

УДК 539.186.22

ОСТРОВСКИЙ В. Н. и ТЕЛЬНОВ Д. А.

ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ СПЕКТРЫ ЭЛЕКТРОНОВ ПРИ МНОГОФОТОННОЙ ИОНИЗАЦИИ. АДИАБАТИЧЕСКОЕ ПРИБЛИЖЕНИЕ

1. Эксперименты по измерению энергетических спектров электронов при многофотонной ионизации в сильном электромагнитном поле [1, 2] демонстрируют существенные отличия от предсказаний расчетов, выполненных на основе теории возмущений (характеристику этого метода, а также квазиклассического подхода в нестационарных задачах можно найти в книгах [3, 4]). Так, степень нелинейности в зависимости от амплитуды поля, наблюдаемая в эксперименте, практически одна и та же для нескольких первых парциальных потоков, соответствующих поглощению определенно-го числа фотонов, тогда как согласно теории возмущений она должна меняться на два при переходе к соседнему парциальному потоку. Указанное несоответствие заставляет искать другие методы для описания процесса многофотонной ионизации.

В предлагаемой работе строится приближенный метод, основанный на малости частоты внешнего поля. Адиабатическая теория переходов в сплошной спектр для задач с непериодической зависимостью от времени разработана Соловьевым [5]. Случай периодической зависимости гамильтониана от времени обладает существенными качественными и методическими особенностями и представляет интерес для отдельного анализа. Наиболее адекватным здесь является квазиэнергетический подход. Для определения положения уровня квазиэнергии (КЭ) в нем приходится решать задачу квантования, которая отсутствует в случае непериодического гамильтониана [5].

Задача построения адиабатического приближения для волновой функции квазиэнергетического состояния (КЭС) сводится в случае гармонической зависимости от времени к трехчленным рекуррентным соотношениям (ТРС), коэффициентами в которых являются, однако, не числа, а дифференциальные операторы по координате электрона. Развиваемый формализм позволяет вычислить сдвиг и ширину уровней КЭ, найти энергетические спектры электронов. При этом видоизменение спектров по сравнению с теорией возмущений происходит в сторону лучшего согласования с экспериментом. Общие результаты иллюстрируются на примере модели потенциала нулевого радиуса [6, 7].

2. Рассмотрим систему с одним активным электроном во внешнем поле, которое будем описывать классически. Волновая функция системы удовлетворяет уравнению

$$i \frac{\partial \psi}{\partial t} = H_0 \psi + V(\mathbf{r}) \cos \omega t \psi, \quad (1)$$

где H_0 — гамильтониан системы, $V(\mathbf{r}) \cos \omega t$ — потенциал внешнего поля.

Поскольку нас интересует распад во внешнем поле системы, первоначально находившейся на некотором энергетическом уровне, будем искать решение уравнения (1) с определенной КЭ ϵ . Действительная часть КЭ дает сдвиг уровня в поле, а мнимая часть — вероятность ионизации. Вол-

новая функция ищется в виде

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \exp(-i\epsilon t) \sum_{-\infty}^{\infty} \psi_n(\mathbf{r}) \exp(-in\omega t). \quad (2)$$

Для гармоник ψ_n получаем точную систему уравнений:

$$(H_0 - \epsilon - n\omega) \psi_n(\mathbf{r}) + 2^{-1} V(\mathbf{r}) [\psi_{n-1}(\mathbf{r}) + \psi_{n+1}(\mathbf{r})] = 0, \quad -\infty < n < \infty. \quad (3)$$

Будем считать, что поле $V(\mathbf{r})$ убывает при $r \rightarrow \infty$ достаточно быстро. Тогда нужное решение отбирается постановкой условий излучения на бесконечности для каждой квазиэнергетической гармоники (КЭГ):

$$\psi_n(\mathbf{r})_{r \rightarrow \infty} \sim A_n(r^{-1} \mathbf{r}) \exp(i\sqrt{2(\epsilon + n\omega)} r), \quad (4)$$

причем используемая ветвь корня определяется следующим образом: $\text{Re} \sqrt{2(\epsilon + n\omega)} > 0$ при $\text{Re} \epsilon + n\omega > 0$ и $\text{Im} \sqrt{2(\epsilon + n\omega)} > 0$ при $\text{Re} \epsilon + n\omega < 0$.

Условие пространственной локализации поля не только позволяет расцепить при $r \rightarrow \infty$ уравнения системы (3) и сформулировать простые граничные условия. Оно отражает и постановку эксперимента, при которой ионизация происходит в лазерном фокусе, а детектор вылетевших электронов находится вне поля.

В дальнейшем удобно перейти к новой переменной $E = \epsilon + n\omega$, считая n непрерывной величиной. КЭГ $\psi(\mathbf{r}, E)$ ищется в виде асимптотического разложения по степеням малого параметра, содержащего частоту ω . В итоге вычисления получаем два типа асимптотик:

$$\psi_{1,2}(\mathbf{r}, E) = (\gamma^2 - 1)^{-1/2} \Phi_0(\mathbf{r}, E) \exp \left[\pm \omega^{-1} \int^E \text{Arch } \gamma dE \pm f_1(\mathbf{r}, E) + \dots \right]. \quad (5)$$

Здесь γ — функция переменной E , которая вместе с Φ_0 находится из стационарного уравнения Шредингера с гамильтонианом $H_0 + \gamma V$:

$$[H_0 + \gamma V(\mathbf{r})] \Phi_0(\mathbf{r}, E) = E \Phi_0(\mathbf{r}, E). \quad (6)$$

При этом Φ_0 удовлетворяет условию нормировки:

$$\int d\mathbf{r} \Phi_0^2(\mathbf{r}, E) V(\mathbf{r}) = -1. \quad (7)$$

Функция f_1 определяется уравнением

$$(H_0 + \gamma V - E) f_1 \Phi_0 = -\omega [2^{-1} \gamma (\text{Arch } \gamma)_E + \sqrt{\gamma^2 - 1} \Phi_{0E} / \Phi_0] V(\mathbf{r}) \Phi_0. \quad (8)$$

Выражения (5) дают формальные асимптотические решения, которые не могут служить приближением к истинным решениям при всех E . Это связано с наличием особых точек, в которых нарушается аналитичность (5) по переменной E . КЭГ $\psi_n(\mathbf{r})$ в различных областях изменения n имеют различные асимптотические разложения (явление Стокса). Следующей задачей является нахождение глобальной асимптотики решения, т. е. правил перехода через особые точки.

3. Как видно из (5), ψ_1 и ψ_2 с точностью до членов более высокого порядка малости могут быть представлены в виде

$$\psi_{1,2} = C_{1,2}(E) \Phi_0(\mathbf{r}); \quad (9)$$

Φ_0 также зависит от E , но эта зависимость слабее, чем у функции $C(E)$. Подставляя (9) в уравнение (3) и учитывая (6), получим для $C(E)$ ТРС

$$C(E_{n-1}) + C(E_{n+1}) = 2\gamma(E_n) C(E_n), \quad E_n = \epsilon + n\omega, \quad n - \text{целое}. \quad (10)$$

Особые точки $C(E)$ будут, очевидно, особыми точками всего разложения функции $\psi(\mathbf{r}, E)$. Адиабатическое приближение соответствует квазиклассическому решению ТРС (10). Особыми точками ТРС при таком подходе являются [8] точки поворота, определяемые уравнением $\gamma^2(E) = 1$, и осо-

бые точки функции $\gamma(E)$. К числу последних относится граница непрерывного спектра $E=0$.

Рассмотрим случай, когда имеется две точки поворота, соответствующие значениям $\gamma=1$ и $\gamma=-1$. Функция $E(\gamma)$, обратная к $\gamma(E)$, при $\gamma = \cos \omega t$ является собственным значением мгновенного гамильтониана задачи, т. е. представляет адиабатический терм. Для реальных значений времени она колеблется между значениями $E^{(1)}=E(\gamma=1)$ и $E^{(2)}=E(\gamma=-1)$ (классически разрешенная область *I*, см. рис. 1). Области *II* и *III* не достигаются, что позволяет назвать их (см. [8]) классически запрещенными. Решение осциллирует в области *I*, в областях *II* и *III* оно должно убывать. Убывающее в области *II* решение имеет, очевидно, асимптотику ψ .

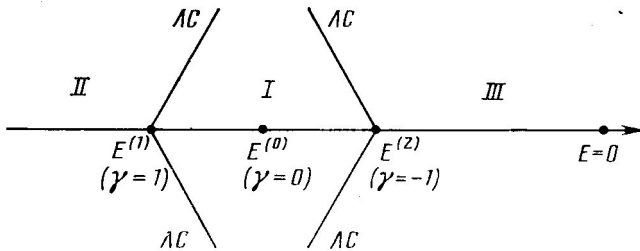


Рис. 1. Особые точки, линии Стокса (ЛС) и асимптотические области на комплексной плоскости энергии для ионизации изолированного уровня

тоту ψ . Необходимо установить, какая асимптотика соответствует этому решению в областях *I* и *III*. Эта задача может быть решена как методом эталонного уравнения, каковым является уравнение Эйри, так и с помощью аналитического продолжения вокруг особой точки. Решения в окрестности точки поворота для ТРС вида (10) и формулы связи были найдены Брауном [8]. В данном случае окончательный результат таков:

$$\begin{aligned}
 (\gamma^2 - 1)^{-1/4} \Phi_0(\mathbf{r}, E) \exp \left[\omega^{-1} \int_{E^{(1)}}^E \text{Arch } \gamma dE + \sqrt{\gamma^2 - 1} (\tilde{f}_1(\mathbf{r}, E) + \tilde{c}_1(E)) \right] \leftrightarrow \\
 \leftrightarrow 2(1 - \gamma^2)^{-1/4} \Phi_0(\mathbf{r}, E) \cos \left[\omega^{-1} \int_{E^{(1)}}^E \arccos \gamma dE + \sqrt{1 - \gamma^2} (\tilde{f}_1(\mathbf{r}, E) + \tilde{c}_1(E)) - \pi/4 \right]. \quad (11)
 \end{aligned}$$

Здесь

$$\sqrt{\gamma^2 - 1} (\tilde{f}_1(\mathbf{r}, E) + \tilde{c}_1(E)) = \sqrt{\gamma^2 - 1} \tilde{f}_1(\mathbf{r}, E) + c_1(E) = f_1(\mathbf{r}, E). \quad (12)$$

Возможность такого представления, где \tilde{f}_1 и \tilde{c}_1 уже аналитичны в окрестности $E^{(1)}$, следует непосредственно из (8). Формула связи (11) позволяет найти асимптотику в области *I* убывающего в области *II* решения. Она отличается от аналогичной формулы [8] наличием поправочных членов \tilde{f}_1 , $\tilde{c}_1 \sim \omega$, в которых содержится зависимость от дополнительной переменной — координаты. Это же замечание касается и формулы связи между областями *I* и *III*:

$$\begin{aligned}
 2(1 - \gamma^2)^{-1/4} \Phi_0 \cos \left[\omega^{-1} \int_{E^{(2)}}^E \arccos \gamma dE + \sqrt{1 - \gamma^2} (\tilde{f}_1 + \tilde{c}_1) + \right. \\
 \left. + i\Delta c_1 + \pi z_2 - \pi/4 \right] \leftrightarrow i(\gamma^2 - 1)^{-1/4} \Phi_0 \exp \left[-\omega^{-1} \int_{E^{(2)}}^E \text{Arch } \gamma dE - \right. \\
 \left. - \sqrt{\gamma^2 - 1} (\tilde{f}_1 + \tilde{c}_1) + \Delta c_1 - i\pi z_2 \right]. \quad (13)
 \end{aligned}$$

В этой формуле $z_2 = \omega^{-1}(E^{(2)} - \varepsilon)$, $2\Delta c_1 = \oint f_{1E} dE$ (интеграл берется по замкнутому контуру, содержащему внутри отрезок $[E^{(1)}E^{(2)}]$).

Если кроме двух рассмотренных точек поворота нет других особых точек, то искомое решение убывает слева от $E^{(1)}$ и справа от $E^{(2)}$. Это возможно при следующем условии на КЭ ε :

$$\varepsilon + N\omega = (2\pi i)^{-1} \oint E(\gamma^2 - 1)^{-1/2} d\gamma - \omega(2\pi i)^{-1} \oint f_{1E} dE, \quad (14)$$

N — любое целое число. Правило квантования (14) получается сравнением (11) и (13). Оно похоже на то, которое имеется в методе ВКБ для уравнения типа Шредингера [9]. Здесь, однако, члены асимптотического разложения f_i зависят не только от E , но и от γ . Последняя зависимость пропадает лишь после интегрирования по E вдоль пути, обходящего отрезок $[E^{(1)}E^{(2)}]$. Это следует из возможности представления (12).

4. На границе сплошного спектра функция $\gamma(E)$ имеет особенность корневого типа, учет которой меняет условие квантования; при этом квазиэнергия приобретает мнимую часть. Такую особенность удобно параметризовать следующим образом:

$$2\gamma(E_n) = a + \omega^{-1/2} b \sqrt{E_n} = a + b \sqrt{n + \delta} \quad (b = O(\omega^{1/4}), a = O(1), \delta = \varepsilon/\omega). \quad (15)$$

Это разложение верно для s -состояния (см. [10]); оно также справедливо, если Φ_0 не соответствует определенному орбитальному моменту, так как для высших моментов особенность на границе сплошного спектра более слабая [10] и главную роль играет s -волна. Анализ показывает, что эталонное уравнение в окрестности точки $E=0$ получается подстановкой зависимости (15) в ТРС (10):

$$C_{n-1} + C_{n+1} = (a + b \sqrt{n + \delta}) C_n. \quad (16)$$

ТРС с особой точкой такого типа ранее не рассматривались. Параметр b имеет малость $\sim \omega^{1/2}$, что позволяет решать это ТРС с помощью теории возмущений по этому параметру. В первом порядке получим

$$\begin{aligned} n \geq 0, \quad C_n &= \eta_0 \mu^n + \chi_0 \mu^{-n} + \mu b (\mu^2 - 1)^{-1} \mu^n \sum_0^{n-1} (\eta_0 + \chi_0 \mu^{-2m}) \sqrt{m + \delta} - \\ &- \mu b (\mu^2 - 1)^{-1} \mu^{-n} \sum_0^{n-1} (\eta_0 \mu^{2m} + \chi_0) \sqrt{m + \delta}; \quad (17) \\ n < 0, \quad C_n &= \eta_0 \mu^n + \chi_0 \mu^{-n} - \mu b (\mu^2 - 1)^{-1} \mu^n \sum_{n+1}^{-1} (\eta_0 + \chi_0 \mu^{-2m}) \times \\ &\times \sqrt{m + \delta} + \mu b (\mu^2 - 1)^{-1} \mu^{-n} \sum_{n+1}^{-1} (\eta_0 \mu^{2m} + \chi_0) \sqrt{m + \delta}. \end{aligned}$$

Здесь $\mu = \exp[\text{Arch}(a/2)]$, η_0 и χ_0 — константы. При $n > 0$ растущего решения μ^n быть не должно, поэтому следует положить

$$\eta_0 = -\mu b (\mu^2 - 1)^{-1} \sum_0^{\infty} \sqrt{m + \delta} \mu^{-2m} \chi_0. \quad (18)$$

При $n < 0$ тогда обязательно появится решение μ^n . Коэффициент при нем не может обратиться в нуль из-за неаналитичности функции \sqrt{E} : при $E > 0$ она принимает действительные значения, а при $E < 0$ — чисто мнимые. Это означает, что при переходе через $E=0$ имеет место явление, аналогичное явлению Стокса вблизи точек поворота:

$$\mu^{-n} + \nu \mu^n \leftrightarrow \mu^{-n}. \quad (19)$$

Считая, что a действительна, а b — чисто мнимая величина (см. [10]), найдем мнимую часть константы Стокса ν :

$$\text{Im } \nu = i\mu b (\mu^2 - 1)^{-1} \sum_0^{\infty} \sqrt{m + \delta} \mu^{-2m}. \quad (20)$$

Для вычисления мнимой части КЭ важна лишь мнимая часть ν . $\text{Re } \nu$ дает экспоненциально малый вклад в сдвиг уровня, учет которого не оправдан. Уточненное правило квантования с учетом мнимой части КЭ выглядит так:

$$\begin{aligned} \epsilon + N\omega = (2\pi i)^{-1} \oint E (\gamma^2 - 1)^{-1/2} d\gamma - \omega (2\pi i)^{-1} \oint f_{1E} dE + \\ + i \text{Im } \nu (2\pi)^{-1} \omega |\mu|^{-2} \text{Re } \epsilon/\omega \exp \left[-2\omega^{-1} \int_{E^{(2)}}^0 \text{Arch } |\gamma| dE \right]. \end{aligned} \quad (21)$$

Сдвиг уровня в поле определяется первыми двумя слагаемыми в правой части (21). Главный член после замены переменной интегрирования $\gamma = \cos \omega t$ приобретает наглядный вид:

$$\text{Re } \epsilon + N\omega \approx (2\pi i)^{-1} \oint E (\gamma^2 - 1)^{-1/2} d\gamma = T^{-1} \int_0^T E(t) dt, \quad (22)$$

КЭ получается как среднее по периоду $T = 2\pi\omega^{-1}$ от мгновенного положения энергетического уровня $E(t)$. Этот естественный результат использовался ранее (см., например, [7], где он выведен из вариационного принципа). Следующее слагаемое в (21) представляет собой квадратичную по частоте поправку к главному члену (22).

Ширина уровня КЭ ϵ определяется третьим слагаемым в (21) и представляется в наглядном виде как сумма парциальных потоков во всех КЭГ, для которых происходит ионизация:

$$\begin{aligned} \Gamma = \sum_0^{\infty} j_n, \quad j_n = (2\pi)^{-1} \omega \sqrt{2E_n} |\gamma^2(E_n) - 1|^{-1/2} \times \\ \times \exp \left[-2\omega^{-1} \text{Re} \int_{E^{(2)}}^{E_n} \text{Arch } \gamma dE \right] \int d\Omega |A_{\infty}(\Omega, E_n)|^2. \end{aligned} \quad (23)$$

Здесь использован результат работы [10]:

$$b = -i(2\omega)^{1/2} \int d\Omega A_{\infty}^2(\Omega, 0), \quad (24)$$

где $A_{\infty}(\Omega, E)$ — амплитуда при $r \rightarrow \infty$ функции Φ_0 , нормированной согласно [7]:

$$\Phi_0 r \rightarrow \infty \sim A_{\infty}(\Omega, E) r^{-1} \exp(i\sqrt{2E}r). \quad (25)$$

5. В предельном случае слабого поля формула для парциальных потоков преобразуется к виду

$$\begin{aligned} j_n = \pi^{-1} \omega^{3/2} \sqrt{n + N + \omega^{-1}E^{(0)}} \times \\ V_0^{2(n+N)} \exp \left[2\omega^{-1} \text{Re} \int_{E^{(0)}}^{E^{(0)} + \omega(n+N)} (E - E^{(0)}) \gamma_p^{-1} (d\gamma_p/dE) dE \right] \times \\ \times \frac{[2\gamma_p(E^{(0)} + \omega(n+N))]^{2(n+N)+1}}{\times |A(E^{(0)} + \omega(n+N))|^2}. \end{aligned} \quad (26)$$

Здесь V_0 — амплитуда поля, а

$$\begin{aligned} \gamma_p(E) = \lim_{V_0 \rightarrow 0} V_0 \gamma(E); \quad |A(E)|^2 = \lim_{V_0 \rightarrow 0} V_0 \int d\Omega |A_{\infty}(\Omega, E)|^2; \\ E^{(0)} = \lim_{V_0 \rightarrow 0} E^{(1,2)}. \end{aligned} \quad (27)$$

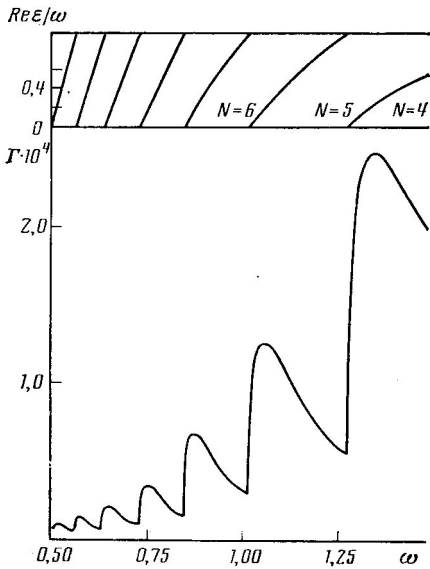


Рис. 2

Рис. 2. Сдвиг и ширина уровня КЭ в зависимости от частоты внешнего поля для модели потенциала нулевого радиуса ($\alpha=3$; $\lambda=1,5$)

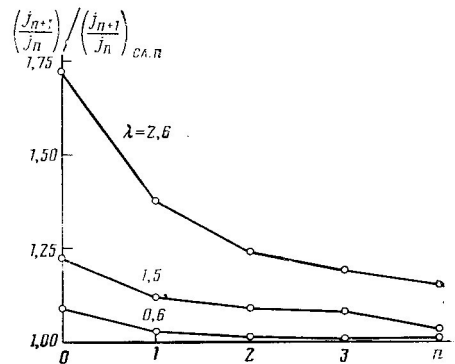


Рис. 3

Рис. 3. Сравнительный результат расчета парциальных потоков для модели потенциала нулевого радиуса по общей адиабатической формуле и в приближении слабого поля ($\alpha=3$; $\omega=1$)

Отброшенная при переходе от (23) к (26) поправка такова, что потоки, рассчитанные в приближении слабого поля, убывают с ростом n быстрее, чем предсказывает общая формула адиабатической теории.

6. Предыдущее изложение было посвящено ионизации изолированного уровня, что видно из структуры особенностей ТРС. Учет промежуточных состояний может привести к еще большему отличию от приближения слабого поля. Так, при наличии слабосвязанного промежуточного состояния и возмущении в виде сепарабельного потенциала

$$\frac{j_n}{j_{n+1}} = \frac{(n+\varepsilon/\omega)^{1/2}}{(n+1+\varepsilon/\omega)^{1/2}} \exp \left[-\frac{2}{3} \frac{ib}{\sin \varphi} \left((n+\varepsilon/\omega)^{3/2} - (n+1+\varepsilon/\omega)^{3/2} \right) \right],$$

$$\sin \varphi = (1 - \gamma^2(0))^{1/2}, \quad (28)$$

что для первых парциальных потоков ($b\sqrt{n+\delta} \ll 1$) близко к единице и сильно отличается от значения $j_n/j_{n+1} \approx V_0^2$, даваемого формулой (26).

7. Возвращаясь к ионизации изолированного уровня, рассмотрим модель потенциала нулевого радиуса с переменной глубиной [6, 7]:

$$H_0 = -2^{-1} d^2/dx^2 - \alpha \delta(x), \quad V(x) = -\lambda \delta(x). \quad (29)$$

Функция

$$\gamma(E) = -\lambda^{-1} (\alpha + i\sqrt{2E}) \quad (30)$$

при $E < 0$ монотонно убывает с ростом E . Две точки поворота, $\gamma = \pm 1$, лежат на отрицательной действительной полуоси E и соответствуют энергиям $E^{(1,2)} = -2^{-1} (\alpha \pm \lambda)^2$.

На рис. 2 показана зависимость $\text{Re } \varepsilon$ и Γ от ω при фиксированных α и λ . На графике зависимости ширины видны пороговые особенности, связанные с изменением кратности ионизации при изменении частоты. Они соответствуют минимумам вероятности ионизации.

На рис. 3 сравниваются результаты общей теории (формула (23)) и приближения слабого поля (формула (26)); показано отношение

$(j_{n+1}/j_n)/(j_{n+1}/j_n)_{\text{сл.п}}$ в зависимости от n . Следует иметь в виду, что первый порядок теории возмущений не учитывает штарковского сдвига уровня и связанного с ним изменения кратности ионизации, поэтому сравнение нужно проводить в соответствии с правилом

$$j_n \leftrightarrow (j_{n+1})_{\text{сл.п}}, \lambda=1,5; \quad j_n \leftrightarrow (j_{n+2})_{\text{сл.п}}, \lambda=2,6. \quad (31)$$

Видно, что отношение $(j_{n+1}/j_n)/(j_{n+1}/j_n)_{\text{сл.п}}$ больше единицы. Это подтверждает общий вывод о более медленном спадании спектра с ростом энергии в адиабатической теории. Наиболее сильно отличие от приближения слабого поля проявляется для первых парциальных потоков. При увеличении номера n это отличие уменьшается тем быстрее, чем слабее поле.

Указанный вывод, подтвержденный модельными расчетами, согласуется с тем, что эксперимент [1, 2] также дает более медленное спадание спектра вылетевших электронов, чем это следует из оценок по теории возмущений. Отметим также, что существенную роль при объяснении этого явления может играть учет промежуточных состояний, в особенности лежащих недалеко от границы сплошного спектра. При этом, как было показано выше, отличия от приближения слабого поля становятся еще более значительными.

Ленинградский государственный университет

Литература

1. Kruit P., Kimman P., van der Wiel M. J. J. Phys., 1981, v. B14, p. L597.
2. Kruit P., Kimman P., Muller H. G., van der Wiel M. J. Phys. Rev., 1983, v. A28, p. 248.
3. Рапопорт Л. П., Зон Б. А., Манаков Н. Л. Теория многофотонных процессов в атомах. М.: Атомиздат, 1978.
4. Делоне Н. Б., Крайнов В. П. Атом в сильном световом поле. М.: Атомиздат, 1978.
5. Соловьев Е. А. ЖЭТФ, 1976, т. 70, с. 872.
6. Казанский А. К., Островский В. Н., Соловьев Е. А. ЖЭТФ, 1976, т. 70, с. 443.
7. Островский В. Н. ТМФ, 1977, т. 33, с. 126.
8. Браун П. А. ТМФ, 1978, т. 37, с. 355.
9. Федорюк М. В. Асимптотические методы для линейных обыкновенных дифференциальных уравнений. М.: Наука, 1983.
10. Островский В. Н., Соловьев Е. А. ЖЭТФ, 1972, т. 62, с. 167.