

УДК 539.1.08, 539.198

А.Б. Бычков, В.В. Смирнов

Санкт-Петербургский государственный университет,
физический факультет, Санкт-Петербург, Россия

e-mail: minotaur-mail@mail.ru

ТРАЕКТОРНЫЙ МЕТОД ОЦЕНКИ ВЕРОЯТНОСТИ ФОТОИОНИЗАЦИИ АТОМА

В работе приведены результаты тестирования предложенного метода расчета вероятностей на основе использования интеграла по траекториям применительно к фотопроцессам на примере процессов фотоионизации атомов водорода и гелия. В случае двукратной фотоионизации атома гелия показано, что метод позволяет воспроизвести эффекты, связанные с межэлектронными корреляциями, которые не возможно обнаружить для многих других методов расчета. Метод расчета весьма прост в реализации и позволяет охватить большой диапазон значений параметров фотоимпульса.

Ключевые слова: фотоионизация, межэлектронные корреляции, фотоимпульс, интеграл по траекториям.

Введение

В последнее десятилетие бурное развитие лазерной техники привело к появлению источников излучения, способных создавать ультракороткие электромагнитные поля очень большой интенсивности, параметры которых имеют атомный масштаб. В силу сложности теоретического описания процессов, возникающих в случае воздействия такого излучения на атомы, среди которых стоит отметить учет высоких порядков взаимодействия и учет влияния межэлектронных корреляций для многоэлектронных систем, разработка соответствующих методов является важной задачей.

В данной работе приведены результаты тестирования предложенного нами метода расчета вероятностей на основе использования интеграла по траекториям применительно к фотопроцессам на примере процессов фотоионизации атомов водорода и гелия.

Методика

Рассмотрен вариант оценки вероятности перехода в квантовой системе, базирующийся на представлении вероятности перехода в форме интеграла по траекториям в формализме матриц плотности. Для

оценки интеграла используется выделение группы переменных, по которым интегрирование проводится методом Монте-Карло. Для интегрирования по остальным переменным применяется метод стационарной фазы [1].

В случае конечных состояний с диагональной матрицей плотности вида

$$\rho_f(q', q) = \rho(q)\delta(q' - q) \quad (1)$$

эта схема приводит к простому выражению для оценки вероятности

$$w_{i,f} = \int \rho(q_{l+1}) |exp(iSI) - 1|^2 \rho_i(q_0) dq_0 \cdot (2)$$

В него входят диагональные части матриц плотности (распределения вероятностей) начального и конечного состояний. SI – часть гамильтонова действия, связанного с взаимодействием, взятого на фазовой траектории с заданной начальной координатой q_0 и импульсом:

$$p_0 = \frac{\partial \chi_i}{\partial q_0},$$

где χ_i – фаза начального состояния. Эта фазовая траектория является стационарной

для некоторого эффективного действия. Два естественных выбора эффективного действия состоят в действии для полного гамильтониана и для гамильтониана без взаимодействия.

Состояния вида /1/ служат приемлемым приближением для описания больших групп состояний, близких к полным системам. В частности, при $\rho = 1$ вероятность перехода в это конечное состояние соответствует полной вероятности перехода для всех процессов в системе, что следует из полноты системы собственных состояний гамильтониана без взаимодействия:

$$\int |\alpha\rangle \langle \alpha| d\alpha = \hat{1}.$$

Далее рассмотрен пример использования этой процедуры к задаче вычисления вероятности фотоионизации атома водорода и одно- и двукратной фотоионизации атома гелия.

Мы используем электрическое дипольное приближение для описания взаимодействия атома с полем излучения равным:

$$\hat{W}(t) = -\vec{E}(t) \cdot \vec{D},$$

где $\vec{E}(t)$ – напряженность электрического поля, \vec{D} – оператор дипольного момента атома. В качестве светового импульса рассматривается электрическое поле

$$\vec{E}(t) = \vec{e} E \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right) \sin(\omega t),$$

где E – амплитуда, τ – длительность импульса, ω – несущая частота и \vec{e} – единичный вектор направления поляризации. Используется атомная система единиц.

Фотоионизации атома водорода

Рассматривается полная вероятность всех переходов из основного состояния, и отдельно вероятность фотоионизации.

Результаты, полученные по формуле (2) при $\rho = 1$, представлены на рис. 1 и рис. 2 (линия 1) для полной вероятности переходов и вероятности ионизации соответственно при условиях – $E = 0.01$ а.е., $\tau = 20$ а.е. Для малых полей естественно взять эффективное действие в виде действия для гамильтониана без взаимодействия.

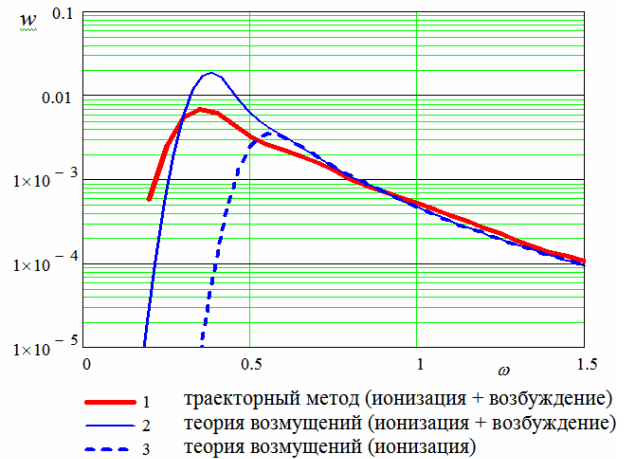


Рис. 1. Зависимость вероятности ионизации или возбуждения атома водорода от несущей частоты.

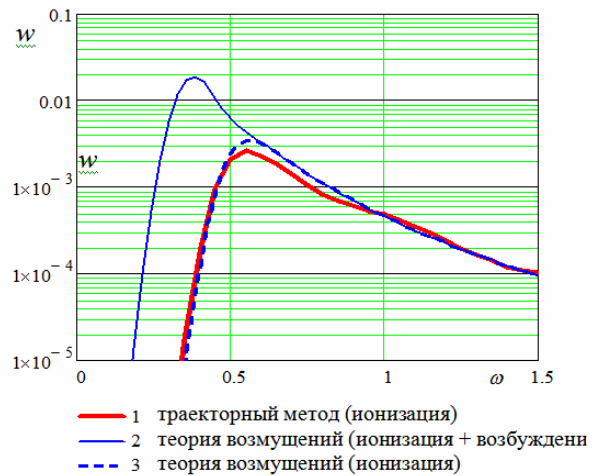


Рис. 2. Зависимость вероятности ионизации атома водорода от несущей частоты.

Для сравнения на этих рисунках также представлены результаты вычислений по теории возмущений (линия 2 – вероятность ионизации, линия 3 – полная вероятность). Чтобы выделить из всех переходов процесс ионизации используется ограничение области интегрирования по начальной координате $|q_0| < 2$. Увеличение

q_0 приводит к уменьшению частоты колебаний траектории. Меняя q_0 , можно выбирать область частот процесса фотоионизации, т.к. основной вклад в значение интеграла (2) создается траекториями, которые находятся в резонансе с фотоимпульсом.

Видно соответствие вычислений по формуле /2/ и по теории возмущений. Наблюдается тенденция к небольшому снижению вероятности относительно теории возмущений при понижении несущей частоты импульса, что можно отнести к методической погрешности.

Фотоионизации атома гелия

Фотоионизация атома гелия изучалась давно и в большом количестве работ. Вместе с тем процесс ионизации под действием мощных ультракоротких фотоимпульсов стал изучаться сравнительно недавно. При теоретическом рассмотрении использовались практически все существующие теоретические методы, включая прямое численное решение нестационарного уравнения Шредингера [2-14]. Вследствие сказанного к настоящему моменту фотоионизация атома гелия под действием мощных ультракоротких фотоимпульсов во многом изучена.

С точки зрения проверки методов расчета гелий представляет особый интерес, поскольку это наиболее простой многоэлектронный атом. Среди эффектов, связанных с многоэлектронностью можно отметить такие, как многократная ионизация и проявление межэлектронных корреляций.

Проблема межэлектронных корреляций в многоэлектронных системах представляет большой интерес. Наиболее заметно их влияние должно быть в системах с малым числом электронов, поэтому рассмотрение процессов в атоме гелия является естественным и, в то же время, наиболее простым вариантом. По мнению многих авторов, самое сильное проявление межэлектронных корреляций выражается в наличии плато или "колена" (the «knee») в зависимости вероятности двойной ионизации атома гелия от интенсивности света

[15-17].

Теоретическая интерпретация плато может быть объяснена как результат наложения двух ионизационных механизмов – последовательного, с временным формированием однократно ионизованного атома гелия, и параллельного. Последний механизм напрямую связан с межэлектронными корреляциями.

Большинство существующих теоретических методов не воспроизводят плато, т.к. не достаточно точно учитывают межэлектронные корреляции. Это видно на результатах расчета однократной и двукратной фотоионизации атома гелия с использованием нестационарного метода Хартри-Фока или метода функционала плотности с различными поправками для учета корреляций [18]. Только внесение специальных поправок в работе [19] привело к некоторым улучшениям результатов. Межэлектронные корреляции не рассматриваются в различных вариантах теории Келдыша, таких как методы Переломова-Попова-Тереньтева (PPT) и Амосова-Делоне-Крайнова (ADK) или приближении сильного поля (SFA) [20].

Некоторого прогресса в учете межэлектронных корреляций удалость добиться, используя нестационарное уравнение Шредингера с двухэлектронной волновой функцией для одномерной модели атома гелия [18]. Прямое численное решение нестационарного уравнения Шредингера не имеет перспективы при переходе к более сложным атомам.

Среди методов, которые учитывают межэлектронные корреляции и воспроизводят плато, находятся траекторные методы. «Колено» хорошо видно в вычислениях с использованием классических траекторий и одномерной модели атома гелия [16, 21]. Для полноразмерной модели небольшое плато было воспроизведено средствами ферминной молекулярной динамики (FMD) [22].

В наших вычислениях по формуле (2) для больших полей естественно взять эффективное действие в виде действия для полного гамильтониана.

Начальное (основное) состояние атома гелия бралось в виде [23]:

$$\rho(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \left(\frac{Z^3}{\pi} \exp(-Z(r_1 + r_2)) \right)^2$$

с эффективным зарядом ядра $Z = 1.7$. Для описания конечного состояния (1) используется функция, определяющая вероятность электрона быть найденным внутри сферы радиуса распределения R вокруг ядра,

$$\rho_0(r) = \exp\left(-\left(\frac{r}{R}\right)^\alpha\right).$$

Как выяснилось в процессе работы, результаты вычислений не очень чувствительны к конкретному выбору параметров в окрестности значений $\alpha \sim 1$, $R \sim 10$. Полная вероятность ионизации (однократ-

ной + двукратной) в двухэлектронной системе аппроксимируется в виде:

$$\rho_{tot}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = 1 - \rho_0(r_1)\rho_0(r_2),$$

вероятность двукратной ионизации

$$\rho_d(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = (1 - \rho_0(r_1))(1 - \rho_0(r_2)),$$

и вероятность однократной ионизации

$$\rho_s(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \rho_{tot}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) - \rho_d(\vec{r}_1, \vec{r}_2).$$

Результаты вычислений представлены на рис. 3.

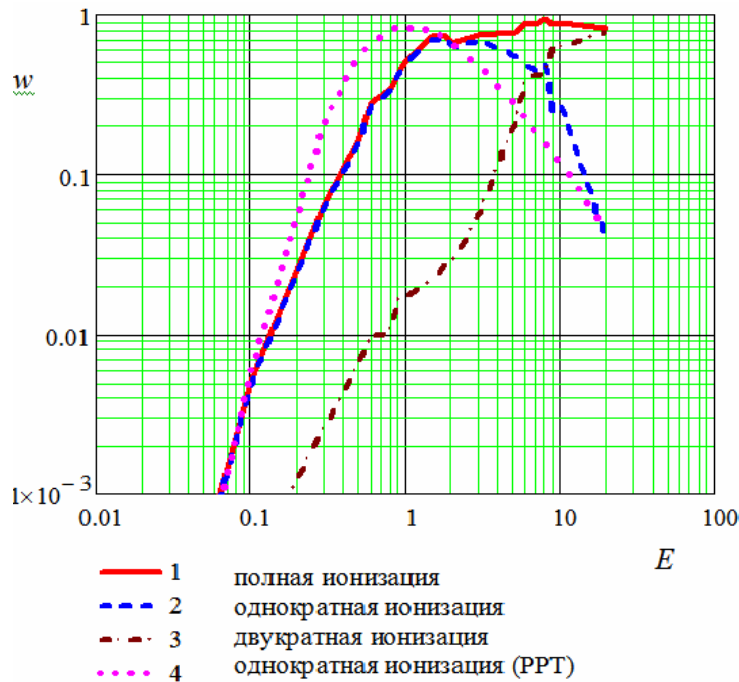


Рис. 3. Зависимость вероятности фотоионизации гелия от амплитуды поля.

На рис. 3 сплошная (линия 1), однократная (линия 2) и двукратная (линия 3) вероятности ионизации атома гелия представлены в виде функций амплитуды поля E для импульса с частотой несущей $\omega = 0.3$ а.е. и длительностью $\tau = 10$ а.е. Отметим наличие большой вероятности ионизации при частоте несущей много меньшей порога ионизации $I = 0.9$ а.е.,

что указывает на многофотонность процесса. Для однократной ионизации результаты сравниваются с вычислениями по теории Переломова-Попова-Тереньтева (РРТ) (линия 4).

Наш траекторный метод воспроизводит эффект «колена» для полноразмерной модели атома. Сравнение положения «колена» в плоскости вероятность-поле в на-

шей и других работах возможно только на качественном уровне, т.к. для вычислений в данной работе использовались намного меньшие длительности импульса и большие частоты. Из других работ известно, что с возрастанием несущей частоты импульса область плато сдвигается к большим полям [16], а вероятность падает с уменьшением длительности импульса [20, 24].

Заключение

Полученные результаты указывают на работоспособность предложенной методики вычисления интегральных по энергии вероятностей фотоионизации атомов. Для двукратной фотоионизации атома гелия

результаты показали, что метод позволяет воспроизвести эффекты, связанные с межэлектронными корреляциями, что затруднительно для многих существующих методов расчета. При этом метод весьма прост в реализации и позволяет охватить большой диапазон значений параметров фотоимпульса. Достоинством метода является то, что он сводится к траекторной задаче с начальными условиями (так называемая схема IVR), которая, как известно, решается весьма эффективно. Кроме того, он не требует вычисления предэкспоненциального фактора, фигурирующего во многих траекторных методах, нахождение которого в общем случае представляет собой трудоемкую задачу.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Смирнов В.В. Об одном траекторном способе оценки вероятности перехода в квантовой системе. *Химическая Физика*, 2012, т 31, № 4, С. 76–80.
2. Barna I.F. and Rost J.M. Photoionization of helium with ultrashort XUV laser pulses. *Eur. Phys. J.D.* – 2003. – 00272-8.
3. Birkeland T., Nepstad R. and Forre M. Stabilization of Helium in Intense xuv Laser Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 104, 163002 (4). – 2010.
4. Emmanouilidou A. Prevalence of different double ionization pathways and traces of three-body interactions in strongly driven helium. *Phys. Rev. A* 83, 023403 (6). – 2011.
5. Fomouo Emmanuel, Kamta Gérard Lagmago, Edah Gaston, and Piraux Bernard. Theory of multiphoton single and double ionization of two-electron atomic systems driven by short-wavelength electric fields: An ab initio treatment. *Phys. Rev. A* 74, 063409. – 2006.
6. Hasbani R., Cormier E. and Bachau H. Resonant and non-resonant ionization of helium by XUV ultrashort and intense laser pulses. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 33. – 2000. – 2101–2116.
7. Parker J.S., Doherty B.J.S., Taylor K.T., Schultz K.D., Blaga C.I. and DiMauro L.F. High-Energy Cutoff in the Spectrum of Strong-Field Nonsequential Double Ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 96, 133001 (4). – 2006.
8. Parker Jonathan S., Moore Laura R., Dundas Daniel and Taylor K.T. Double ionization of helium at 390 nm. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 33 L691. – 2000.
9. Parker J.S., Moore L.R., Meharg K.J., Dundas D. and Taylor K.T. Double-electron above threshold ionization of helium. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 34 L69. – 2001.
10. Ruiz Camilo, Plaja Luis, Roso Luis and Becker Andreas. *Ab initio* Calculation of the Double Ionization of Helium in a Few-Cycle Laser Pulse. Beyond the One-Dimensional Approximation. *Phys. Rev. Lett.* 96, 053001 (4). – 2006.
11. Samson J.A.R., Stolte W.C. Precision measurements of the total photoionization cross-sections of He, Ne, Ar, Kr, and Xe. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 123. – 2002. – P. 265–276.
12. Scrinzi A. Ionization of multielectron atoms by strong static electric fields. *Phys. Rev. A* 61 041402(R) (1-4). – 2000.

13. Selles P. and Malegat L., Kazansky A.K. Ab initio calculation of the whole set of He double-photoionization cross sections. *Phys. Rev A*, v. 65, 032711. – 2002.
14. Zhang Zheng, Peng Liang-You, Xu Ming-Hui, Starace Anthony F., Morishita Toru, and Gong Qihuang. Two-photon double ionization of helium: Evolution of the joint angular distribution with photon energy and two-electron energy sharing. *Phys. Rev. A* 84, 043409 (11). – 2011.
15. Lafon R., Chaloupka J.L., Sheehy B., Paul P.M., Agostini P., Kulander K.C. and DiMauro L.F. Electron Energy Spectra from Intense Laser Double Ionization of Helium. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, v. 86. – n. 13. – P. 2762-2765.
16. Mauger F., Chandre C., Uzer T. Strong field double ionization: What is under the “knee”? *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 42. – 2009. – 165602.
17. Walker B. et al. Precision measurement of strong field double ionization of Helium. *Phys. Rev. Lett.*, 1994, v. 73, n. 9. – P. 1227-1230.
18. Petersilka M. and Gross E. K. U. Strong-Field Double Ionization of Helium: A Density-Functional Perspective. *Laser Physics*, Vol. 9, No. 1. – 1999. – P. 1–10.
19. De Wijn A.S., Lein M. and Kummel S. Strong-field ionization in time-dependent density functional theory. *EPL*, 84. – 2008. – 43001.
20. Попов В.С. Туннельная и многофотонная ионизация атомов и ионов в сильном лазерном поле (теория Келдыша). *УФН*, т. 174, № 9. – С. 912-951.
21. Guo Jing, Yu Wei-Wei, Liu Xue-Shen. Double ionization of helium with classical ensemble simulations. *Physics Letters A* 372. – 2008. – 5799–5803.
22. LaGattuta K.J. and Cohen James S. Quasiclassical modelling of helium double photoionization. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 31. – 1998.–5281–5291.
23. Drake G.W.F. and Van Zong-Chao. Variational eigenvalues for the S states of helium. *Chem. Phys. Lett.*, 1994, v. 229, P. 486–490.
24. Guo Jing, Yu Wei-Wei, Liu Xue-Shen. Double ionization of helium with classical ensemble simulations. *Physics Letters A* 72. – 2008. – 5799–580.

Стаття надійшла до редакції 10.10.2012

A. Bichkov, V. Smirnov
Saint-Petersburg State University, Russia
e-mail: minotaur-mail@mail.ru

PATH METHOD FOR THE ESTIMATION OF PROBABILITY OF PHOTOIONIZATION

Results of testing of the proposed method for calculation of probabilities based on the path integral are presented for the example of hydrogen and helium photoionization processes. In the case of double ionization of helium atom the method is shown to be capable of reproducing effects related to electron-electron correlations which cannot be detected by many other methods of calculation. The calculation method is rather simple in implementation and can encompass a broad range of photomomentum parameter values.

Keywords: photoionization, electron-electron correlations, photomomentum, path integral.

О.Б. Бичков, В.В. Смирнов

Санкт-Петербурзький державний університет,
фізичний факультет, Санкт-Петербург, Росія
e-mail: minotaur-mail@mail.ru

ТРАЄКТОРНИЙ МЕТОД ОЦІНКИ ІМОВІРНОСТІ ФОТОІОНІЗАЦІЇ АТОМА

У роботі наведено результати тестування запропонованого методу розрахунку ймовірностей на основі використання інтеграла по траєкторіях, стосовно фотопроцесів на прикладі процесів фотоіонізації атомів водню і гелію. У разі двократної фотоіонізації атома гелію показано, що метод дозволяє відтворити ефекти, пов'язані з міжелектронними кореляціями, які не можна виявити для багатьох інших методів розрахунку. Метод розрахунку досить простий у реалізації й дозволяє охопити великий діапазон значень параметрів фотоімпульсу.

Ключові слова: фотоіонізація, міжелектронні кореляції, фотоімпульс, інтеграл по траєкторіях.