

## МНОГОФОТОННЫЕ ПРОЦЕССЫ В АТОМАХ

Л. Н. Лабзовский и Н. С. Яковлева

Предложен вариационный метод, позволяющий рассчитывать сечения различных многофотонных процессов с любым числом фотонов. Рассчитан ряд многофотонных процессов на атоме водорода: сечения многофотонных (с числом фотонов от двух до шести) процессов поглощения с возбуждением атома из основного состояния в состояния  $2s$ ,  $2p$ ,  $3s$ , сечения двух-, четырех- и десятифотонной ионизации атома водорода из состояния  $2s$  и, наконец, сечение двухфотонной ионизации из состояния  $3s$ .

В последнее время многофотонные процессы, связанные с воздействием лазерного излучения на атомы, интенсивно исследуются как экспериментально, так и теоретически. В теоретических работах используются как точные методы — метод кулоновской функции Грина [1, 2], метод Шварца—Тимана [3], — так и приближенные методы [4, 5]. Однако применение точных методов ограничено практически атомом водорода. Для сложных атомов, например, метод функций Грина может применяться лишь в полумпирическом варианте. Приближенные же методы [4, 5] являются весьма грубыми. В настоящей работе мы предлагаем вариационный метод, который свободен от этих недостатков. С одной стороны, этот метод применим для любых многоэлектронных атомов как в приближении Хартри—Фока, так и при учете электронной корреляции. С другой стороны, этот метод значительно точнее грубых методов [4, 5].

В первой части работы формулируется вариационный принцип для амплитуды процесса и обсуждается выбор пробных функций. Вариационные принципы для вычисления матричных элементов матрицы рассеяния в квантовой электродинамике были рассмотрены ранее в [6]. Здесь мы используем несколько иной вариационный принцип, более удобный для расчета процессов с большим числом фотонов. Во второй части работы для проверки вариационного метода был рассчитан целый ряд процессов на атоме водорода (для которых имеются точные расчеты); сечения многофотонных (с числом фотонов от двух до шести) процессов поглощения с возбуждением атома, а также сечения процессов многофотонной (от двух до десяти фотонов) ионизации атома из основного и возбужденных состояний.

## Вариационный принцип

С помощью обычных методов квантовой электродинамики [7] матричный элемент матрицы рассеяния, соответствующий процессу взаимодействия атомного электрона с  $N$  одинаковыми фотонами, можно представить в виде (в единицах  $c = \hbar = 1$ )

$$S_{if}^{(N)} = \frac{2\pi e^N}{i^{N-1}} \left( \frac{\mathfrak{M}}{2\omega V} \right)^{N/2} \delta(E_i + N\omega - E_f) \omega^N J_{if}^{(N)}, \quad (1)$$

$$J_{if}^{(N)} = \frac{1}{\omega^N} \sum_{s_1, \dots, s_{N-1}} \frac{\langle f | \hat{e} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} | s_{N-1} \rangle \dots \langle s_1 | \hat{e} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} | i \rangle}{(E_{s_{N-1}} - E_i - (N-1)\omega) \dots (E_{s_1} - E_i - \omega)}, \quad (2)$$

где  $\langle f, i \rangle$ ,  $E_f$ ,  $E_i$  — волновые функции и энергии конечного и начального состояний электрона,  $e$  — заряд электрона,  $\mathbf{k}$ ,  $\omega$  — волновой вектор и частота фотона,  $V$  — нормировочный объем,  $\hat{e} \equiv e_\mu \gamma_\mu$ ,  $\gamma_\mu$  — матрица Дирака,  $e_\mu$  — поляризация фотона. Суммирование по каждому из значков  $s_i$  производится по полной системе собственных функций уравнения Дирака,  $E_{s_i}$  — соответствующие собственные значения. Мы считаем, что атом взаимодействует с полем, в котором имеется всего  $\mathcal{M}$  ( $\mathcal{M} \gg N$ ) одинаковых фотонов. Переходя в [2] к нерелятивистскому приближению и производя некоторые преобразования (для  $N$ , равного 2, эти преобразования имеются в [7]), мы приходим к обычному выражению

$$J_{if}^{(N)} = \sum_{s_1, \dots, s_{N-1}} \frac{\langle f | \mathbf{e} r | s_{N-1} \rangle \dots \langle s_1 | \mathbf{e} r | i \rangle}{(E_{s_{N-1}} - \varepsilon_{i_{N-1}}) \dots (E_{s_1} - \varepsilon_{i_1})}, \quad (3)$$

где использовано обозначение  $\varepsilon_{ik} \equiv E_i + k\omega$ , а под  $E_s$ ,  $|s\rangle$  теперь следует понимать нерелятивистские энергии и волновые функции.

Рассмотрим теперь суммы общего вида

$$S^{N+1} \equiv \sum_{s_1, \dots, s_N} \frac{\langle f | A_N | s_N \rangle \dots \langle s_1 | A_0 | i \rangle}{(E_{s_N} - \varepsilon_{i_N}) \dots (E_{s_1} - \varepsilon_{i_1})}, \quad (4)$$

где  $A_0, \dots, A_{N-1}, A_N$  — произвольные операторы. Пользуясь правилами матричного умножения, сумму (4) можно свернуть в матричный элемент

$$S^{(N+1)} = \langle f | A_N \frac{1}{\hbar - \varepsilon_{i_N}} A_{N-1} \dots A_1 \frac{1}{\hbar - \varepsilon_{i_1}} A_0 | i \rangle, \quad (5)$$

где  $\hbar$  — одноэлектронный гамильтониан. При различном выборе операторов  $A_i$  к выражениям типа (5) сводятся суммы (2) или (3). Для вычисления матричного элемента (5) сформулируем вариационный принцип. Построим функционал

$$I^{(N+1)}[\psi_1 \dots \psi_{2N}] = \langle \psi_f | A_N | \psi_1 \rangle + \langle \psi_2 | A_{N-1} | \psi_3 \rangle + \dots + \langle \psi_{2N} | A_0 | \psi_i \rangle - \langle \psi_2 | \hbar - \varepsilon_{i_N} | \psi_1 \rangle - \langle \psi_4 | \hbar - \varepsilon_{i_{N-1}} | \psi_3 \rangle - \dots - \langle \psi_{2N} | \hbar - \varepsilon_{i_1} | \psi_{2N-1} \rangle, \quad (6)$$

где  $\psi_1, \dots, \psi_{2N}$  — варьируемые функции. Варьируя, получаем уравнения для экстремалей

$$\left. \begin{aligned} \psi_1 &= (\hbar - \varepsilon_{i_N})^{-1} A_{N-1} \psi_3, & \psi_2 &= (\hbar - \varepsilon_{i_N})^{-1} A_N \psi_f, \\ \psi_3 &= (\hbar - \varepsilon_{i_{N-1}})^{-1} A_{N-2} \psi_5, & \psi_4 &= (\hbar - \varepsilon_{i_{N-1}})^{-1} A_{N-1} \psi_2, \\ & \dots & & \dots \\ \psi_{2N-1} &= (\hbar - \varepsilon_{i_1})^{-1} A_0 \psi_i, & \psi_{2N} &= (\hbar - \varepsilon_{i_1})^{-1} A_1 \psi_{2N-2}. \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Нетрудно убедиться, что экстремальное значение функционала (6) равно матричному элементу (5), что и означает существование вариационного принципа. Самый простой и естественный выбор пробных функций таков:

$$\left. \begin{aligned} \psi_1 &= c_1 A_{N-1} \psi_3, & \psi_2 &= c_2 A_N \psi_f, \\ \psi_3 &= c_3 A_{N-2} \psi_5, & \psi_4 &= c_4 A_{N-1} \psi_2, \\ & \dots & & \dots \\ \psi_{2N-1} &= c_{2N-1} A_0 \psi_i, & \psi_{2N} &= c_{2N} A_1 \psi_{2N-2}. \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

При этом действие оператора резольвенты  $(\hbar - \varepsilon_{ik})^{-1}$  заменяется умножением на число. Из условия экстремума функционала (6) получается система алгебраических уравнений для коэффициентов  $c_k$ , которая легко разрешается. В результате для  $S^{(N+1)}$  получается приближенное выражение

$$S^{(N+1)} = \frac{\langle f | A_N A | i \rangle^{N+1}}{\langle f | A_N (\hbar - \varepsilon_{i_N}) A_{N-1} \dots A_0 | i \rangle \dots \langle f | A_N, \dots, A_1 (\hbar - \varepsilon_{i_1}) A_0 | i \rangle}, \quad (9)$$

представляющее собой экстремальное значение функционала (6) на классе функций (8). Если один из матричных элементов  $\langle f | A_N \dots A_{N-k} \times$

$\times (\hbar - \varepsilon_{ik}) A_{N-k-1} \dots A_0 |i\rangle$  обращается в нуль, то система уравнений (8) является недоопределенной, и выражение для  $S^{(N+1)}$  содержит произвольный параметр  $p_{N+1}$ :  $S^{(N+1)} = p_{N+1} \langle f | A_N \dots A_0 | i \rangle$ . В этом случае необходимо либо выбрать другие пробные функции, либо доопределить  $p_{N+1}$ , потребовав, чтобы выполнялись какие-либо условия, которым удовлетворяет точное выражение для амплитуды.

Выражение для амплитуды  $V_{if}^{(N)}$  процесса многофотонного поглощения связано с матричным элементом  $S$ -матрицы (1) соотношением

$$S_{if}^{(N)} = 2\pi i V_{if}^{(N)} \delta(E_i + N\omega - E_f). \quad (10)$$

Используя для  $J_{if}^{(N)}$  приближенное выражение типа (9), в котором все  $A_i = z$  (вектор  $e$  мы направили по оси  $z$ ), и преобразуя матричные элементы в знаменателе, мы получаем следующую приближенную формулу для амплитуды:

$$V_{if}^{(N)} = \frac{e^N}{i^N} \left( \frac{\omega \mathfrak{M}}{2V} \right)^{N/2} \frac{\langle f | z^N | i \rangle}{(N-1)! \prod_{k=2}^N \left( k\omega + a_N + \frac{N-k}{2} b_N \right)}, \quad (11)$$

где

$$a_N = \frac{\left\langle f \left| \frac{z^N}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right| i \right\rangle}{\langle f | z^N | i \rangle}, \quad b_N = \frac{\langle f | z^{N-2} | i \rangle}{\langle f | z^N | i \rangle}. \quad (12)$$

Вариационный принцип (6) и вариационная формула (11) будут применены в следующем разделе для расчета различных конкретных процессов.

### Многофотонные процессы на атоме водорода

Рассмотрим вначале многофотонное поглощение. Сечение процесса многофотонного поглощения с возбуждением атома  $\sigma_{if}^{(N)}$  запишем в виде

$$\sigma_{if}^{(N)} = \frac{2\pi}{j} e^{2N} \left( \frac{\mathfrak{M}\omega}{2V} \right)^N |J_{if}^{(N)}|^2, \quad (13)$$

где  $j$  — поток налетающих фотонов, а  $J^{(N)}$  определяется согласно (3). Интенсивность падающего излучения по определению равна  $I = \mathfrak{M}\hbar\omega c/V$  (в наших единицах  $I = \mathfrak{M}\omega/V$ ), поток равен  $j = \mathfrak{M}c/V$  (в наших единицах  $j = \mathfrak{M}/V$ ). Используя эти определения, в атомных единицах сечение можно переписать в виде

$$\sigma_{if}^{(N)} = (2\pi)^2 r_0 c \left( \frac{I}{I_0} \right)^{N-1} \omega |J_{if}^{(N)}|^2, \quad (14)$$

где  $r_0$  — классический радиус электрона,  $c$  — скорость света,  $I_0 = = 1.4038 \cdot 10^{17}$  Вт/см<sup>2</sup>.

Рассмотрим различные переходы. Для перехода  $1s \rightarrow 2s$  по формулам (12) для  $N$  четного (при  $N$  нечетном сечение равно нулю) получаем

$$\frac{\langle 2s | z^N | 1s \rangle}{(N-1)!} = -\frac{8\sqrt{2}}{81} N^2 (N+2) \left( \frac{2}{3} \right)^N, \quad (15)$$

$$a_N = \frac{3(N-1)}{2N(N+2)}, \quad b_N = \frac{9(N-2)}{4(N-1)(N+2)N}. \quad (16)$$

Как видно из (15), (16), для этого перехода  $N=2$  является исключительным случаем, так как  $\omega + a_2 = 0$  ( $\omega = E_{2s} - E_{1s} - 3/8$ ) и знаменатель в (11) обращается в нуль. Поэтому для  $N=2$  нужно изменить вид пробных функций, положив, например,

$$\psi_1 = c_1 r z \psi_{1s}; \quad \psi_2 = c_2 r z \psi_{2s}. \quad (17)$$

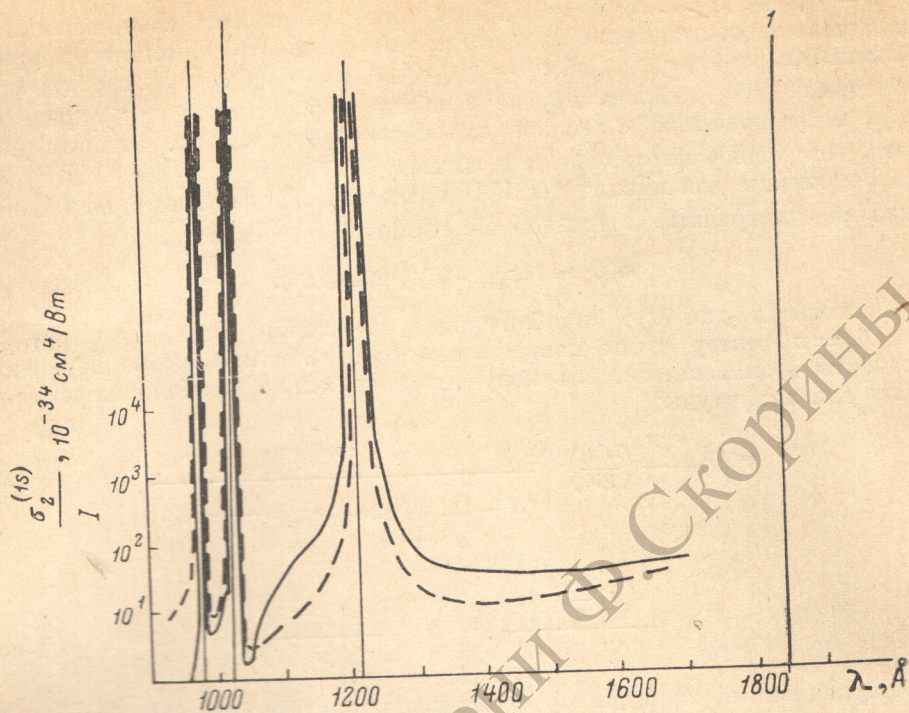


Рис. 1. Сечение двухфотонной ионизации атома водорода в основном состоянии на единицу интенсивности в зависимости от длины волны падающего света  $\lambda$ . Сплошной линией обозначены результаты, полученные вариационным методом, штриховой — результаты работы [2]. Величина сечения отложена в логарифмическом масштабе. 1 — порог двухфотонной ионизации.

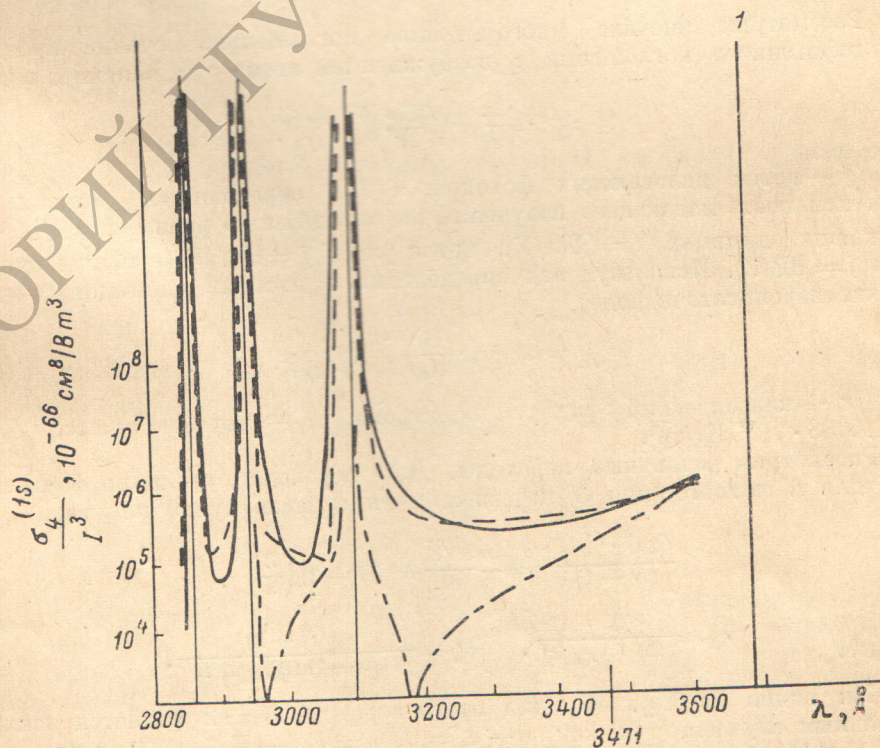


Рис. 2. Сечение четырехфотонной ионизации атома водорода в основном состоянии в зависимости от длины волны падающего света. Обозначения те же, что и на рис. 1. Штрихпунктирной линией обозначены результаты работы [4].  $\lambda=3471 \text{ \AA}$ , соответствует второй гармонике излучения рубинового лазера. 1 — порог четырехфотонной ионизации.

Переход	Число фотонов	Вариационный расчет	Точный расчет [3]
1s—2s	2	$2.84 \cdot 10^{-17}$	$2.75 \cdot 10^{-17}$
1s—2s	4	$5.70 \cdot 10^{-46}$	$1.77 \cdot 10^{-46}$
1s—2s	6	$5.65 \cdot 10^{-75}$	$4.75 \cdot 10^{-75}$
1s—3s	2	$2.40 \cdot 10^{-18}$	$2.42 \cdot 10^{-18}$
1s—3s	4	$7.80 \cdot 10^{-47}$	$1.22 \cdot 10^{-46}$
1s—2p	3	$2.20 \cdot 10^{-32}$	$7.01 \cdot 10^{-32}$
1s—2p	5	$5.78 \cdot 10^{-60}$	$9.53 \cdot 10^{-61}$

Аналогичным образом вычисляются матричные элементы  $\langle f | z^N | i \rangle$ ,  $a_N$  и  $b_N$  для других переходов. Как видно, вычисления сечений  $\sigma_{if}^{(N)}$  при любых значениях  $N$  элементарны. Результаты расчетов для величины  $\sigma_{if}^{(N)}/I^{N-1}$  в единицах  $(\text{см}^2/\text{Вт})^{N-1} \text{см}^2/\text{с}$  приведены в таблице. Там же приведены

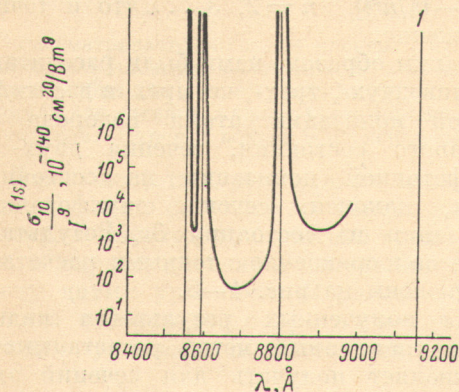


Рис. 3. Сечение десятифотонной ионизации атома водорода в основном состоянии в зависимости от длины волны падающего света.

Сечение получено вариационным методом. 1 — порог десятифотонной ионизации.

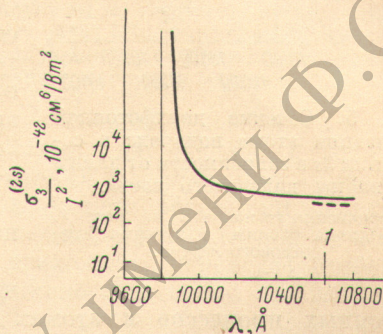


Рис. 4. Сечение трехфотонной ионизации атома водорода в состоянии 2s в зависимости от длины волны падающего света.

Сплошной линией обозначены результаты, полученные вариационным методом, штриховой — результаты работы [2]. 1 — длина волны и излучения неодимового лазера.

результаты точных расчетов. Соответствие результатов можно считать удовлетворительным.

Рассмотрим теперь процессы многофотонной ионизации. Сечение записываем в виде (в атомных единицах)

$$\sigma_{if}^{(N)} = \frac{r_0 c}{2\pi} \left(\frac{I}{I_0}\right)^{N-1} \omega \sum_{l=0}^{\infty} |J_{ifl}^{(N)}|^2, \quad (18)$$

где через  $J_{ifl}^{(N)}$  обозначено выражение (3), в котором состояние  $f$  описывается функцией сплошного спектра  $\psi_{El}$  ( $E$  — энергия вылетающего электрона,  $l$  — его орбитальный момент). Функция  $\psi_{El}$  предполагается нормированной по шкале энергий. Для вычисления каждого члена суммы по  $l$  в (18) мы применим формулу (11). Матричный элемент  $\langle El | z^N | i \rangle$ , лишь при  $l \leq N$  и  $N - l$  четном. Для коэффициентов  $a_N$  и  $b_N$  при различных значениях  $l$  получаются выражения

$$a_{Nl} = \frac{(1+ik)}{(N+l+2)} \frac{F\left(\frac{i}{k} + l + 1, -N + l, 2l + 2; \frac{2k}{k+i}\right)}{F\left(\frac{i}{k} + l + 1, -N + l - 1, 2l + 2; \frac{2k}{k+i}\right)}, \quad (19)$$

$$b_{Nl} = \frac{(1+ik)^2}{(N+l+2)} \frac{(N-l)}{N(N-1)} \frac{F\left(\frac{i}{k} + l + 1, -N + l + 1, 2l + 2; \frac{2k}{k+i}\right)}{F\left(\frac{i}{k} + l + 1, -N + l - 1, 2l + 2; \frac{2k}{k+i}\right)}, \quad (20)$$

где  $F$  — гипергеометрическая функция,  $k^2 = 2E$ . Благодаря условию  $l \ll N$  ряды для гипергеометрических функций в (19), (20) обрываются. Нетрудно убедиться, что  $a_{NN} = (k^2 + 1)/2N = -\omega$ , т. е. знаменатель в (11) опять обращается в нуль. Однако теперь мы не меняем вида пробных функций, а подбираем произвольные постоянные, возникающие в выражениях

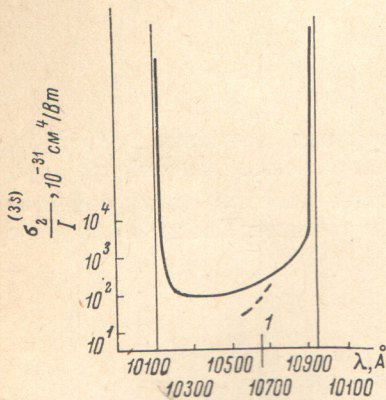


Рис. 5. Сечение двухфотонной ионизации атома водорода в состоянии  $3s$  в зависимости от длины волны падающего света.

Обозначения те же, что на рис. 4.  
1 — длина волны излучения неодимового лазера.

для  $J_{ifN}^{(N)} = p_{NN} \langle EN | z^N | i \rangle$ , исходя из требования, чтобы амплитуда процесса имела правильную асимптотику при  $\omega \rightarrow \infty$ , а также правильные полюса. Последнее требование, например, при  $N = 2$  достигается следующим выбором параметра  $p_{22}$ :  $p_{22}(\omega) = \Gamma[2 - (1/\sqrt{1 - 2\omega})]$ . При таком выборе  $p_{22}$  выражение (11) для амплитуды имеет полюса при тех же значениях  $\omega = (1/2) \times [1 - (1/n^2)]$ ,  $n = 2, 3, \dots$ , что и точное выражение.

Таким образом, нами были рассчитаны сечения двух-, трех-, четырех- и десятифотонной ионизации атома водорода из основного состояния, сечения двух- и трехфотонной ионизации из состояния  $2s$  и, наконец, сечение двухфотонной ионизации из состояния  $3s$ . Результаты расчетов и сравнение с точными расчетами изображены на рис. 1—5.

Из полученных результатов видно, что вариационный метод расчета многофотонных процессов в атомах позволяет получать для сечений значения, незначительно отличающиеся от точных. Простота расчетов по этому методу, а также возможность учитывать процессы с большим числом фотонов являются основными его достоинствами.

#### Литература

- [1] Б. А. Зон, Н. Л. Манаков, Л. П. Рапопорт. ЖЭТФ, 55, 924, 1968; ЖЭТФ, 60, 1246, 1971.
- [2] С. И. Ветчинкин, С. В. Христенко, А. Ф. Шестаков. Докл. XVII Всесоюз. съезда по спектроскопии, часть II, М., 1972.
- [3] I. Gontier, M. Trahin. Phys. Rev., 172, 83, 1968; Phys. Rev., 44, 1907, 1971; Phys. Rev. Lett., 436, 463, 1971.
- [4] H. V. Webb, A. Gold. Phys. Rev., 143, 1, 1965.
- [5] H. R. Reiss. Phys. Rev., 41, 803, 1970; Phys. Rev., 46, 817, 1972.
- [6] Л. Н. Лабзовский. ТМФ, 16, 178, 1973.
- [7] А. И. Ахиезер, В. Б. Берестецкий. Квантовая электродинамика, М., 1969.

Поступило в Редакцию 10 сентября 1974 г.