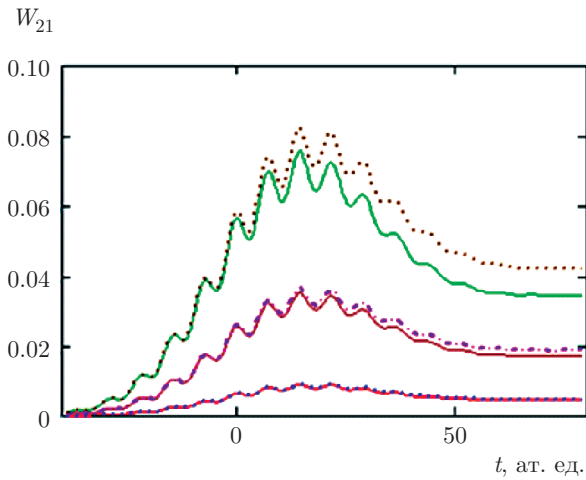


Рис. 4. (В цвете онлайн) Сравнение точного решения для вероятности возбуждения двухуровневой системы (сплошные кривые) с результатами расчетов по формулам (2)–(4) (пунктирные и штрихпунктирная): нижние кривые — $E_0 = 0.01$ ат. ед., средние кривые — $E_0 = 0.02$ ат. ед., верхние кривые — $E_0 = 0.03$ ат. ед.; $\tau = 24$ ат. ед. и $\delta = 0.15$

мости вероятности возбуждения рассматриваемого перехода от времени смещается в область меньших времен.

Очевидно, что формулы (3), (4) описывают возбуждение двухуровневой системы без затухания, для которой несложно получить точное решение с помощью, например, уравнений Блоха. В пределе малых амплитуд электрического поля в импульсе эти два подхода дают одинаковый результат, что видно из рис. 4.

Перейдем теперь к рассмотрению динамики фотоионизации атома водорода, подставив соответствующее сечение (формула Штоббе [14]) в формулу (1). Результаты расчетов представлены на рис. 5 для различных длительностей СГИ и несущих частот, больших потенциала ионизации атома.

Из рис. 5а следует, что максимум огибающей функции $W_{ph}(t)$ отсутствует в припороговой области несущих частот для рассмотренных длительностей СГИ. С ростом несущей частоты данный максимум появляется, причем для более коротких импульсов он проявлен сильнее. Из сравнения графиков на рис. 1в и рис. 5в следует, что временные зависимости вероятности аналогичны для возбуждения на связанно-связанном переходе и для фотоионизации.

На рис. 6 представлены зависимости для случая, когда несущая частота импульса меньше пороговой частоты. Видно, что тогда максимум функции $W_{ph}(t)$ проявляется при меньших отстройках несущей частоты от пороговой.

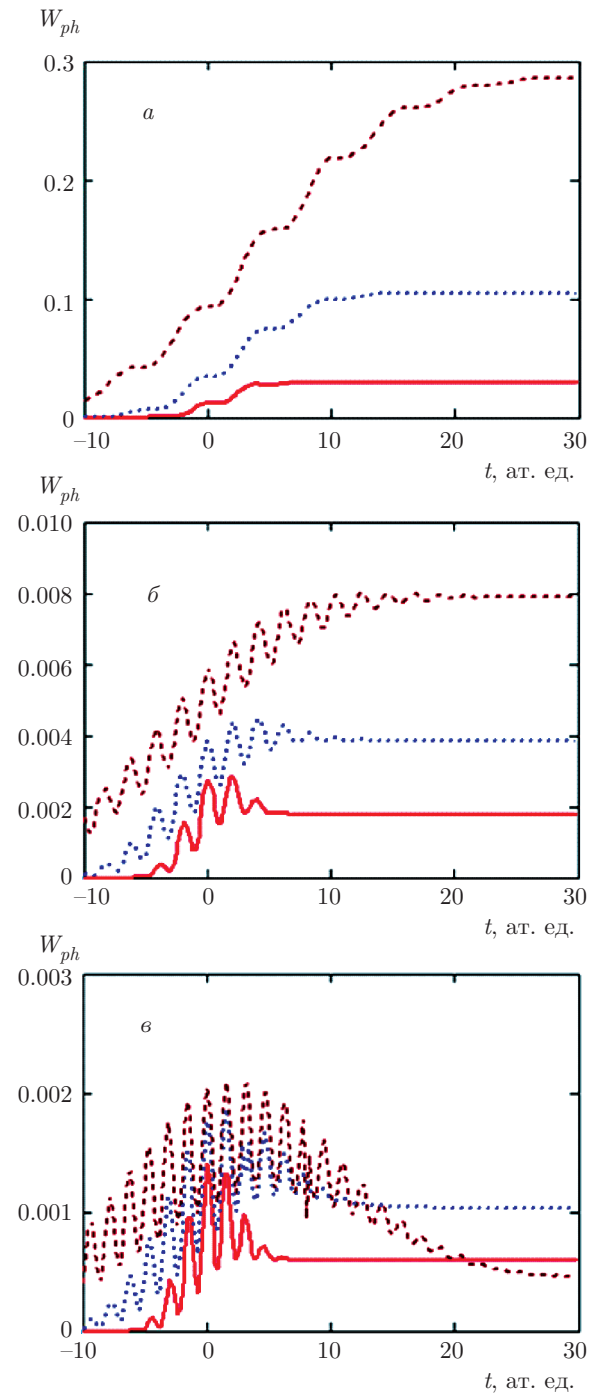


Рис. 5. (В цвете онлайн) Динамика фотоионизации атома водорода под действием СГИ различной длительности для несущих частот, больших пороговой частоты: $\tau = 3$ ат. ед. (сплошные кривые), 6 ат. ед. (пунктирные синие), 12 ат. ед. (штриховые коричневые), $\omega_c = 0.55$ (а), 1.5 (б), 2 (в) ат. ед., $E_0 = 0.1$ ат. ед.

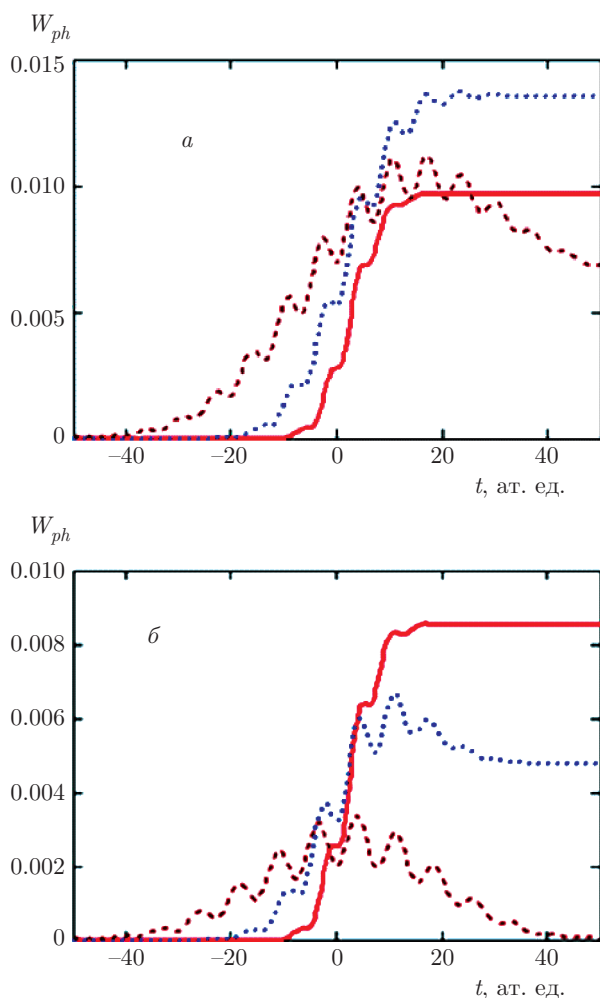


Рис. 6. (В цвете онлайн) Динамика фотоионизации атома водорода под действием СГИ различной длительности для несущих частот, меньших пороговой частоты и $E_0 = 0.03$ ат. ед.: $\tau = 6$ ат. ед. (сплошные кривые), 12 ат. ед. (пунктирные синие), 24 ат. ед. (штриховые коричневые); $\omega_c = 0.45$ (а), 0.4 (б) ат. ед.

Зависимость динамики фотоионизации атома водорода под действием СГИ от начальной фазы импульса показана на рис. 7. Видно, что на временах $t \leq \tau$ имеет место существенная зависимость вероятности фотоионизации от начальной фазы СГИ. В пределе $t \gg \tau$ фазовая зависимость исчезает при данных значениях ω_c и τ . Коэффициент фазовой модуляции вероятности фотопоглощения в пределе больших времен для СГИ определяется коэффициентом $K_\varphi = \sec h(2\omega\omega_c\tau^2)$ [15]. В рассматриваемом случае $\omega \approx 1$ ат. ед., так что K_φ порядка единицы только для субцикловых импульсов: $\omega_c\tau < 1$.

Таким образом, не проявляющаяся на больших временах зависимость вероятности фотоионизации атома от начальной фазы СГИ оказывается существ-

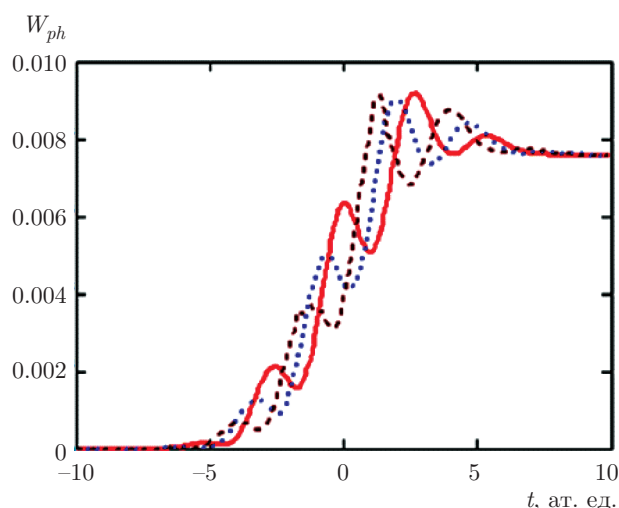


Рис. 7. (В цвете онлайн) Динамика фотоионизации атома водорода СГИ с различной начальной фазой: $\varphi = 0$ (сплошная кривая), $\pi/4$ (пунктирная синяя), $\pi/2$ (штриховая коричневая); $\omega_c = 1$ ат. ед., $\tau = 3$ ат. ед., $E_0 = 0.1$ ат. ед.

венной для $t \leq \tau$. Расчет показывает, что аналогичная ситуация имеет место с фазовой зависимостью динамики фотопоглощения на связанно-связанном переходе.

Наблюдение рассчитанной временной зависимости вероятности возбуждения атома в дискретном спектре может быть осуществлено путем регистрации временной эволюции интенсивности резонансного рассеяния на частоте, отвечающей собственной частоте возбуждаемого перехода. Для экспериментальной верификации динамики фотоионизации атома водорода под действием УКИ может быть использована регистрация временной зависимости числа фотоэлектронов методом электронной спектроскопии, как это делалось в работе [8] при исследовании резонанса Фано на атоме гелия в реальном времени.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках применимости теории возмущений рассчитана и проанализирована аттосекундная динамика возбуждения атома водорода в дискретном и непрерывном спектрах под действием СГИ аттосекундной длительности с помощью простой формулы, выражающей вероятность фотопроцесса через квадрат модуля неполного фурье-образа напряженности электрического поля в импульсе и сечение фотовозбуждения.

Показано, что временная зависимость фотовозбуждения связанно-связанного перехода носит, вообще говоря, осциллирующий характер с максимумом, положение и выраженность которого определяются длительностью импульса τ и параметром неадиабатичности Δ . При малых Δ временная зависимость фотовозбуждения $W_{21}(t)$ является монотонно возрастающей функцией с малой амплитудой колебаний. С ростом Δ возникает все более проявленный максимум, положение которого смещается в область меньших значений времени, амплитуда осцилляций возрастает, а величина $W_{12}(t_{max})$ уменьшается.

Аналогичная ситуация имеет место и для динамики фотоионизации атома водорода. Установлено, что для несущих частот, меньших пороговой, максимум вероятности фотоионизации становится проявленным при меньших отстройках несущей частоты от пороговой.

Анализ зависимости динамики фотовозбуждения от начальной фазы импульса показал, что для рассмотренных значений параметров ($\omega_c \tau > 1$) данная зависимость имеет место только для времен, меньших длительности импульса.

Полученное в данной работе простое выражение может быть использовано для вычисления временной зависимости вероятности фотовозбуждения других атомов и ионов в рамках применимости теории возмущений и дипольного приближения.

Финансирование. Работа выполнена в рамках Государственного задания Министерства науки и образования Российской Федерации (задание № 3.9890.2017/8.9).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Для вероятности фотовозбуждения в заданный момент времени под действием поля $E(t)$ (полагая, что $E(t \rightarrow \pm\infty) = 0$) в дипольном приближении и первом порядке теории возмущения имеем

$$W(t) = \frac{1}{\hbar^2} \times \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^t dt'' \langle \hat{d}(t') \hat{d}(t'') \rangle E(t') E(t''). \quad (\text{A.1})$$

Угловые скобки означают усреднение по начальному состоянию мишени.

В формуле (A.1) фигурирует коррелятор дипольных моментов (КДМ), который для стационарной системы может быть представлен в виде

$$\langle \hat{d}(t') \hat{d}(t'') \rangle = K(t', t'') = K(t'' - t'). \quad (\text{A.2})$$

Тогда

$$W(t) = \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^t dt'' K(t'' - t') E(t') E(t''). \quad (\text{A.3})$$

Переходя к фурье-образу КДМ, получаем

$$K(t'' - t') = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \exp(-i\omega(t'' - t')) K(\omega). \quad (\text{A.4})$$

Используем связь КДМ с сечением фотовозбуждения [15]:

$$K(\omega) = \frac{\hbar c}{2\pi\omega} \sigma(\omega). \quad (\text{A.5})$$

После простых преобразований

$$W(t) = \frac{c}{4\pi^2 \hbar} \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^t dt'' \int d\omega \times \exp(-i\omega(t'' - t')) \frac{\sigma(\omega)}{\omega} E(t') E(t'') \quad (\text{A.6})$$

и

$$W(t) = \frac{c}{4\pi^2} \int_0^{\infty} d\omega \frac{\sigma(\omega)}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^t dt'' \times \exp(-i\omega(t'' - t')) E(t') E(t'') \quad (\text{A.7})$$

приходим к формуле (1):

$$W(t) = \frac{c}{4\pi^2} \int_0^{\infty} d\omega \frac{\sigma(\omega)}{\hbar\omega} \times \left| \int_{-\infty}^t dt' \exp(i\omega t') E(t') \right|^2. \quad (\text{A.8})$$

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Hassan, A. Wirth, I. Grguras et al., Rev. Sci. Instrum. **83**, 111301 (2012).
2. F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009).
3. T. Gaumnitz, A. Jain, Y. Pertot et al., Opt. Express **25**, 27506 (2017).
4. A. V. Gets and V. P. Krainov, Contrib. Plasma Phys. **53**, 140 (2013).

5. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and V. S. Lisitsa, Phys. Rev. A **90**, 043421 (2014).
6. В. А. Астапенко, Н. Н. Мороз, ЖЭТФ **154**, 69 (2018).
7. В. А. Астапенко, В. С. Лисица, А. В. Яковец, ЖЭТФ **154**, 1087 (2018).
8. V. Gruson, L. Barreau, A. Jimenez-Galan et al., Science **354**, 734 (2016).
9. A. Kaldun, A. Blattermann, V. Stooß et al., Science **354**, 738 (2016).
10. V. Prasad, B. Dahiya, and K. Yamashita, Phys. Scripta **82**, 055302 (2010).
11. V. Prasad (private communication).
12. V. A. Astapenko, Phys. Lett. A **374**, 1585 (2010).
13. Q. Lin, Jian Zheng, and W. Becker, Phys. Rev. Lett. **97**, 253902 (2006).
14. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Квантовая электродинамика*, Наука, Москва (1989).
15. В. А. Астапенко, *Взаимодействие электромагнитных импульсов с классическими и квантовыми системами*, МФТИ, Москва (2013).