УДК 539.184.01

МНОГОФОТОННАЯ ИОНИЗАЦИЯ АТОМОВ ЧЕРЕЗ РЕЗОНАНСНЫЙ ПРОМЕЖУТОЧНЫЙ УРОВЕНЬ

И. В. Лебедев

При теоретическом рассмотрении многофотонных переходов в атомах вероятность ионизации P обычно записывают в виде $P \sim F^{2m}$, где m — число фотонов, определяемое из закона сохранения энергии, F — напряженность светового поля. Покажем, что в случае промежуточного резонанса P есть более сложная функция F, чем просто степенная, и только в одном из предельных случаев сводится к ней. Взаимодействие электрона со светом записывается в форме

$$H_{\mathrm{I}} = \frac{1}{2} e^{\frac{iH_0 t}{h}} (\mathbf{x} \cdot \mathbf{F} e^{-i\omega t} + \mathbf{x} \cdot \mathbf{F}^* e^{i\omega t}) e^{-\frac{iH_0}{h} t}, \qquad (1)$$

H_0 — невозмущенный атомный гамильтониан. Интегрируя уравнение Шредингера от момента включения взаимодействия t_0 до t, подставляя полученное выражение обратно в уравнение и т. д. после $(n-1)$-кратной подстановки найдем

$$ih \frac{\partial \psi}{\partial t} = H_{\mathrm{I}} \left[\psi(t_0) + \frac{1}{ih} \int_{t_0}^{t} H_{\mathrm{I}}(t_1)\, dt_1 \left[\psi(t_0) + \ldots \right.\right.$$

$$\left.\left. \ldots \frac{1}{ih} \int_{t_0}^{t_{n-1}} H_{\mathrm{I}}(t_{n-1})\, \psi(t_{n-1})\, dt_{n-1} \right] \ldots \right]. \qquad (2)$$

Рассмотрим переходы между двумя ближайшими резонансными состояниями $|s\rangle$ и $|f\rangle$, полагая расстройку $\frac{E_f - E_s}{h} - n\omega \ll \omega$. Основной вклад в вероятность перехода вносится последним членом. Сохраним также ответственное за сдвиг уровней слагаемое, содержащее H_{I} во второй степени, подставляя в него вместо $\psi(t_0) \to \psi(t)$. Разложим ψ по полному набору состояний

$$\psi = \sum_i b_i(t)\, |i\rangle, \quad H_0 |i\rangle = E_i |i\rangle, \qquad (3)$$

предполагая $b_i(t)$ меняющимся медленнее, чем $e^{i\omega t}$ и $e^{\frac{it}{h}(E_s - E_i) \pm ir\omega t}$, $r = 1, 2, n-$ -1. Ниже показано, что $b(t)$ зависит от времени как $e^{\pm i\Omega t}$, где $\Omega \ll \omega$. С точностью до Ω/ω можно записать

$$\int_{t_0}^{t} b_i(t)\, e^{i\omega t} dt = \left[b_i(t) \frac{e^{i\omega t}}{i\omega} \right]\Bigg|_{t_0}^{t} \quad \text{т. д.} \qquad (4)$$

Используя (3), (4), переходя к $a_i = b_i e^{i\varphi_i t}$, где φ_i — штарковский сдвиг, и оставляя максимальные степени $e^{\pm i\omega t}$, получим

$$\left.\begin{aligned} i \frac{\partial a_f(t)}{\partial t} &= W_{fs} a_s(t) \exp(i\Delta\omega t) - i \frac{\Gamma}{2} a_f(t), \\ i \frac{\partial a_s(t)}{\partial t} &= W_{sf} a_f(t) \exp(-i\Delta\omega t). \end{aligned}\right\} \qquad (5)$$

Здесь

$$\left.\begin{aligned} \Delta\omega &= \frac{E_f - E_s}{h} - n\omega + \varphi_f - \varphi_s, \\ \varphi_i &= \frac{1}{4h} \sum_r \left[\frac{\langle i | \mathbf{x} \cdot \mathbf{F}^* | r\rangle \langle r | \mathbf{x} \cdot \mathbf{F} | i\rangle}{E_i - E_r + h\omega} + \frac{\langle i | \mathbf{x} \cdot \mathbf{F} | r\rangle \langle r | \mathbf{x} \cdot \mathbf{F}^* | i\rangle}{E_i - E_r - h\omega} \right], \\ W_{fs} = W_{sf}^* &= \sum_{q, r \ldots p} \frac{\langle f | e\mathbf{x} \cdot \mathbf{F} | p\rangle \ldots \langle r | e\mathbf{x} \cdot \mathbf{F} | q\rangle \langle q | e\mathbf{x} \cdot \mathbf{F} | s\rangle}{2^n h (E_s - E_q + h\omega)(E_s - E_r + 2h\omega) \ldots (E_s - E_p + (n-1)h\omega)}. \end{aligned}\right\} \qquad (6)$$

Для верхнего состояния было введено затухание Γ, описывающее ионизацию с поглощением еще $l = m - n$ квантов. Решая методом преобразования Фурье с подстановкой $a_s(t)|_{t=0} = 1$, имеем

$$a_s(t) = e^{-\left(\frac{i\Delta\omega}{2} + \frac{\Gamma}{4}\right)t} \left[\cos \Omega t + \frac{\Gamma + 2i\Delta\omega}{4\Omega} \sin \Omega t \right], \quad \Omega = \sqrt{|W_{fs}|^2 - \left(\frac{i\Delta\omega}{2} + \frac{\Gamma}{4}\right)^2}. \qquad (7)$$

В случае нулевой расстройки и сильного поля

$$|a_s(t)|^2 = \frac{1}{2} e^{-\frac{\Gamma}{2}t} \left[1 + \frac{\Gamma^2}{16\Omega^2} + \left(1 - \frac{\Gamma^2}{16\Omega^2}\right)\cos 2\Omega t + \frac{\Gamma}{2\Omega}\sin 2\Omega t\right]. \tag{8}$$

Вероятность ионизации $P = \Gamma \sim F^{2l}$. Решение (8) описывает периодические колебания между уровнями $|s\rangle$ и $|f\rangle$, происходящие с затуханием, равным половине затухания верхнего уровня, аналогично однофотонным переходам [3]. При $n=2$ получается известный результат [4]. В случае слабого сигнала $\left|\frac{i\Delta\omega}{2} + \frac{\Gamma}{4}\right| \gg$ $\gg W_{fs}$, разлагая Ω в ряд до второго члена, получим подобно [8]

$$|a_s(t)|^2 = e^{-jt}, \quad j = \frac{\Gamma |W_{fs}|^2}{(\Delta\omega)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}. \tag{9}$$

Электрон, попавший на возбужденный уровень, сразу ионизируется, и вероятность P определяется скоростью переходов $s \to f$. При большой расстройке $(2\Delta\omega \gg \Gamma)$ $j = 4|W_{fs}|^2 \Gamma^{-1} \sim F^{2n-2l}$, при малой расстройке $(2\Delta\omega \ll \Gamma)$ $j = \Gamma |W_{fs}|^2 \times$ $\times (\Delta\omega)^{-2} \sim F^{2n+2l}$. Таким образом, зависимость $P \sim F^{2m}$ справедлива только вдали от резонанса в промежуточном состоянии.

Выбор решения (8) или (9) диктуется соотношением между Γ, W_{fs} и $\Delta\omega$.

Рассмотрим ионизацию калия [1], осуществляемую светом с длиной волны $\lambda =$ $= 10\,665$ Å (при 3-фотонном резонансе для перехода $4s \to 4f$) и $F = 1.5 \cdot 10^6$ в/см. Эффективное сечение ионизации верхнего $4f$-состояния с переходом в g-состояние сплошного спектра при поглощении одного фотона подсчитывалось стандартным [7] образом и составило $8 \cdot 10^{-18}$ см^2. Соответственно $\Gamma = 1.3 \cdot 10^{11}$ сек.$^{-1}$. Согласно правилам отбора, первым промежуточным состоянием может быть только p, а вторым — d-состояние. Используя кулоновские волновые функции с эффективным главным квантовым числом [5], можно убедиться, что с подавляющей вероятностью переход осуществляется по схеме: $4s \to 4p \to 3d \to 4f$. Например, квадрат матричного элемента $|\langle 4p | r | 4s\rangle|^2$ равен $25.0\ a^2$, в то время как (a — боровский радиус)

$$\langle 4s | r^2 | 4s\rangle = \sum_m \langle 4s | r | m\rangle \langle m | r | 4s\rangle = 26.1 a^2. \tag{10}$$

$$W_{fs} = \frac{e^3}{8h} \sum_{p,\,d} \frac{\langle 4f | \mathbf{x}\cdot\mathbf{F} | d\rangle \langle d | \mathbf{x}\cdot\mathbf{F} | p\rangle \langle p | \mathbf{x}\cdot\mathbf{F} | 4s\rangle}{(E_{4s} + 2h\omega - E_d)(E_{4s} + h\omega - E_p)} \simeq$$

$$\simeq \frac{e^3 \langle 4f | (\mathbf{x}\cdot\mathbf{F})^3 | 4s\rangle}{8h (E_{4s} + 2h\omega - E_{3d})(E_{4s} + h\omega - E_{4p})}. \tag{11}$$

Роль неосновных (всех, кроме $4p$ и $3d$) состояний в (11) оказывается преувеличенной, поскольку для них соответствующий знаменатель больше. С другой стороны, оставляя в левой части (11) только слагаемое, соответствующее переходу через $4p$ и $3d$-уровни, и вычисляя матричный элемент по таблицам Бейтса—Дамгаард [5], придем к результату, отличающемуся на 50%, что следует считать хорошим совпадением. Для численных оценок принимается полученное из правой части (11) значение $\langle 4f | (\mathbf{x}\cdot\mathbf{F})^3 | 4s\rangle$, равное $27a^3$; W_{fs} составит $1 \cdot 10^{10}$ сек.$^{-1}$. Из-за большой полуширины линии δ падающего излучения ($\delta \sim 7 \cdot 10^{11}$ сек.$^{-1}$) необходимо ввести распределение по частоте в пределах линии, которое для оценки величины вероятности ионизации P (но не функционального вида) положим лоренцовским. Используя (9), полагая $\Gamma/2 \ll \delta$ и вынося медленно меняющиеся множители за знак интеграла, найдем

$$P = \frac{\Gamma\delta}{\pi} \int_0^\infty \frac{d\omega\, |W_{fs}|^2}{[(\omega - \omega_0)^2 + \delta^2]\left[(\Delta\omega)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}\right]} \simeq \frac{\Gamma}{\pi\delta} \int_0^\infty \frac{d\omega\, |W_{fs}|^2}{(\Delta\omega)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} =$$

$$= \frac{2|W_{fs}|^2_{\omega=\omega_0}}{3\delta} = 1.6 \cdot 10^8 \text{ сек.}^{-1}.$$

При удалении от резонанса вероятность ионизации быстро падает; например, при $\Delta\omega = 20$ Å $P = 1.5 \cdot 10^6$ сек.$^{-1}$. Большая величина P при резонансе дает основания предполагать, что экспериментально полученная зависимость $P \sim F^3$ [1] связана с влиянием пространственного распределения F вблизи фокуса, приводящим к зависимости именно такого вида безотносительно к квантовости процесса. Используя ту же методику, можно подсчитать вероятность ионизации K и Na светом рубинового и неодимового лазеров.

С учетом квантовости процессов, близости к резонансам и величин матричных элементов получается следующая система, показывающая совокупность состояний, вносящих главный вклад в матричный элемент (табл. 1).

Таблица 1

Атом	Ионизация рубиновым лазером	Ионизация неодимовым лазером
K	$4s \to 4p \to 3d \to f_{\text{непр.}}$	$4s \to 4p \to 3d \to 4f \to g_{\text{непр.}}$
Na	$3s \to 3p \to 3d \to f_{\text{непр.}}$	$3s \to 3p \to 3d \to 4f \to 5g \to e_{\text{непр.}}$

Таблица 2

	$3d \to f$ (Na)	$3d \to f$ (K)	$4f \to g$ (K)	$5g \to e$ (Na)
σ, см^2	$2.0 \cdot 10^{-17}$	$5.2 \cdot 10^{-17}$	$8.0 \cdot 10^{-18}$	$7.0 \cdot 10^{-18}$
Г, сек.$^{-1}$	$8.4 \cdot 10^3 F^2$	$2.2 \cdot 10^4 F^2$	$5.2 \cdot 10^3 F^2$	$4.5 \cdot 10^3 F^2$
Г при $F = 3 \cdot 10^6$ в/см	$8.4 \cdot 10^{11}$	$2.2 \cdot 10^{12}$	$5.2 \cdot 10^{11}$	$4.5 \cdot 10^{11}$

Таблица 3

	Ионизация рубиновым лазером		Ионизация неодимовым лазером	
	$3s \to 3d$ (Na)	$4s \to 3d$ (K)	$3s \to 5g$ (Na)	$4s \to 4f$ (K)
$\langle \| (\varepsilon \cdot x)^n \| \rangle$	$5.7a^2$	$8.7a^2$	$106a^4$	$27a^3$
W_{fs}, сек.$^{-1}$	$2 \cdot 10^4 F^2$	$5 \cdot 10^4 F^2$	$9 \cdot 10^{-8} F^4$	$1 \cdot 10^{-1} F^3$
P, сек.$^{-1}$	$7 \cdot 10^{-16} F^6$	$3 \cdot 10^{-17} F^6$	$2 \cdot 10^{-39} F^{10}$	$3 \cdot 10^{-26} F^8$
P, сек.$^{-1}$ при $F = 3 \cdot 10^6$ в/см	$7 \cdot 10^8$	$3 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^6$ при $F = 1.0 \cdot 10^7$ в/см	$4 \cdot 10^6$
Эксперимент [10]	—	—	$10^{7\pm1}$ при $F = 10^7$ в/см	$10^{7\pm1}$
Вычисления Мортона [6]	$7 \cdot 10^8$	$7 \cdot 10^7$	$9 \cdot 10^8$	$5 \cdot 10^6$
Вычисления Бебба [9]	$6 \cdot 10^9$	$4 \cdot 10^6$	—	—

Хотя состояние $4d$ в K ближе к резонансу, чем $3d$, матричный элемент перехода $4p \to 4d$ настолько мал, что им можно пренебречь.

Вычисление эффективных сечений перехода из последнего состояния дискретного спектра в непрерывный дает (табл. 2):

Для частот перехода W_{fs}, матричных элементов $\langle |(\varepsilon \cdot x)^n| \rangle$ (ε — поляризация света) и вероятностей ионизации P находим (табл. 3).

Интересно отметить тот факт, что при ионизации рубиновым лазером вероятность ионизации возбужденного $3d$-состояния оказывается меньше, чем W_{fs}. Однако большая расстройка по частоте не позволяет осуществить насыщения для перехода $s \to 3d$.

Литература

[1] Г. А. Делоне, Н. Б. Делоне. ЖЭТФ, Письма в редакцию, *10*, 414, 1969.
[2] И. Н. Арутюнян, Г. А. Аскарьян, В. А. Погосян. ЖЭТФ, *58*, 1020, 1970.
[3] W. Zernik. Phys. Rev., *132*, 320, 1963; С. Г. Раутиан. Тр. ФИАН, *43*, 3, 1968.
[4] И. Д. Воропаев, А. Н. Ораевский. Препринт ФИАН, 1966.
[5] D. R. Bates, A. Damgaard. Phil. Trans. Roy. Soc., *242*, 101, 1949.
[6] V. M. Morton. Proc. Phys. Soc., *92*, 301, 1967.
[7] Г. Бёте, Э. Солпитер. Квантовая механика атомов. М., 1960.
[8] Л. П. Котова, М. В. Терентьев. ЖЭТФ, *52*, 732, 1967.
[9] H. B. Bebb. Phys. Rev., *151*, 23, 1967.
[10] Н. Б. Делоне, Л. В. Келдыш. Препринт ФИАН, 1970.

Поступило в Редакцию 18 августа 1970 г.