

55

A 12

TK 42-022

1972  
international book year



KFKI-72-57

Й. Ш. Бакош  
В. Д. Овсянников  
Л. П. Рапопорт

ВЛИЯНИЕ ВЫНУЖДЕННЫХ РЕЗОНАНСНЫХ  
ПЕРЕХОДОВ НА ВЕРОЯТНОСТЬ  
МНОГОФОТОННОЙ ИОНИЗАЦИИ АТОМА

*Hungarian Academy of Sciences*

CENTRAL  
RESEARCH  
INSTITUTE FOR  
PHYSICS

BUDAPEST



2017

ВЛИЯНИЕ ВЫНУЖДЕННЫХ РЕЗОНАНСНЫХ ПЕРЕХОДОВ  
НА ВЕРОЯТНОСТЬ МНОГОФОТОННОЙ ИОНИЗАЦИИ АТОМА

Й.Ш. Бакош, В.Д. Овсянников\*, Л.П. Рапопорт\*

Центральный институт физических исследований, Будапешт, Венгрия

Физико-оптический отдел

\* Госуниверситет, Воронеж

## РЕЗЮМЕ

Учитывается влияние вынужденного перехода вниз из исходного состояния на функциональную зависимость многофотонной ионизации. Происходит расщепление линий спонтанного перехода из исходного состояния.

## ABSTRACT

The dependence of the multiphoton ionization probability on the light intensity is calculated for the case of induced one-photon transition taking place downwards from the initial state of the ionization process. The line splitting originating from the initial state is also taken into account.

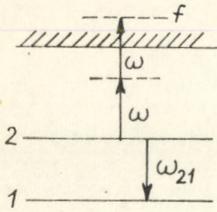
## KIVONAT

Indukált egyfotonos lefele történő átmenet erősen befolyásolja a több fotonos ionizáció valószínűségének intenzitás függését. A fényvel való kölcsönhatás az ionizáció kezdő állapotának felhasadásához is vezet.

1. Влияние структуры атома на вероятность многофотонной ионизации полем сильной электромагнитной волны изучалось в ряде работ экспериментально [1] и теоретически [2].

В настоящей работе рассматривается случай многофотонной ионизации атома из возбужденного состояния при наличии резонансного перехода в одно из нижележащих состояний в полях напряженности  $F = 10^4 \div 5 \cdot 10^6$  В/см. Особенность данного процесса состоит в том, что сильное внешнее поле смешивает резонансно-взаимодействующие состояния, поэтому последующая многофотонная ионизация происходит не из невозмущенного полем состояния /как в обычной теории возмущений/, а из получающихся новых нестационарных состояний атома во внешнем поле. Такой механизм ионизации обосновывается тем, что характерное время дипольных резонансных переходов значительно меньше времени перехода электрона в непрерывный спектр. Рассматриваемая ситуация реализуется, например, для атома неона. При двухфотонной ионизации неона из возбужденного  $2s_2$  - состояния полем неодимового лазера  $[\lambda = 1.06 \mu]$  имеется дипольный резонансный переход "вниз" в состояние  $2p_7$  [3] с расстройкой частоты  $\sim 20 \div 25$  см<sup>-1</sup>.

2. Пусть на атом действует поле лазерного излучения  $F \cos \omega t$ . Как говорилось во введении, можно процесс двухфотонной ионизации полем рассматривать из уже приготовленного смешанного состояния резонансных уровней 1 и 2 /см. схему/, частота перехода между которыми есть  $\omega_{21} \equiv E_2 - E_1 = \omega + \epsilon_0$ , где  $\epsilon_0 \ll \omega$ ,  $\epsilon_0$  - расстройка частоты. Решение задачи о поведении двухуровневой системы в поле классической электромагнитной волны хорошо известно [4,5].



В дипольном приближении система уравнений для коэффициентов разложения нестационарной волновой функции  $\phi(\vec{r}, t)$  по собственным функциям невозмущенного гамильтониана атома  $\psi_1$  и  $\psi_2$  :  $\phi(\vec{r}, t) = a_1(t)\psi_1 + a_2(t)\psi_2$  есть:

g.s.

$$i(\dot{a}_1 + \gamma_0 a_1) = a_2 V_{12} e^{-i\epsilon_0 t}$$

/1/

$$i(\dot{a}_2 + \gamma_0 a_2) = a_1 V_{21} e^{i\epsilon_0 t}$$

где  $2\gamma_0$  - релаксационная ширина уровней 1,2 / для простоты мы полагаем  $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma_0$  /.

$V_{12} = V_{21}^* = \frac{1}{2} (\hat{F} \hat{d})_{12}$  - матричный элемент оператора возмущения

$\hat{V} = \frac{1}{2} \hat{F} \hat{d} / \hat{d}$  - дипольный момент атома/.

Решение системы /I/ ищется при начальных условиях, соответствующих бесконечно-медленному включению поля при  $t = -\infty$ .

Первая пара решений  $a_1^{(1)}(t)$ ,  $a_2^{(1)}(t)$ , соответствующая начальному условию  $\phi(\vec{r}, t) = \psi_1$  при  $t \rightarrow -\infty$  есть

$$a_1^{(1)}(t) = c_1^{(1)} e^{-i\mu_2 t - \gamma_0 t}, \quad a_2^{(1)}(t) = c_2^{(1)} e^{i\mu_1 t - \gamma_0 t} \quad /2/$$

где

$$\mu_{1(2)} = \frac{\epsilon_0}{2} \left( \pm \sqrt{\frac{\epsilon_0^2}{4} + |V_{12}|^2} \right) \quad /3/$$

Вторая пара решений  $a_1^{(2)}$ ,  $a_2^{(2)}$ , соответствующих начальному условию  $\phi(\vec{r}, t) = \psi_2$  при  $t \rightarrow -\infty$  есть

$$a_1^{(2)}(t) = c_1^{(2)} e^{-i\mu_1 t - \gamma_0 t}, \quad a_2^{(2)}(t) = c_2^{(2)} e^{i\mu_2 t - \gamma_0 t} \quad /4/$$

где

\* В статье используется атомная система единиц.

$$c_1^{(i)} = - \frac{\mu_i}{V_{12} \sqrt{1 + \frac{\mu_i^2}{|V_{12}|^2}}}, \quad c_2^{(i)} = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\mu_i^2}{|V_{12}|^2}}}$$

Применяя теорию возмущений для амплитуды перехода в состояние непрерывного спектра  $\psi_f$ , например, из начального состояния  $\phi_1$  /2/, получим:

$$i \dot{a}_f = \left[ c_2^{(1)} - c_1^{(1)} \frac{V_{21}}{\mu_1 + i\gamma_0} \right] W_{f2} e^{-i(\omega_{2f} - \mu_1 + 2\omega - i\gamma_0)t} \quad /5/$$

где

$$W_{f2} = \sum_m \frac{V_{fm} V_{m2}}{E_2 - \mu_1 + \omega - i\gamma_0 - E_m} \quad /6/$$

или, вводя функцию Грина электрона, совершающего переход:

$$G_E(\vec{r}, \vec{r}') = \sum_m \frac{\psi_m(\vec{r}) \psi_m(\vec{r}')}{E - E_m}$$

и учитывая, что  $\gamma_0 \ll |E_2 + \omega - \mu_1 - E_m|$ ,

$$W_{f2} = \langle \psi_f(\vec{r}) | \hat{V}(\vec{r}) G_{E_2 - \mu_1 + \omega}(\vec{r}, \vec{r}') \hat{V}(\vec{r}') | \psi_2(\vec{r}') \rangle \quad /7/$$

Аналогичным образом можно записать уравнение для амплитуды ионизации из состояния  $\phi_2$  /4/:

$$i \dot{a}_f = \left[ c_2^{(2)} - c_1^{(2)} \frac{V_{21}}{\mu_2 + i\gamma_0} \right] W_{f2} e^{-i(\omega_{2f} - \mu_2 + 2\omega - i\gamma_0)t} \quad /8/$$

Оценки показывают, что в полях напряженности  $F < 10^7 \text{ В/см}$  характерное время перехода между состояниями  $\phi_1$  и  $\phi_2$ , соответствующего некогерентному рассеянию фотонов лазерного излучения [6], значительно меньше времени перехода электрона в непрерывный спектр. Поэтому естественно считать, что в момент ионизации электрон может с одинаковой вероятностью находиться в любом из этих состояний. Тогда выражение для вероятности ионизации сле-

дует усреднить по  $\phi_1$  и  $\phi_2$  с весом  $1/2$ . Окончательно получим:

$$dW_f = \frac{|W_{f2}|^2}{8\pi^2} \left\{ \frac{\sqrt{2(E_0 - \mu_1)}}{1 + \frac{\mu_1^2}{|V_{12}|^2}} \left( 1 + \frac{3\mu_1^2}{\mu_1^2 + \gamma_0^2} \right) + \frac{\sqrt{2(E_0 - \mu_2)}}{1 + \frac{\mu_2^2}{|V_{12}|^2}} \left( 1 + \frac{3\mu_2^2}{\mu_2^2 + \gamma_0^2} \right) \right\} d\Omega \quad /9/$$

где  $E_0 = E_2 + 2\omega - I$ ,  $I$  - потенциал ионизации,  $d\Omega$  - элемент телесного угла. При этом следует помнить, что энергии электронов, вылетающих из состояний  $\phi_1$  и  $\phi_2$  отличаются на величину

$$E_f^{(2)} - E_f^{(1)} = 2 \sqrt{\frac{\epsilon_0^2}{4} + |V_{12}|^2}$$

и в /9/ учитываются электроны ионизации обоих типов.

Выражение /9/ можно переписать в виде:

$$dW_f = dW^{(P)} \cdot \varphi(F) \quad /10/$$

где  $dW^{(P)}$  - вероятность двухфотонной ионизации, рассчитанная по теории возмущений без учёта резонанса с нижним уровнем, а

$$\varphi(F) = \frac{1}{2} \left\{ \sqrt{1 - \frac{\mu_1}{E_0}} \frac{1 + \frac{3\mu_1^2}{\mu_1^2 + \gamma_0^2}}{1 + \frac{\mu_1^2}{|V_{12}|^2}} + \sqrt{1 - \frac{\mu_2}{E_0}} \frac{1 + \frac{3\mu_2^2}{\mu_2^2 + \gamma_0^2}}{1 + \frac{\mu_2^2}{|V_{12}|^2}} \right\} \quad /11/$$

- функция, учитывающая влияние резонансных переходов "вниз" на процесс ионизации. При точном резонансе,  $\epsilon_0 = 0$ :

$$\varphi(F) = \frac{1}{4} \left\{ \sqrt{1 - \frac{|V_{12}|}{E_0}} \left( 1 + \frac{3|V_{12}|^2}{|V_{12}|^2 + \gamma_0^2} \right) + \sqrt{1 + \frac{|V_{12}|}{E_0}} \left( 1 + \frac{3|V_{12}|^2}{|V_{12}|^2 + \gamma_0^2} \right) \right\}$$

/11'/

Из выражения /11'/ видно, что

$$\varphi(F) \approx \begin{cases} 1/2 & |V_{12}|^2 \ll \gamma_0^2 \\ 2 & |V_{12}|^2 \gg \gamma_0^2 \end{cases}$$

Увеличение расстройки  $\epsilon_0$  приводит к понижению вероятности  $dW_f$  (мы не рассматриваем пороговых явлений и считаем, что  $\frac{|\mu_1(2)|}{E_0} \ll 1$ ).

Анализ формул /9/-/II/ показывает, что для напряженности лазерного поля, при которой  $|V_{12}| \approx \gamma_0$ , функциональная зависимость вероятности ионизации  $dW_f(F)$  может существенно отличаться от получающейся по теории возмущений

$$dW^{(P)}(F) \sim (F^2)^K \quad /12/$$

где  $K$  - число фотонов лазерного поля, необходимое для ионизации атома.  $dW_f$  растет с ростом  $F$  быстрее, чем по формуле /12/.

3. Конкретно нами был исследован случай двухфотонной ионизации возбужденного атома неона. Для возбужденных состояний этого атома осуществляется промежуточный тип связи -  $j\ell$  - связь / $j$  - полный момент остова,  $\ell$  - орбитальный момент возбужденного электрона/. В этой схеме теоретическая величина дипольного матричного элемента перехода  $2s_2+2p_7$  равна нулю в соответствии с правилом отбора для полного момента остова:  $\Delta j=0$  [7]. Однако  $j$  является приближенным квантовым числом, поэтому в действительности дипольный матричный элемент отличен от нуля. Для его определения мы воспользовались экспериментальными данными для интенсивности линий неона, соответствующих интересующему нас переходу  $2s_2+2p_7$  и разрешенному правилами отбора переходу  $2s_2+2p_4$  [8]. Нетрудно показать, что отношение квадратов модулей приведенных дипольных матричных элементов двух переходов  $D_1^2$  и  $D_2^2$  выражается через отношение интенсивностей линий соответствующих этим переходом  $I_1/I_2$ , следующим образом:

$$\frac{|D_1|^2}{|D_2|^2} = \frac{I_1}{I_2} \left( \frac{\omega_2}{\omega_1} \right)^4 \frac{2J_1 + 1}{2J_2 + 1}, \quad /13/$$

где  $\omega_1, \omega_2$  - частоты,  $2J_1+1, 2J_2+1$  - статистические веса начальных состояний рассматриваемых переходов.

Вычисление приведенного матричного элемента разрешенного перехода  $2s_2+2p_4$  выполняется с помощью таблиц Бейтса-Дамгаарда [9].

Полученный таким путём матричный элемент перехода  $2S_2 \rightarrow 2P_7$  в неоне имеет вид:

$$V_{12} = \frac{1}{2} F C_{J_2 M_2 10}^{J_1 M_1} \frac{D}{\sqrt{2J_2 + 1}}, \quad D = 1.94 \quad /14/$$

где  $C_{J_2 M_2 10}^{J_1 M_1}$  - коэффициент Клебша-Гордона,  $J_1 M_1, J_2 M_2$  - квантовые числа, соответствующие полным моментам атома и их проекциям в состояниях  $2P_7, 2S_2$ . При этом учтено, что лазерное поле имеет плоскую поляризацию. При циркулярной поляризации сильного электромагнитного поля смешивания уровней, подобного рассмотренному, не возникает, поэтому этот случай следует рассмотреть отдельно.

Выражение /14/ показывает, что при ионизации неона из состояния  $2S_2$  имеются две пары резонансно взаимодействующих состояний с  $M_1 = M_2 = \pm 1$ . Пара состояний с  $M_1 = M_2 = 0$  дипольно не взаимодействует. Поэтому после интегрирования по углам вылета электрона, суммирования по конечным и усреднения по начальным состояниям функция  $\varphi(F)$  приобретает следующий вид:

$$\varphi(F) = \frac{1}{3} \left\{ 1 + \sqrt{1 - \frac{\mu_1}{E_0}} \frac{1 + \frac{3\mu_1^2}{\mu^2 + \gamma_0^2}}{1 + 6 \frac{\mu_1^2}{(FD)^2}} + \sqrt{1 - \frac{\mu_2}{E_0}} \frac{1 + \frac{3\mu_2^2}{\mu_2^2 + \gamma_0^2}}{1 + 6 \frac{\mu_2^2}{(FD)^2}} \right\} \quad /15/$$

где

$$\mu_{1(2)} = \frac{\epsilon_0}{2} \pm \sqrt{\frac{\epsilon_0^2}{4} + \frac{(FD)^2}{6}}$$

На рис. 1-2 приведены графики этой функции при различных расстройках  $\epsilon_0$  и релаксационных ширинах  $\gamma_0$ . По оси абсцисс отложена величина  $\frac{F}{10^4}$  в логарифмическом масштабе. Цифры около линий указывают соответствующие расстройки  $\epsilon_0$  в  $\text{см}^{-1}$ . Как видно из графиков, резонанс "вниз"

приводит к незначительному отличию вероятности двухфотонной ионизации неона от рассчитываемой по теории возмущений величины  $w^{(P)} (2/3 < \varphi(F) < 5/3)$  Однако функциональная зависимость  $w_f(F)$  существенно изменяется при полях  $F \ll \frac{6\gamma_0}{D}$

Величина  $w^{(P)}$  имеет вид:

$$w^{(P)} = F^4 \frac{s^2(0) + \frac{4}{45} s^2(2)}{\pi} \sqrt{2E_0} \quad , \quad /16/$$

где

$$s(l_f) = \langle E_f, l_f | r g_{E_2+\omega}(r, r') | r' | 2S_2 \rangle \quad , \quad /17/$$

$g_E(r, r')$  - радиальная функция Грина оптического электрона,  $E_f$  - энергия,  $l_f=0,2$  - орбитальный момент свободного электрона. Расчет одноэлектронных интегралов /17/ проводился с помощью волновых функций [9-10] и функций Грина [11], построенных в рамках метода квантового дефекта.

Подробно методика расчёта дана в [12]. Для ионизации неона из состояния  $2S_2$  на частоте неодимового лазера  $\omega = 9434 \text{ см}^{-1}$  эта величина  $w^{(P)}$  имеет вид:

$$w^{(P)} \approx 10^{-16} F^4$$

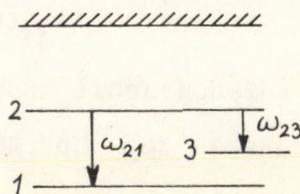
где  $F$  измеряется в в/см. Мы не учитываем зависимость  $g_E(r, r')$  от  $F$ , которая проявляется через добавку в энергии  $-u_1(2)$ , поскольку энергия промежуточного состояния  $E=E_2-u_1(2)+\omega$  достаточно далека от резонанса.

4. Рассмотрим вопрос о влиянии взаимодействия возбужденного в состояние  $2S_2$  атома неона с сильной резонансной электромагнитной волной на интенсивность спонтанного излучения, соответствующего распаду в состояние  $2P_4$ .

В отсутствие внешнего поля это излучение неполяризовано, и его интенсивность  $I^0$  имеет вид:

$$I^0 = \frac{2}{3} \alpha^3 \omega_{23}^4 |D_{23}|^2$$

где  $\alpha = \frac{1}{137}$  - постоянная тонкой структуры,  $D_{23}$  - приведенный матричный элемент перехода  $2S_2 \rightarrow 2P_4$  / индексом 3 мы обозначаем состояние  $2P_4$ , см. схему/



При облучении атома сильным электромагнитным полем частоты, близкой к частоте перехода между уровнями I и 2, распад происходит из состояния  $\phi_1$  или  $\phi_2$ , описываемых коэффициентами /2/ и /4/. Подобная картина опять оправдана тем, что время перехода между состояниями  $\phi_1$  и  $\phi_2$  значительно меньше времени распада в состояние 3. При этом спектр спонтанного излучения состоит из трёх линий одинаковой интенсивности с частотами мы не учитываем наличия ширины у атомной и лазерной линий/:

$$\omega_1 = \omega_{23} - \mu_1, \quad \omega_2 = \omega_{23} - \mu_2, \quad \omega_3 = \omega_{23}$$

$$\mu_{1(2)} = \frac{\epsilon_0}{2} (-) \sqrt{\frac{\epsilon_0^2}{4} + \frac{(FD)^2}{6}} \quad /19/$$

Интенсивность излучения при этом зависит от поляризации  $p$  / $p=0, \pm 1$ / и имеет вид:

$$I_p(\omega_{1(2)}) = \frac{\alpha^3 \omega_{23}^2 (\omega_{23} - \mu_{1(2)})^2}{15 \left( 1 + 6 \frac{\mu_{1(2)}^2}{(FD)^2} \right)} |D_{23}|^2 \left\{ \left( C_{1-11p}^{2p-1} \right)^2 + \left( C_{111p}^{2p+1} \right)^2 \right\} \quad /20/$$

$$I_p(\omega_3) = \frac{2\alpha^3 \omega_{23}^4}{15} |D_{23}|^2 \left( C_{101p}^{2p} \right)^2 \quad /21/$$

Отсюда видно, что свет на частотах  $\omega_1, \omega_2$  с большей вероятностью поляризован циркулярно:

$$I_{\pm 1}(\omega_{1(2)}) = \frac{7}{6} I_0(\omega_{1(2)}) \quad , \quad /22/$$

а свет на частоте  $\omega_3$  с большей вероятностью плоско поляризован:

$$I_{\pm 1}(\omega_3) = \frac{3}{4} I_0(\omega_3) \quad , \quad /23/$$

Полная интенсивность спонтанного излучения, сопровождающего переход неона в состояние  $2p_4$  при действии резонансного сильного поля.

$$I^{(J)} = \sum_{i=1}^3 \sum_{p=0 \pm 1} I_p^{(\omega_i)} ,$$

составляет примерно  $2/3 I^{(0)}$  и слабо зависит от интенсивности лазерного поля. Следует помнить, что это верно по прошествии достаточно большого времени  $t$  после включения сильного поля,  $t \gg \tau_k$ , где  $\tau_k \sim 10^{-10}$  сек. - характерное время комбинационных переходов  $\phi_1 \rightleftharpoons \phi_2$  [6].

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Н.Б. Делоне, Г.А. Делоне, ЖЭТФ, 54, 1067, 1968.
- [2] A.Baravian, Appl.Phys.Zett., 16, 162, 1970.
- [3] Hloore С.Е. Atomic Energy Levels Natl.Bur.Stand.Circ. N467, 1949.
- [4] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц Квантовая механика Физматгиз, М.1963.
- [5] С.Г. Раутиан Труды ФИАН СССР, 43, 3, 1968.
- [6] М.Л. Тер-Микаелян, А.О. Меликян ЖЭТФ, 58, 281, 1970.
- [7] Я.И. Визбарайте, В.И. Чиплис, А.П. Юдис, ДАН СССР, 135, 1101, 1960.
- [8] А.Р. Стриганов, Н.С. Светницкий Таблицы спектральных линий нейтральных и ионизованных атомов. Атомиздат, М., 1966.
- [9] D.R.Bates, A.Daingard, Phil.Trans. A242, 101, 1949.
- [10] M.Seaton. Monthly Not.Roy.Astr.Soc. 118, 504, 1958.
- [11] Б.А. Зон, Н.Л. Манаков, Л.П. Рапопорт ДАН СССР, 188, 560, 1969.
- [12] В.А. Давыдкин, Б.А. Зон, Н.Л. Манаков, Л.П. Рапопорт ЖЭТФ, 60, 124, 1971.

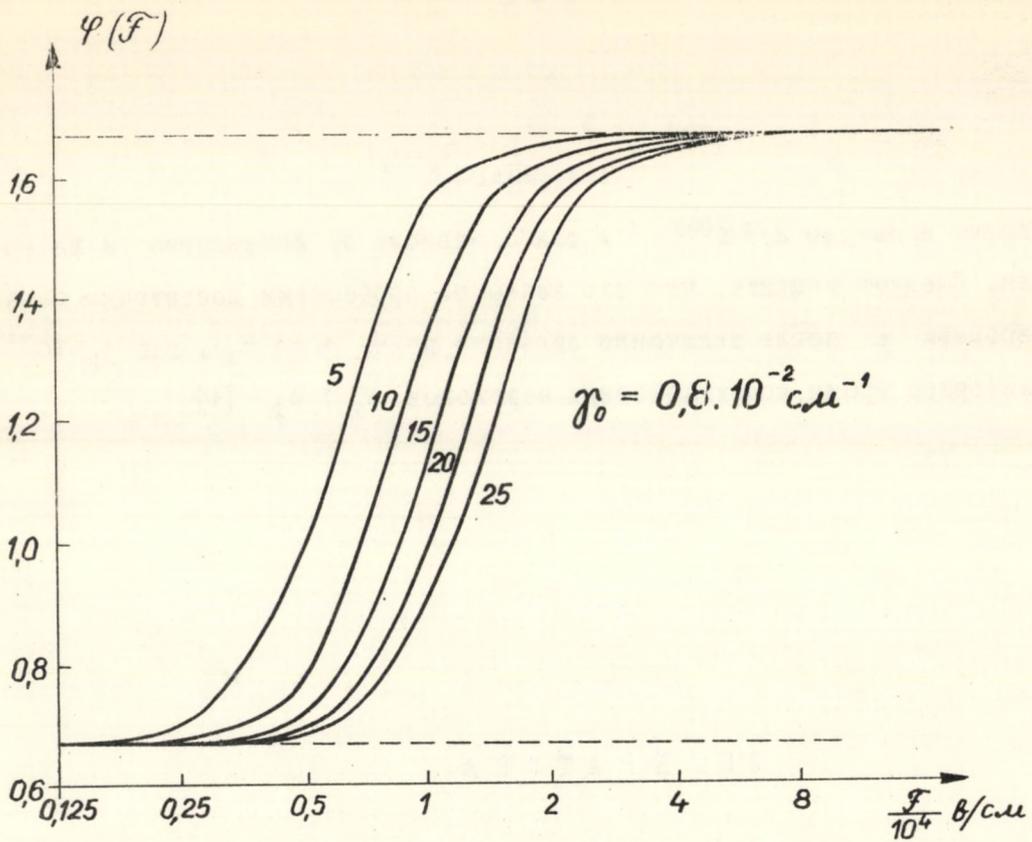


Рис. 1.

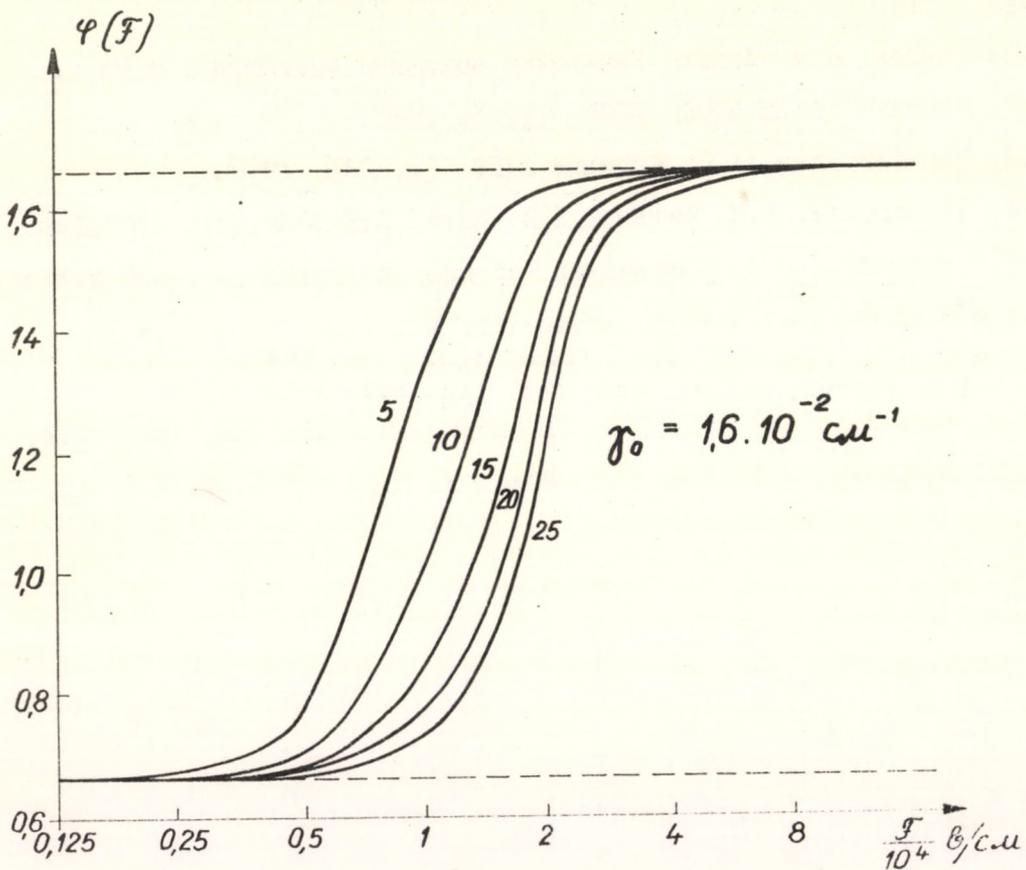


Рис. 2.





Kiadja a Központi Fizikai Kutató Intézet  
Felelős kiadó: Kroó Norbert, a KFKI  
Fizikai Optikai Tudományos Tanácsának Elnöke  
Szakmai lektor: Bergou János  
Nyelvi lektor: L.P.Rapoport  
Példányszám: 275 Törzsszám: 72-7231  
Készült a KFKI sokszorosító üzemében,  
Budapest 1972. október hó