Письма в ЖЭТФ, том 73, вып. 1, стр. 3 – 7

Многофотонная ионизация атомов в поле ультракороткого лазерного импульса

В. С. Попов

Институт теоретической и экспериментальной физики
117218, Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 ноября 2000 г.

С помощью метода "мнимого времени" получены замкнутые аналитические выражения для вероятности многофотонной ионизации атомов и ионов под действием переменного электрического поля $\mathcal{E}(t)$, применимые для любых значений параметра Келдыша γ. Рассмотрена зависимость вероятности ионизации и импульсного спектра фотоэлектронов от формы ультракороткого лазерного импульса.

PACS: 03.65.Sq, 31.15.Gy, 32.80.Fb

Получение все более интенсивных электромагнитных полей связано с укорочением лазерного импульса [1 – 3], продолжительность которого становится уже сравнимой с оптическим периодом (см., например, [2 – 4] и литературу, цитированную в работе [4]), а спектр содержит много высших гармоник. Вследствие сильной нелинейности процесса многофотонной ионизации [5 – 7] нельзя свести его к сумме вкладов от отдельных гармоник. При этом вероятность ионизации и импульсный спектр вылетающих фотоэлектронов существенно зависят от формы импульсного поля, особенно в области $\gamma \gtrsim 1$. Выяснение этой зависимости становится необходимым для анализа экспериментальных данных.

В этой связи мы рассмотрим задачу об ионизации атомного уровня в переменном электрическом поле (пространственно-однородном и с линейной поляризацией):

$$\mathcal{E}(t') = F\ \varphi(t), \quad t = \omega t', \tag{1}$$

произвольным образом зависящем от времени t'. Здесь F – амплитудное значение поля, ω – его характерная частота, t – безразмерное время; относительно функции φ, задающей форму импульса, полагаем, что $\varphi(-t) = \varphi(t)$ и $| \varphi(t) | \leq \varphi(0) = 1$ при $-\infty < t < \infty$ ($t = 0$ – момент максимума поля, когда электрон выходит из-под барьера). Для расчетов используется квазиклассический метод мнимого времени [7, 8], дающий адекватное описание процесса туннелирования частиц через быстро колеблющиеся барьеры. При этом в рассмотрение вводятся подбарьерные траектории, формально удовлетворяющие классическим уравнениям движения (но с мнимым "временем"!). Главный (экспоненциальный) фактор в вероятности ионизации определяется так называемой экстремальной подбарьерной траекторией, на которой мнимая часть функции действия Im S достигает минимума (и которая определяет, согласно Фейнману [9, 10], наиболее вероятный путь туннелирования частицы). Для нахождения импульсного спектра вылетающих электронов нужно рассмотреть пучок "классических" траекторий, близких к экстремальной, и вычислить на них квадратичную поправку $\propto (\mathbf{p} - \mathbf{p}_{\max})^2$ к Im S (см. подробнее в [8,11]).

Предполагается выполнение условий

$$K_0 = \frac{I}{\hbar\omega} \gg 1, \quad \epsilon = \frac{e\hbar F}{(2I)^{3/2} m^{1/2}} = \frac{F}{\kappa^3 F_a} \ll 1, \tag{2}$$

обеспечивающих применимость квазиклассики к многофотонным процессам. Здесь K_0 – параметр многоквантовости, ϵ – приведенное электрическое поле, $I = \kappa^2 m e^4 / 2\hbar^2$ – потенциал ионизации, κ – (безразмерный) импульс, характерный для связанного состояния[1)]. Процесс туннелирования существенно зависит от значения параметра Келдыша [5] γ:

$$\gamma = \omega/\omega_t = \omega\sqrt{2mI}\ /eF, \tag{2'}$$

где ω_t – частота туннелирования в поле F. Далее в статье используются атомные единицы $\hbar = m = e = 1$ (m – масса электрона, $F_a = m^2 e^5/\hbar^4 = 5.14 \cdot 10^9$ В/см).

[1)] Для основных состояний нейтральных атомов параметр κ меняется в пределах от 0.535 для Cs ($I = 3.89$ эВ) до 1.344 для He, $I = 24.59$ эВ (см. [12] и табл.1 в [11]), в случае же слабо связанных состояний он может быть заметно меньше единицы. Так, для отрицательного иона водорода $I = 0.754$ эВ и $\kappa = 0.235$, для иона He$^-$ $I = 0.077$ эВ, $\kappa = 0.075$, и т.д. В этих случаях значения приведенного поля ϵ и вероятности ионизации существенно возрастают (при фиксированной величине F).

В случае поля (1) из физических соображений ясно, что экстремальная траектория одномерна и направлена вдоль поля. Решая уравнения движения и вычисляя $\mathrm{Im}\, S$, находим вероятность многофотонной ионизации (с точностью до предэкспоненты):

$$w_i(\mathbf{p}) \equiv dw_i/d^3p \propto \exp\left\{-\frac{2}{3\epsilon}g(\gamma)- -\frac{\kappa}{F}\left[b_1(\gamma)(p_{\parallel}-p_{\max})^2+b_2(\gamma)p_{\perp}^2\right]\right\}, \quad (3)$$

где $p_{\parallel}$ и $p_{\perp}$ – продольный (по полю) и поперечный импульсы вылетающего фотоэлектрона, $p_{\max}$ – его наиболее вероятный импульс,

$$g(\gamma)=\frac{3}{2}\int_0^1 \chi(\gamma z)(1-z^2)dz, \quad b_1(\gamma)=b_2(\gamma)-\chi(\gamma), \quad (4)$$

$$b_2(\gamma)=\int_0^1 \chi(\gamma z)dz=\gamma^{-1}\tau(\gamma), \quad p_{\max}=\frac{F}{\omega}\int_0^{\infty}\varphi(t)dt.$$

Сюда входит функция $\chi(z)$, зависящая от формы импульса (1), после нахождения которой задача сводится к квадратурам. Эта функция может быть задана параметрически:

$$\chi=1/\tilde{\varphi}(\tau), \qquad z=h(\tau)\equiv\int_0^{\tau}\tilde{\varphi}(t)dt, \quad (5)$$

где $\tilde{\varphi}(t) \equiv \varphi(it)$; последнее уравнение определяет также (в неявном виде) обратную функцию $\tau(z)=h^{-1}(z)$. При этом "начальный момент" подбарьерного движения электрона есть

$$t_0'=i\omega^{-1}\tau(\gamma). \quad (6)$$

В туннельном пределе $\gamma \ll 1$ (низкочастотное лазерное поле) ионизация происходит в моменты времени, близкие к $t=0$. Полагая при $t\to 0$

$$\varphi(t)=1-\frac{a_2}{2!}t^2+\frac{a_4}{4!}t^4-\frac{a_6}{6!}t^6+\ldots, \quad a_2>0, \quad (7)$$

находим из (5), что

$$\chi(z)=\sum_{n=0}^{\infty}(-1)^n\frac{\chi_n}{(2n)!}z^{2n}, \quad \chi_0=1, \quad \chi_1=a_2,$$

$$\chi_2=10a_2^2-a_4, \quad \chi_3=a_6-56a_4a_2+280a_2^3, \ldots \quad (7')$$

после чего с помощью (4) получаем разложения, позволяющие легко вычислять адиабатические поправки:

$$g(\gamma)=1+\sum_{n=1}^{\infty}(-1)^n g_n\gamma^{2n}, \quad g_n=\frac{3}{(2n+1)!(2n+3)}\chi_n,$$

$$b_1(\gamma)=\sum_{n=0}^{\infty}(-1)^n\frac{\chi_{n+1}}{(2n+1)!(2n+3)}\gamma^{2n+2},$$

$$b_2(\gamma)=\sum_{n=0}^{\infty}(-1)^n\frac{\chi_n}{(2n+1)!}\gamma^{2n}. \quad (8)$$

В первом приближении по γ^2 зависимость в (3) от формы импульса является универсальной:

$$w_i(\mathbf{p})\propto\exp\left\{-\left[\frac{2\kappa^3}{3F}\left(1-\frac{a_2}{10}\gamma^2\right)+ +\frac{\kappa}{F}\left(\frac{1}{3}a_2\gamma^2(p_{\parallel}-p_{\max})^2+p_{\perp}^2\right)\right]\right\}, \quad (9)$$

где $a_2=-\varphi''(0)$ – кривизна импульса вблизи его вершины. При этом $\Delta p_{\perp}\sim\sqrt{\epsilon}\,\kappa\ll\kappa$, а $\Delta p_{\parallel}\sim \sim\gamma^{-1}\Delta p_{\perp}\sim\sqrt{\epsilon}\,F/\omega$. В этом случае продольный импульс электрона намного превышает поперечный, что объясняется возможностью его разгона вдоль медленно меняющегося электрического поля $\mathcal{E}(t)$.

В другом пределе ($\gamma\gg 1$) удобно переписать (3) в ином виде:

$$w_i(\mathbf{p})\propto\exp\left\{-\left[\frac{\kappa^2}{\omega}f(\gamma)+\frac{1}{\omega}(c_1p_{\parallel}^2+c_2p_{\perp}^2)\right]\right\}, \quad (10)$$

где

$$\kappa^2/\omega=2K_0\gg 1, \; f(\gamma)=\frac{2}{3}\gamma g(\gamma) \text{ и } c_{1,2}(\gamma)=\gamma\, b_{1,2}(\gamma).$$

В физических задачах функция $f(\gamma)$ при $\gamma\to\infty$ либо выходит на постоянный предел (если $\varphi(t)$ имеет в комплексной плоскости особенность на конечном расстоянии от вещественной оси времени), либо возрастает логарифмически. Рассмотрим несколько характерных примеров.

1) Монохроматическому лазерному свету отвечает $\varphi(t)=\cos t$. В этом случае $\chi(z)=(1+z^2)^{-1/2}$, интегралы в (4) являются табличными и дают [2)]

$$f(\gamma)=\left(1+\frac{1}{2\gamma^2}\right)\mathrm{Arsh}\,\gamma-\frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{2\gamma},$$

$$c_1=\mathrm{Arsh}\,\gamma-\gamma/\sqrt{1+\gamma^2},$$

$$c_2=\tau_0(\gamma)=\mathrm{Arsh}\,\gamma, \quad p_{\max}=0. \quad (11)$$

2) Для $\varphi(t)=1/\mathrm{ch}^2 t$ (солитоноподобный импульс) имеем: $\chi(z)=(1+z^2)^{-1}$, откуда

$$f(\gamma)=(1+\gamma^{-2})\mathrm{arctg}\,\gamma-\gamma^{-1},$$

[2)] Сравнение с работами [5–7] показывает, насколько упрощается расчет при использовании формул (4)–(6), полученных методом мнимого времени.

$$c_1 = \operatorname{arctg}\gamma - \gamma/(1+\gamma^2), \quad c_2 = \operatorname{arctg}\gamma. \qquad (12)$$

3) В случае гауссовского импульса, $\varphi(t) = \exp(-t^2/2\sigma^2)$, функция $\chi(z)$ определяется из уравнения

$$\chi^{-1} \cdot w(\sqrt{-\ln\chi}) = z/\sqrt{2}\,\sigma, \quad 0 < \chi \le 1, \qquad (13)$$

где

$$w(z) = e^{-z^2}\int\limits_0^z e^{u^2}du$$

– известный интеграл Досона. Дальнейшее вычисление по формулам (4) не представляет труда[3)].

4) Для импульсного поля

$$\varphi(t) = (1+t^2)^{-\alpha}, \quad \alpha > 1, \qquad (14)$$

уравнения (5) принимают вид

$$\chi = (1-\tau^2)^\alpha, \quad z = \tau \cdot F(\alpha, 1/2; 3/2; \tau^2), \qquad (15)$$

где $0 \le \tau < 1$, и $F(\dots) \equiv {}_2F_1(\dots)$ – гипергеометрическая функция Гаусса. При $\gamma \to \infty$ начальная точка $t_0 = i\,\tau_0(\gamma)$ приближается к особенности $t_s = i$ поля (14):

$$\tau_0(\gamma) = \begin{cases} 1 - 2\,\exp(-2\gamma) + \dots, & \alpha = 1, \\ \\ 1 - k\,\gamma^{-1/(\alpha-1)} + \dots, & \alpha > 1, \end{cases} \qquad (15')$$

где $k = [2^\alpha(\alpha-1)]^{-1/(\alpha-1)}$. Этот пример типичен для тех случаев, когда ближайшая особая точка $t_s = i\,\tau_s$ функции поля $\varphi(t)$ лежит на конечном расстоянии от вещественной оси и является полюсом ($\alpha = 1, 2, \dots$) либо точкой ветвления степенного типа. При этом формула (10) принимает асимптотический вид

$$w_i(\mathbf{p}) \propto \exp\left\{-\frac{\tau_s}{\omega}\,[\kappa^2 + (p_\parallel - p_{\max})^2 + p_\perp^2]\right\}, \ \gamma \gg 1, \qquad (16)$$

что отличается от вероятности ионизации монохроматическим излучением и существенно превышает ее: здесь $w_i = \int w_i(\mathbf{p})d^3p \propto \exp(-2K_0\tau_s)$, в то время как для монохроматического поля $w_i \propto \exp(-2K_0\ln 2\gamma)$. При этом распределение фотоэлектронов приближается к изотропному (относительно точки $\mathbf{p}_{\max}$ в импульсном пространстве): $\Delta p_\parallel \approx \Delta p_\perp \sim \sqrt{\omega/\tau_s} \ll \kappa$.

Аналитическое решение возможно также для $\varphi(t) = 1/\mathrm{ch}t$, $(1+t^2)^{-1}$ – лоренцева форма импульса, $(1-t^2)/(1+t^2)^2, (1+t^2)^{-3/2}$, $(\mathrm{ch}^2 t + \beta^2\mathrm{sh}^2 t)^{-1}$ при $0 < \beta < \infty$, и т.д. Для любой физически разумной формы импульса $\varphi(t)$ численный расчет по уравнениям (4)–(6) не представляет трудностей.

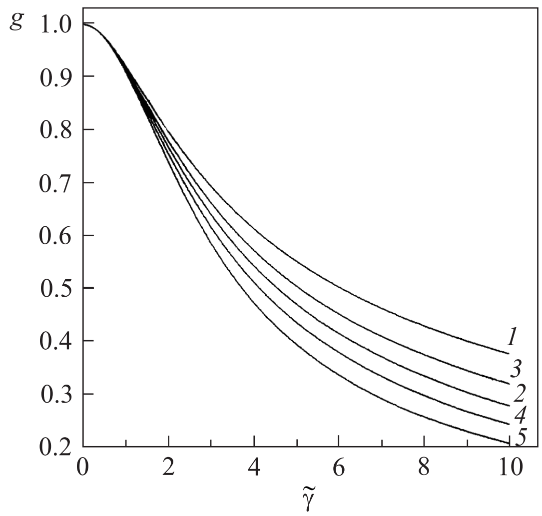

Рис.1. Функции $g(\gamma)$ для полей вида (1). Номера кривых соответствуют примерам *1)–3)*, а также: *4)* $\varphi = (1+t^2)^{-3/2}$; *5)* $\varphi = (1+t^2)^{-1}$. По оси абсцисс отложена масштабированная переменная $\tilde\gamma = \sqrt{a_2}\,\gamma$, где a_2 – коэффициент в разложении (7)

Обсудим теперь результаты численных расчетов. Функции $g(\gamma)$ для нескольких импульсных полей приведены на рис.1, на котором для сравнения показана эта функция и для монохроматического поля (кривая *1*). При этом произведено масштабирование оси времени с тем, чтобы все импульсы имели одну и ту же кривизну в вершине ($\varphi''(0) = -1$), что соответствует переходу от параметра γ к $\tilde\gamma = \sqrt{a_2}\gamma$, где a_2 – коэффициент в (7). Рис.2 и 3 относятся к случаю модулированного светового импульса

$$\varphi(t) = \exp\left\{-\frac{t^2}{2\sigma^2}\right\}\cos t, \qquad (17)$$

что уже близко к реальному эксперименту. Здесь при малых γ

$$g(\gamma) = 1 - \frac{1}{10\sigma^2}\,(1+\sigma^2)\gamma^2 + \\ + \frac{1}{280\sigma^4}\,(9\sigma^4 + 14\sigma^2 + 7)\gamma^4 + \dots. \qquad (18)$$

С уменьшением σ импульс укорачивается: его амплитуда уменьшается за один период лазерного поля на фактор $\delta \approx \exp(-2\pi^2/\sigma^2)$. Значения функций $g(\gamma)$ и $f(\gamma)$ при этом также уменьшаются, что в силу условий (2) приводит к резкому возрастанию вероятности ионизации, особенно в области $\gamma \gtrsim 1$ (быстро-

[3)] Отметим, что отдельные слагаемые в выражениях для $f(\gamma)$ и $g(\gamma)$ при $\gamma \to 0$ обращаются в бесконечность (в сумме они взаимно компенсируются). Поэтому для получения разложений в адиабатической области $\gamma \ll 1$ более удобно использовать (8), чем точные формулы типа (11) или (12).

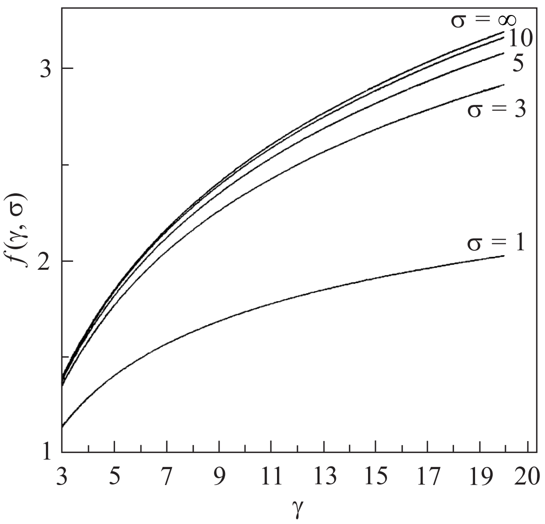

Рис.2. Функция $f(\gamma,\sigma)$ из (10) в случае поля (17). Кривые соответствуют следующим значениям σ (снизу вверх): $\sigma = 1, 3, 5, 10$ и ∞

переменные поля). Как видно из рис.1, то же имеет место при переходе от монохроматического поля к импульсным полям различного вида, сосредоточенным на конечном интервале времени. Таким образом, укорочение импульса приводит к росту вероятности ионизации. Физически это объясняется тем, что увеличивается вес высоких гармоник ω_n в спектре импульса, которые при $\omega_n > I$ могут ионизовать атом уже в первом порядке теории возмущений (в то время как для монохроматического света высшие гармоники вообще отсутствуют, и остается только многофотонный механизм ионизации [5]. Для поля (17) это становится заметным при $\sigma \lesssim 10$, когда импульс охватывает $N \sim 2\sigma/\pi \sim 5 \div 10$ периодов лазерного поля. Что же касается формы импульсного спектра, то из рис.3 следует, что зависимостью коэффициента $c_1(\gamma,\sigma)$ от параметра σ можно пренебречь, если $\sigma \gtrsim 3$ (то же верно и для коэффициента c_2 в (10)).

Аналогичные результаты были получены в случае огибающей лоренцевой формы, то есть для

$$\varphi(t) = [1 + (2t/\sigma)^2]^{-1} \cos t. \qquad (19)$$

Здесь, как и для (17), с уменьшением σ (то есть при укорочении импульса) вероятность ионизации монотонно возрастает (рис.4). Имеется, однако, качественное различие между (17) и (19) в области больших γ, связанное непосредственно с аналитическими свойствами функции $\varphi(t)$ в комплексной плоскости. А именно, значения $f(\gamma,\sigma)$ на рис.2 возрастают (логарифмически) вместе с γ, а для (19) они выходят на постоянный предел[4)]: $f(\gamma,\sigma) \to \tau_s = \sigma/2$, так же как и в случае импульса (14). Это объясняется тем, что (17) – целая функция, не имеющая особенностей в конечной части t-плоскости, в то время как (19) имеет полюс в точке $t = t_s = i\sigma/2$.

Следует подчеркнуть, что уравнения (4)–(6) позволяют рассчитать все величины, входящие в квазиклассические формулы для $w_i(\mathbf{p})$, для произвольного импульса $\mathcal{E}(t)$ и при любом значении[5)] γ, что открывает возможность детального сравнения теории многофотонной ионизации с экспериментом в области сильных полей и ультракоротких импульсов.

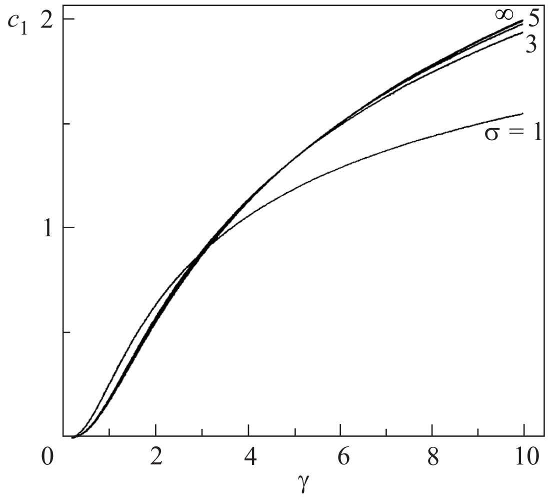

Рис.3. Коэффициент c_1 импульсного спектра в зависимости от γ. У кривых указаны значения параметра σ в (17)

Отметим в заключение, что метод мнимого времени можно применить также к задаче о рождении электрон-позитронных пар из вакуума под действием переменного электрического поля (1), которая формально отличается от рассмотренной выше тем, что подбарьерное движение электрона между границами нижнего и верхнего континуумов является сугубо релятивистским и должно рассматриваться с помощью релятивистского лагранжиана $L = -m\sqrt{1-\dot{x}^2} + e\mathcal{E}(t)x$. При этом для дифференциальной вероятности образования пар получаем

[4)] С ростом σ область установления этой асимптотики отодвигается в сторону все бо́льших значений γ, и при $\sigma = \infty$ имеем: $f(\gamma) = \ln 2\gamma - 1/2 + O(\ln\gamma/\gamma^2)$, в соответствии с (11).

[5)] В случае монохроматического лазерного излучения энергетические, импульсные и угловые распределения фотоэлектронов во всем интервале изменения параметра Келдыша γ подробно изучены в [13].

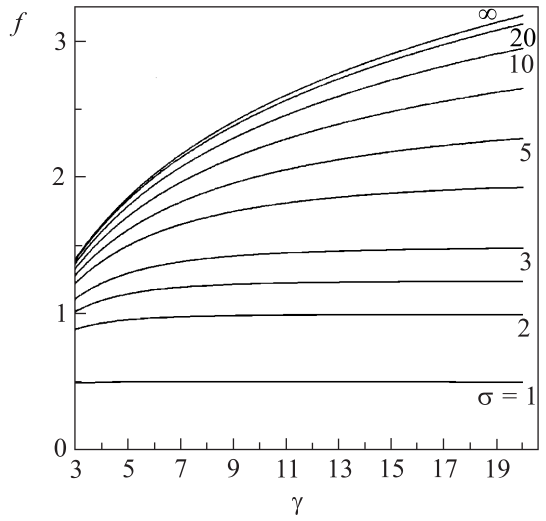

Рис.4. Функция $f(\gamma,\sigma)$ из (10) для светового импульса с лоренцевой огибающей (19). Кривым (снизу вверх) отвечают значения $\sigma = 1, 2, 2.5, 3, 4, 5, 6.67, 10, 20$ и ∞ (здесь σ – ширина огибающей на половине ее высоты)

формулу типа (3), в которой теперь коэффициент 2/3 заменяется на π, $\epsilon = F/F_0$, $F_0 = m^2c^3/e\hbar$ – “критическое”, или швингеровское [14] поле, характерное для квантовой электродинамики, параметр $\gamma = mc\,\omega/eF$ и

$$g(\gamma) = \frac{4}{\pi}\int_0^1 \chi(\gamma z)\sqrt{1-z^2}dz = \frac{4}{\pi\gamma}\int_0^1 \frac{\tau(\gamma z)z}{\sqrt{1-z^2}}\,dz, \tag{20}$$

а выражения для коэффициентов $b_1(\gamma)$ и $b_2(\gamma)$ мы здесь опустим. Аналогия с (3) очевидна, если учесть, что в обе формулы входят одни и те же функции χ и τ, однозначно определяемые видом поля (1), причем $\chi(z) = \tau'(z)$. Однако параметры F_0 и γ имеют совсем иной порядок величины, чем в атомной задаче: $F_0/F_a = (\hbar c/e^2)^3 \approx 2.6\cdot 10^6$. Огромная величина $F_0 = 1.32\cdot 10^{16}$ В/см говорит о том, что наблюдение такого процесса пока что лежит далеко за пределами возможностей эксперимента. Однако в теории твердого тела и, в частности, для полупроводников, используется закон дисперсии [5]

$$\varepsilon(p) = \Delta(1 + p^2/m_*\Delta)^{1/2}, \tag{21}$$

где m_* – эффективная масса, а Δ – ширина запрещенной зоны, отделяющей валентную зону от зоны проводимости. Формально (21) имеет тот же вид, что и для свободной частицы в релятивистской механике: $\varepsilon(p) = \sqrt{m^2+p^2}$, поэтому формулы типа (20) после очевидных переобозначений могут быть использованы в теории многофотонной ионизации полупроводников полем лазерного импульса. Для случая монохроматического светового поля это было сделано уже в работе [5].

После того, как эта работа была закончена, автору стало известно, что аналогичным вопросам посвящена также статья [4], где, в частности, иным методом рассмотрены (аналитически и численно) случаи солитоноподобного, гауссовского и лоренцевского импульсов. Считаю своим приятным долгом поблагодарить Л.В.Келдыша за предоставленную возможность ознакомиться со статьей [4] в рукописи и за интересное и стимулирующее обсуждение, С.П.Гореславского, В.Д.Мура и С.В.Попруженко за полезные обсуждения в ходе работы, С.Г.Позднякова за проведение численных расчетов, а также Н.С.Либову и М.Н.Маркину за помощь в оформлении рукописи.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 98-02-17007).

1. F. J. McClung and R. W. Hellwarth, J. Appl. Phys. **33**, 888 (1962).
2. S. Dobosz, M. Lezius, M. Shmidt et al., Phys. Rev. **A56**, R2526 (1997).
3. N. Bloembergen, Rev. Mod. Phys. **71**, S283 (1999).
4. L. Keldysh, *Multiphoton ionization by a very short pulse* (in press).
5. Л. В. Келдыш, ЖЭТФ **47**, 1945 (1964).
6. А. И. Никишов, В. И. Ритус, ЖЭТФ **50**, 255 (1966).
7. А. М. Переломов, В. С. Попов, М. В. Терентьев, ЖЭТФ **50**, 1393 (1966); **51**, 309 (1966).
8. В. С. Попов, В. П. Кузнецов, А. М. Переломов, ЖЭТФ **53**, 331 (1967).
9. R. P. Feynman, Rev. Mod. Phys. **20**, 367 (1948).
10. R. P. Feynman and A. R. Hibbs, *Quantum Mechanics and Path Integrals*, McGraw-Hill Book Co, New York (1965); перевод: Р.Фейнман, А.Хибс, *Квантовая механика и интегралы по траекториям*, М.: Мир, 1968.
11. В. С. Попов, Б. М. Карнаков, В. Д. Мур, ЖЭТФ **113**, 1957 (1998).
12. А. А. Радциг, Б. М. Смирнов, *Параметры атомов и атомных ионов*, М.: Энергоатоиздат, 1986.
13. В. С. Попов, Письма в ЖЭТФ **70**, 493 (1999); ЖЭТФ **118**, 56 (2000).
14. J. Schwinger, Phys. Rev. **82**, 664 (1951); сб. *Новейшее развитие квантовой электроники*, М.: ИЛ, 1954, с. 254.