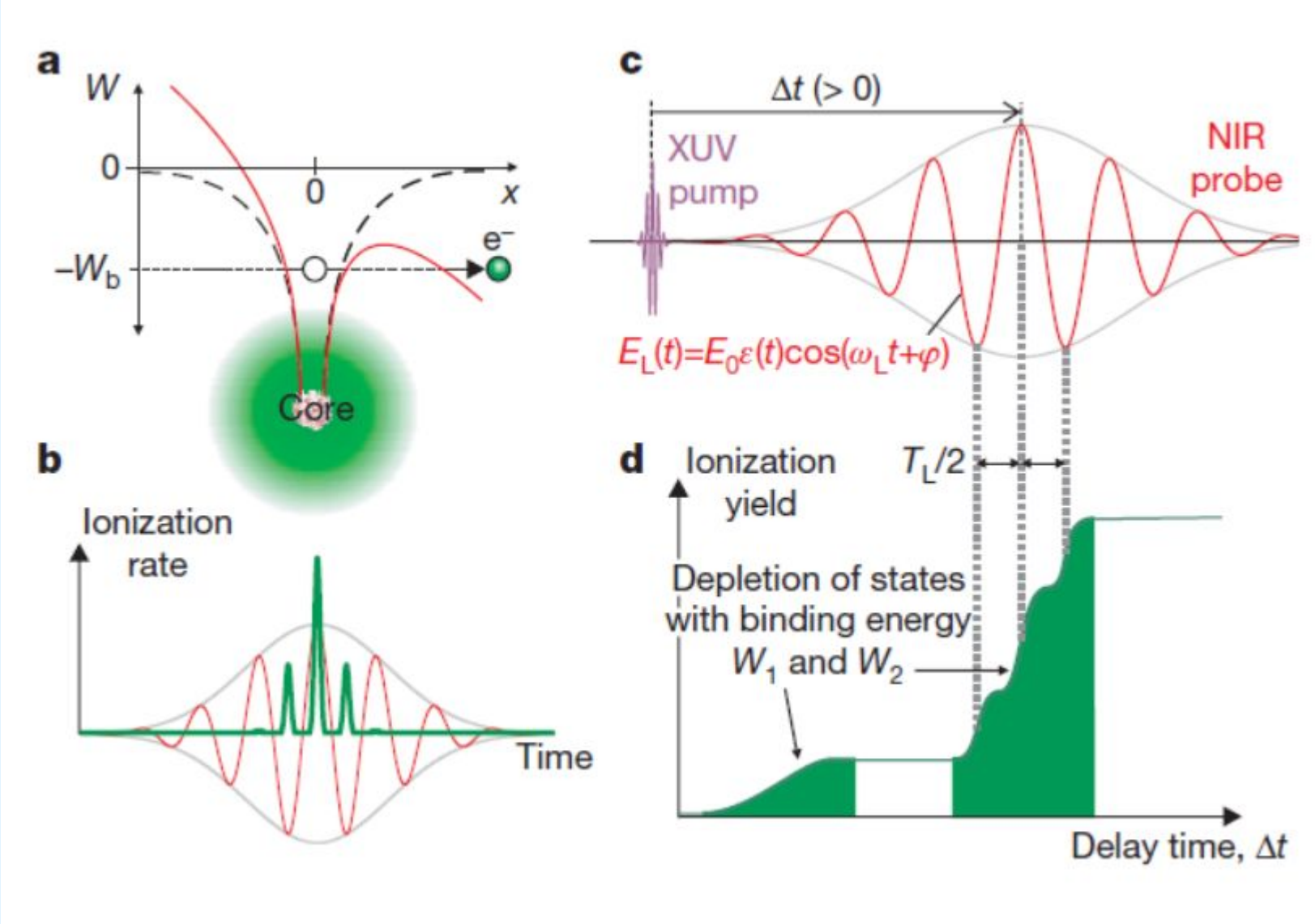
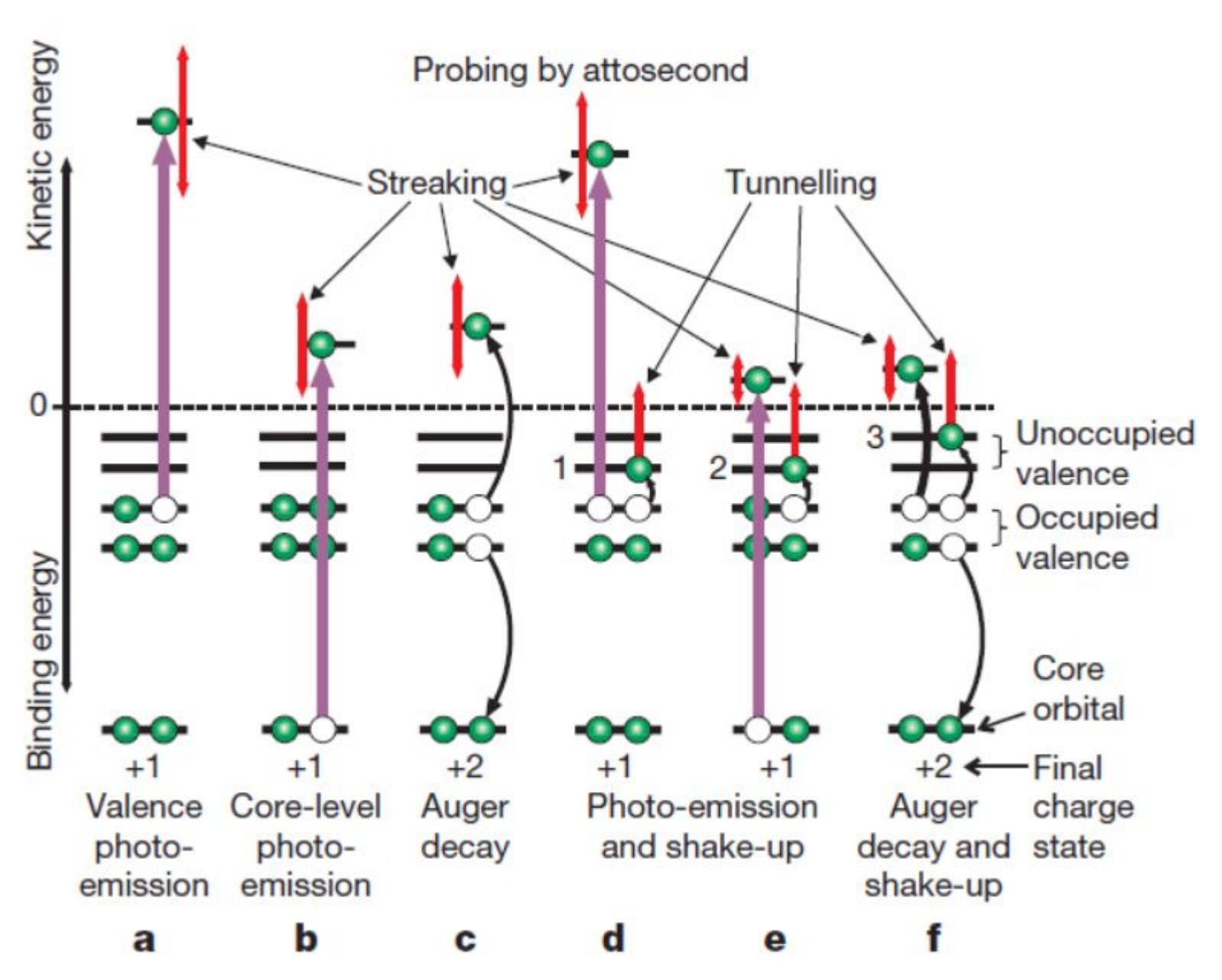
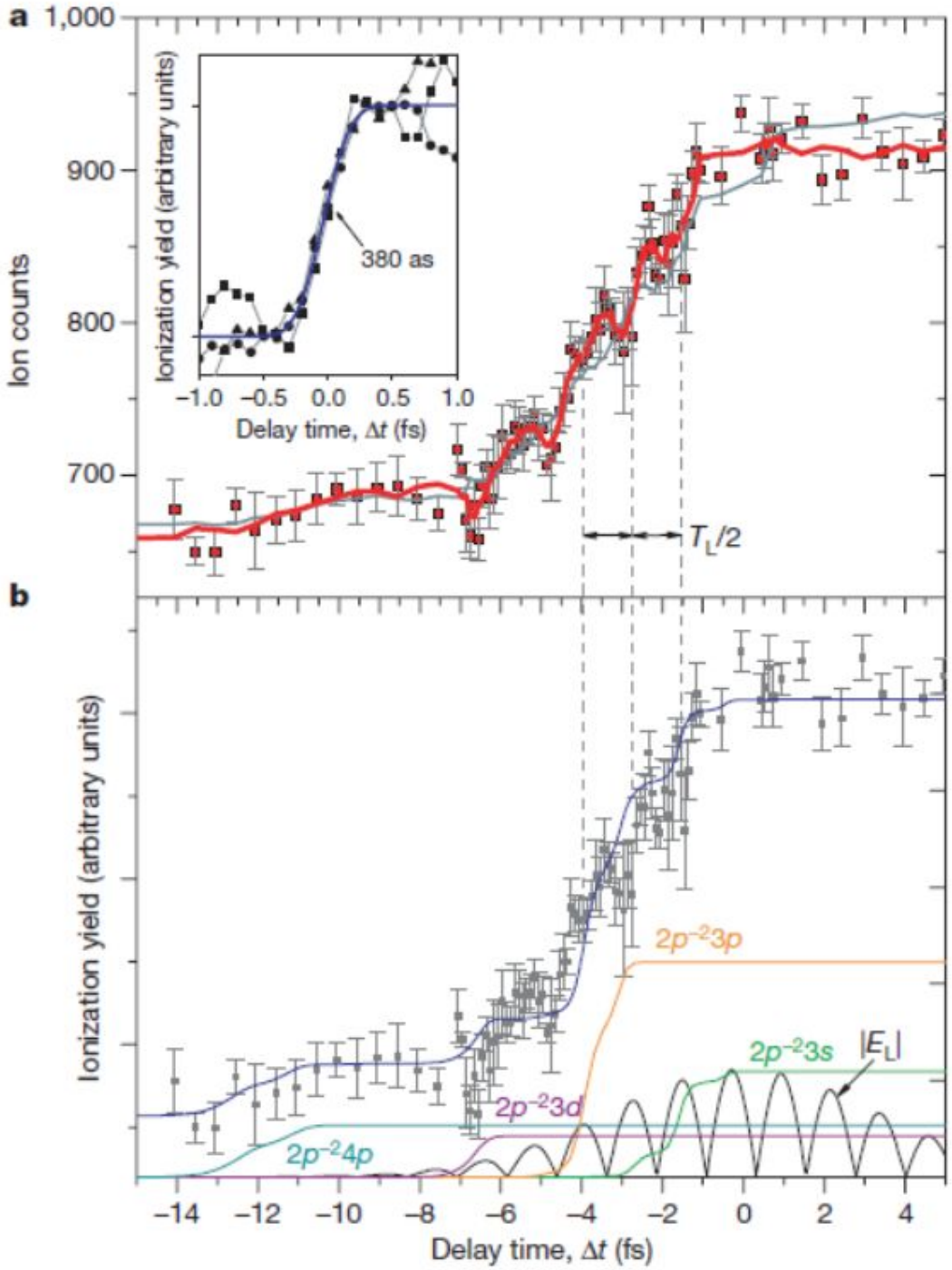
ЛЕКЦИЯ 9

Аттосекундная регистрация динамики фотоионизации атомов

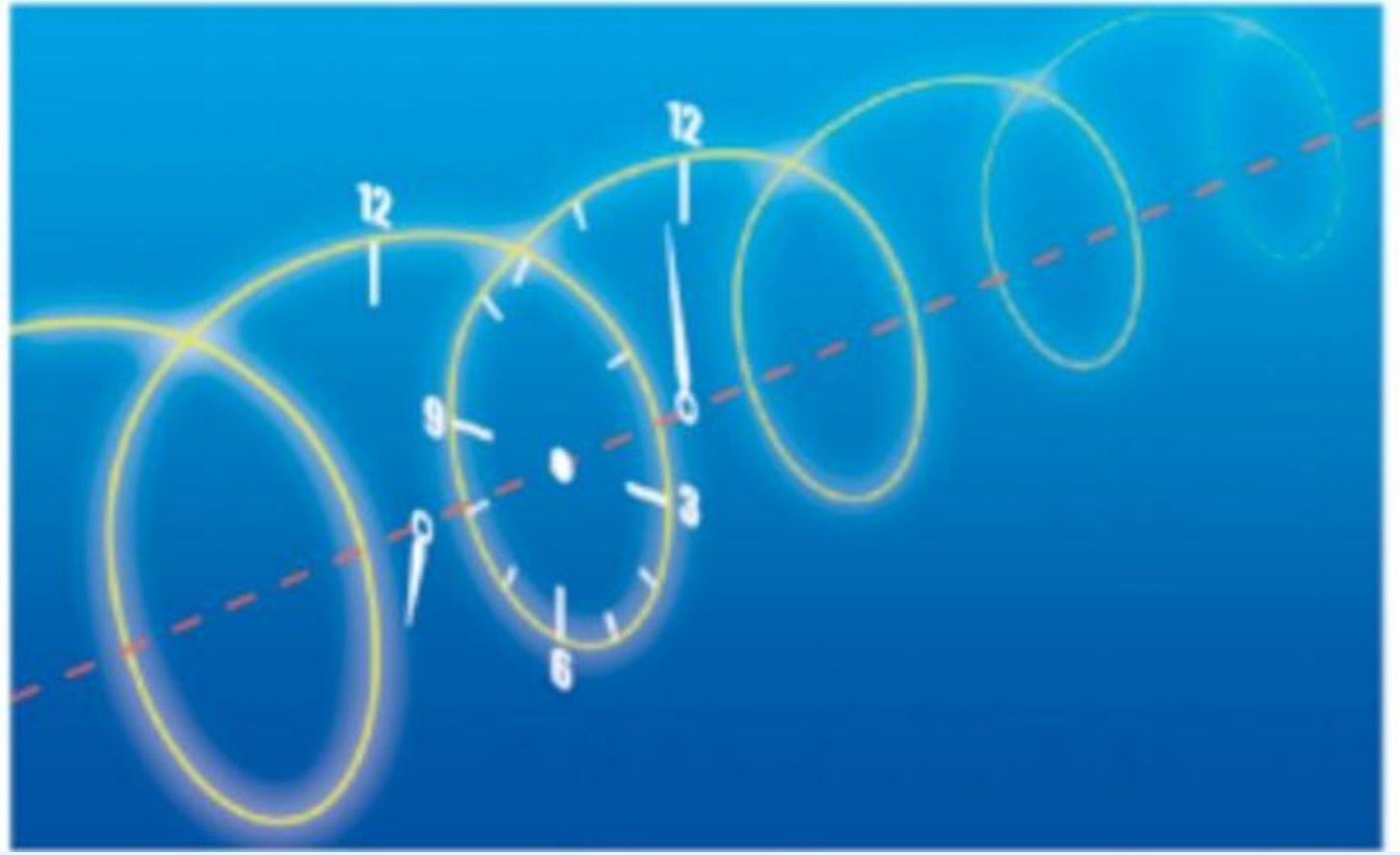
M. Uiberacker et. al, *Nature* **446**, 627-632 (2007)



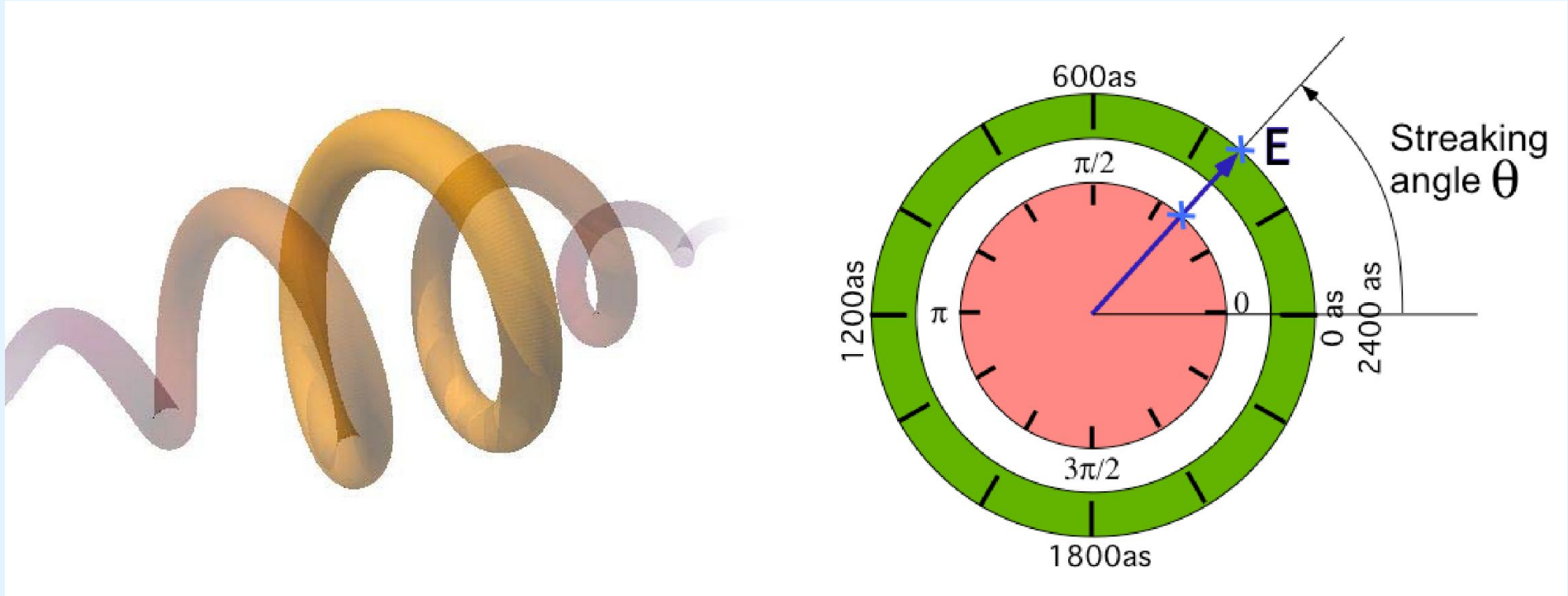

Probing by attosecond
Streaking
Tunnelling
Kinetic energy
Binding energy
0
1
2
3
Unoccupied valence
Occupied valence
Core orbital
Final charge state
+1
Valence photo-emission
+1
Core-level photo-emission
+2
Auger decay
+1
+1
Photo-emission and shake-up
+2
Auger decay and shake-up
a
b
c
d
e
f


a
b
Ion counts
1,000
900
800
700
Ionization yield (arbitrary units)
380 as
−1.0 −0.5 0.0 0.5 1.0
Delay time, Δt (fs)
$T_L/2$
$2p^{-2}3p$
$2p^{-2}3s$
$|E_L|$
$2p^{-2}3d$
$2p^{-2}4p$
−14 −12 −10 −8 −6 −4 −2 0 2 4
Delay time, Δt (fs)

Туннельное время и неадиабатичность ионизации.

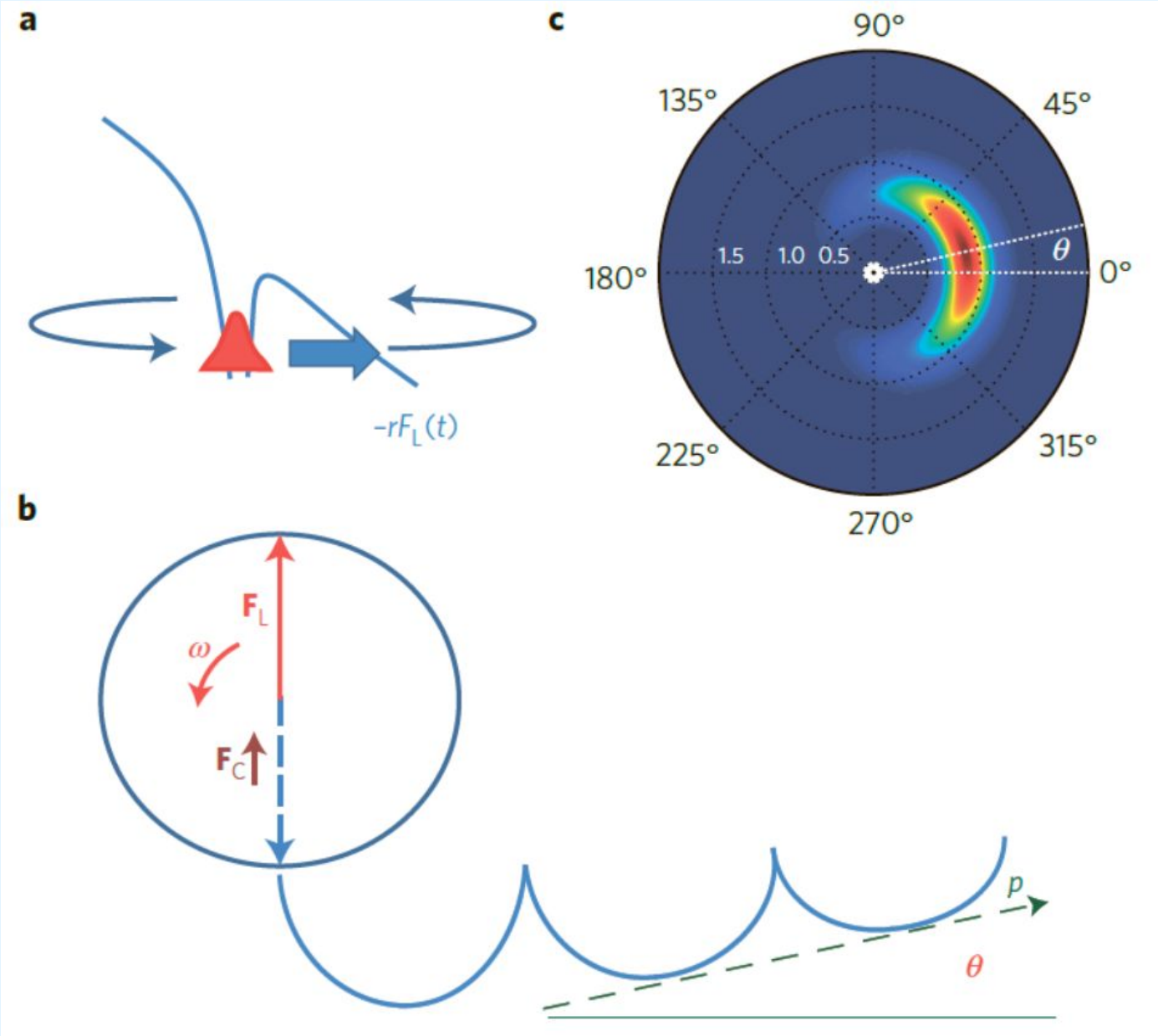


Аттосекундные часы

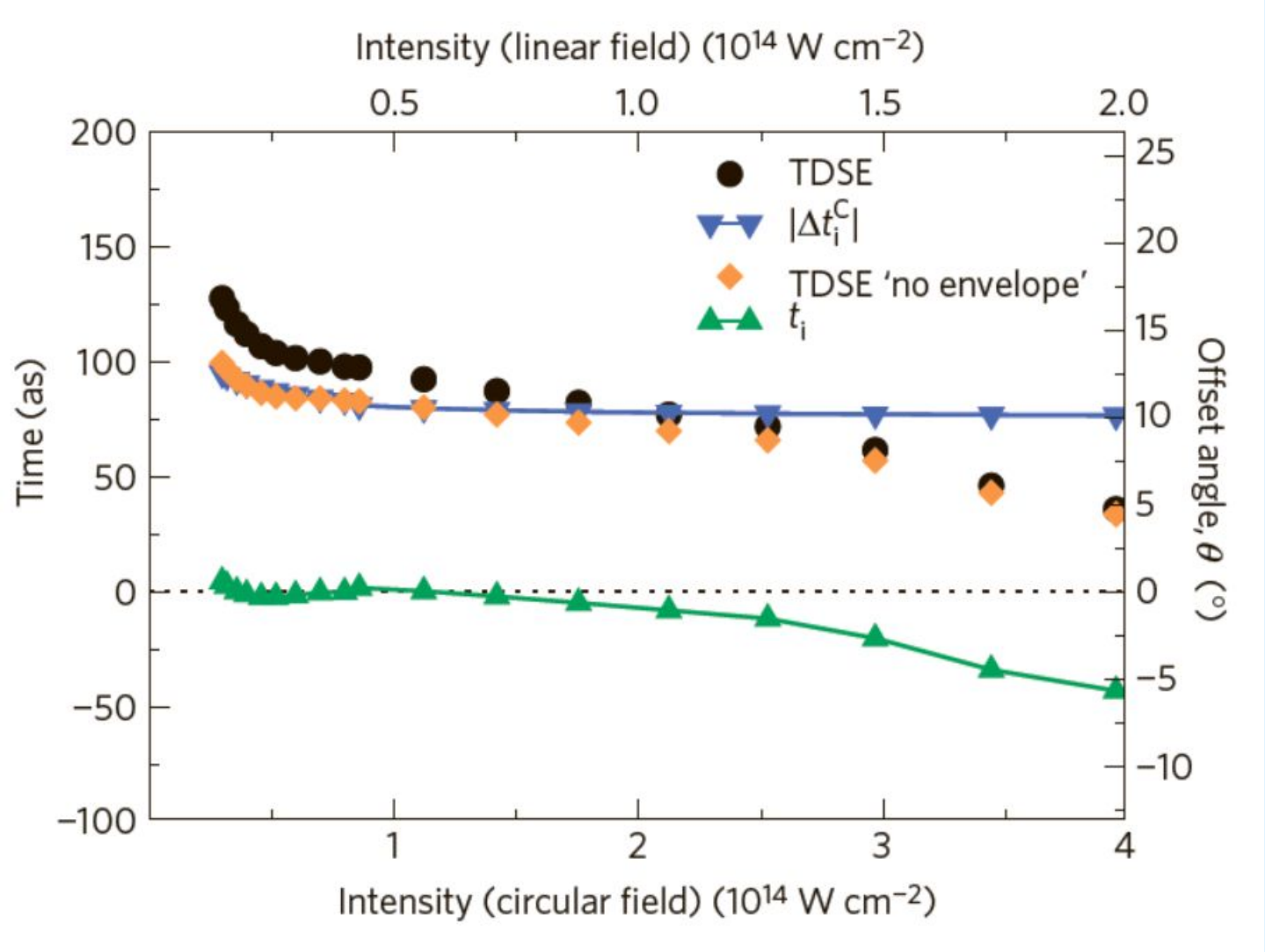


P. Eckle, A. Pfeiffer, C. Cirelli, A. Staudte, R. Dörner, H.-G. Muller, M. Büttiker, U. Keller, *Science* **322**, 1525, 2008

Аттосекундные часы



Аттосекундные часы



Время туннелирования Келдыша

Время Келдыша везде определяется как время, которое нужно электрону, имеющему скорость, определяющейся энергией его связанного состояния, на преодоление барьера шириной:

$$l = \frac{I_p}{eE_0}$$

Скорость электрона принимается равной:

$$v = \sqrt{\frac{2I_p}{m_e}} \qquad v = \sqrt{\frac{2I_p}{m_e}}$$

В этом случае время Келдыша будет иметь вид:

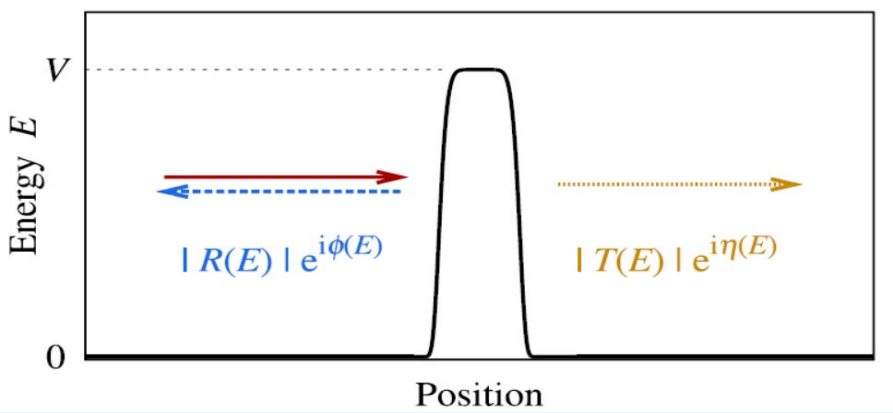
$$\Delta\tau_{Keldish} = \frac{I_p}{eE_0} \Bigg/ \sqrt{\frac{2I_p}{m_e}} = \frac{1}{eE_0}\sqrt{\frac{m_e I_p}{2}}$$

С учётом того, что параметр Келдыша равен:

$$\gamma = \frac{\omega\sqrt{2m_e I_p}}{eE_0}, \quad где \quad \omega = \frac{2\pi}{T_0}$$

Время туннелирования по Келдышу принимает следующее значение:

$$\Delta\tau_{Keldish} = \frac{\gamma T_0}{4\pi}$$



Туннельные времена

Время Эйзенбада-Вигнера

$$\tau_{EW}(\varepsilon) = \hbar \frac{\partial \eta}{\partial \varepsilon}$$

Время Поллака-Миллера

$$\tau_{PM} = \hbar \frac{\partial |T|}{|T| \partial \varepsilon}$$

Время Лармора

$$\tau_{LM}(\varepsilon) = -\hbar \frac{\partial \eta}{\partial V}$$

Время Буттикера-Ландауэра

$$\tau_{PM} = \hbar \frac{\partial |T|}{|T| \partial V}$$

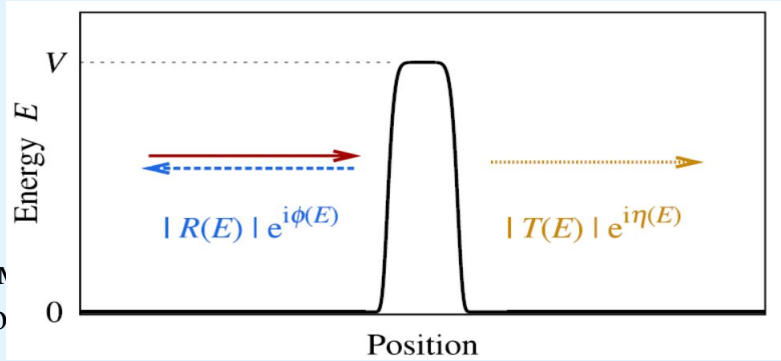
Неадиабатичность ионизации и туннельные времена

Процесс туннелирования сопровождается противодействием атомного потенциала переходу электронов из связанных состояний в состояния континуума. Этот процесс обычно не учитывается в классической картине туннелирования, которая подразумевает мгновенный переход электрона из связанного состояние в состояние свободного электрона с положительной энергией, на который атомный потенциал уже не оказывает влияние. Такая ситуация является предельным случаем для высоких интенсивностей и при низкой частоте лазерного поля, то есть когда параметр Келдыша много меньше единицы. Скорость ионизации при этом не зависит от длины волны и определяется только мгновенной интенсивностью поля и может быть найдена по формуле АДК. В этом случае в статьях говорят об адиабатичности процесса ионизации, наверное подразумевая что адиабатическим инвариантом является величина поля, очень медленно меняющаяся во времени. Поэтому эффекты, проявляющиеся в динамике ионизации и связанные с абсолютной фазой поля (учитывающие скорость изменения поля), в статьях Делоне и Крайнова, Миши Иванова, Ференца Крауса и некоторых других авторов называют **неадиабатическими**, а параметр Келдыша называют параметром адиабатичности фотоионизации. Одним из таких неадиабатических процессов является задержка ионизации, природа которой состоит в необходимости для электрона, изначально находящегося в связанном состоянии, преодолеть притяжение атомного потенциала. Для характеризации данного процесса параметр Келдыша (и соответственно время туннелирования по Келдышу) не подходит, так как он получен при достаточно упрощённых предположениях, не учитывающих особенностей квантово-механического рассеяния волнового пакета связанных электронов на атомном потенциале, динамически во времени модифицируемом лазерным полем. Поэтому актуальна задача нахождения другого временного параметра (временной задержки), с помощью которого можно будет более точно охарактеризовать неадиабатичность процесса фотоионизации.

Существуют четыре основных выражения для времён туннелирования (Buttiker-Landauer time, Larmor time, Eisenbud–Wigner и Pollac-Miller time), записанных в терминах прошедшего (туннелировавшего через барьер) электронного волнового пакета. В обзорной статье Урсулы Келлер показано [Ursula Keller 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys*], что эти времена могут быть попарно объединены в рамках формализма интегралов Феймана. Первая пара времён (Buttiker-Landauer time и Larmor time) является действительной и мнимой частью среднего времени, которое частица проводит под барьером (нужно усреднить время, которое частица с некоторой энергией проводит под барьером). Эти времена можно назвать временами жизни частицы под барьером (resident or dwell time). Альтернативное определение времени жизни частицы под барьером приводит к так называемому времени прохода под барьером passage time (усреднение времени, определяющегося как разница между моментом выхода из под барьера и моментом входа под барьер). В этом случае время туннелирования представляется в виде комплексного выражения, в котором действительная часть представляет из себя время Эйзенбада-Вигнера, а мнимая часть соответствует времени Поллака-Миллера.

Временная задержка ионизации при туннелировании волнового пакета в переменном лазерном поле

Время туннелирования (passage time), описывающее задержку возникающую при квантово-механическом рассеянии (туннелировании) волнового пакета на произвольном потенциале, определяется в терминах амплитуды и фазы волнового прошедшей части волнового пакета (см. рисунок ниже):



$$\tau_{tunnel}(\varepsilon)=\tau_{EW}(\varepsilon)-i\tau_{PM}=\hbar\frac{\partial\eta(\varepsilon)}{\partial\varepsilon}-i\hbar\frac{\partial|T(\varepsilon)|}{|T(\varepsilon)|\partial\varepsilon} \qquad (1)$$

форм ческий смысл данное время обретает уже только после окончательного исхо волнового пакета в сравнении со временем свободного движения

Данный подход хорошо работает в случае стационарного потенциала на который падает волновой пакет, имеющий некоторую начальную групповую скорость. Попробуем применить его для характеризации задержки ионизации в случае туннелирования в перемененном электромагнитном поле, когда начальный волновой пакет, описываемый волновой функцией связанных электронов, в начальный момент времени (в начале полуцикла поля, когда поле равно нулю) имеет нулевую начальную групповую скорость и увлекаемый лазерным полем, рассеивается на атомном потенциале. В результате этого процесса в конце полуцикла поля формируется волновой пакет свободных электронов, фаза которого хранит информацию о кулоновской временной задержке, возникшей в процессе туннелирования (рассеяния волнового пакета связанных электронов на атомном потенциале под действием поля). Рассмотрим фазовые свойства такого волнового пакета, сформированного одиночным полуциклом поля, в которых в некотором виде закодирована информация о процессе туннельной ионизации.

Отдельно стоит упомянуть, что для волнового пакета свободных электронов данное время может быть получено как собственное значение оператора времени, записанного в следующем виде:

$$\hat{t}=-i\hbar\frac{\partial}{\partial\varepsilon}$$

Это легко показать, если применить данный оператор к волновому пакету:

$$\hat{t}\left\{|T(\varepsilon)|e^{i\eta(\varepsilon)}\right\}=-i\hbar\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\left\{|T(\varepsilon)|e^{i\eta(\varepsilon)}\right\}=\left[\hbar\frac{\partial\eta(\varepsilon)}{\partial\varepsilon}-i\hbar\frac{\partial|T(\varepsilon)|}{|T(\varepsilon)|\partial\varepsilon}\right]|T(\varepsilon)|e^{i\eta(\varepsilon)}=\tau_{tunnel}(\varepsilon)|T(\varepsilon)|e^{i\eta(\varepsilon)}$$

Задержка ионизации при туннелировании волнового пакета в переменном лазерном поле

Процесс туннелирования в высокоинтенсивном переменном лазерном поле можно рассматривать как рассеяние волнового пакета связанных электронов, увлекаемого полем, на атомном потенциале, которое происходит в течении каждого полуцикла. В результате каждого такого акта рассеяния происходит формирование волнового пакета свободных электронов, амплитуда и фаза которого хранят в себе информацию о задержке процесса фотоионизации. Для анализа этой информации сравним свойства волновых пакетов, которые получаются в результате численного решения нестационарного уравнения Шредингера для атома водорода (TDSE), с результатом полуклассической модели формирования волнового пакета свободных электронов. Анализ будем производить для волновых пакетов сформированных за время действия поля в течении одного полуцикла поля, варьирую его пиковую интенсивность и длительность (частоту поля).

TDSE

В случае численного анализа нестационарного уравнения Шредингера для одиночного атома водорода волновой пакет свободных электронов в конце полуцикла поля получался в результате вычитания из полной волновой функции волнового пакета связанных электронов. Полученная часть волновой функции, зависящей от поперечной координаты и координаты z, направленной вдоль направления поляризации поля, использовалась для получения импульсного спектра волнового пакета свободных электронов. Характерные импульсные распределения волновых пакетов в конце полуцикла поля для атома водорода показаны на последнем слайде данной презентации. Для упрощения анализа было произведено интегрирование по поперечной координате, что позволило рассматривать зависимость характеристик волнового пакета только от координаты z:

$$\tilde{\psi}_c(p_z,\pi/\omega)=\left|\tilde{\psi}_c(p_z,\pi/\omega)\right|\exp\left(i\tilde{\eta}_c(p_z)\right)=\frac{1}{\sqrt{\pi}}\int_{-\infty}^{\infty}\psi_c(z,\pi/\omega)\exp\left(-\frac{p_z z}{\hbar}\right)dz \qquad (1)$$

Импульсный спектр полученного одномерного волнового пакета находился благодаря Фурье преобразованию:

$$\begin{aligned}\tilde{\psi}_c(p_z,\pi/\omega)&=\left|\tilde{\psi}_c(p_z,\pi/\omega)\right|\exp\left(i\tilde{\eta}_c(p_z)\right)=\frac{1}{\sqrt{\pi}}\int_{-\infty}^{\infty}\psi_c(z,\pi/\omega)\exp\left(-\frac{p_z z}{\hbar}\right)dz\\ \psi_c(z,\pi/\omega)&=\left|\psi_c(z,\pi/\omega)\right|\exp\left(i\eta_c(z)\right)=\frac{1}{\sqrt{\pi}}\int_{-\infty}^{\infty}\tilde{\psi}_c(p_z,\pi/\omega)\exp\left(\frac{p_z z}{\hbar}\right)dz\end{aligned} \qquad (2)$$

Физический смысл Фурье преобразования заключается в том, что производная фазы волнового пакета (по координате z) в пространственном представлении (мгновенная частота) определяет импульс электронов, относительное количество которых в точке z задаётся квадратом модуля амплитуды волнового пакета. Производная фазы волнового пакета (по импульсу p_z) в импульсном представлении имеет смысл координаты z, в которой находятся электроны с импульсом равным p_z. С учётом того, что импульс электронов p_z определяет их энергию ε, то в результате мы получим зависимости координаты электронов от их энергии или обратную функцию энергии электронов от их конечной координаты:

$$z_{tdse}(p_z) = \frac{\partial \tilde{\eta}_c(p_z)}{\partial p_z} = z_{tdse}\left(\varepsilon = \frac{p_z^2}{2m_e}\right)$$
$$p_z^{tdse}(z) = \frac{\partial \eta_c(z)}{\partial z} \Rightarrow \varepsilon_{tdse}(z) = \frac{1}{2m_e}\left(\frac{\partial \eta_c(z)}{\partial z}\right)^2 \qquad (3)$$

Фазовое время находится из импульсного распределения волнового пакета дифференцирования его фазы по энергии:

$$t_{phase}^{tdse}\left(\varepsilon = \frac{p_z^2}{2m_e}\right) = \frac{\partial \tilde{\eta}(\varepsilon)}{\partial \varepsilon} = \frac{m_e}{p_z}\frac{\partial \tilde{\eta}_c(p_z)}{\partial p_z} \qquad (4)$$

Это фазовое время, как видно из формулы (3), равно отношению координаты электрона, которую он имеет в конце полуцикла к набранной им скорости:

$$t_{phase}^{tdse}(\varepsilon) = \frac{m_e}{p_z}\frac{\partial \tilde{\eta}_c(p_z)}{\partial p_z} = \frac{z(\varepsilon)}{v_z} \quad \left(v_z = \sqrt{\frac{2\varepsilon}{m_e}}\right) \qquad (5)$$

Так как можно считать, что электроны в момент своего рождения в континууме имеют нулевую начальную скорость, то в нашем случае v_z – это скорость, которую электрон набрал за время своего свободного распространения в лазерном поле (с момента рождения до конца полуцикла поля, а z(ε) –это координата электрона, в которую попадает электрон в конце полуцикла поля с энергией ε.

Квадрат амплитуды волнового пакета в зависимости от энергии электронов в соответствии с (1) имеет следующий вид:

$$T(\varepsilon) = \frac{\left|\tilde{\psi}_c\left(p_z(\varepsilon), \pi/\omega\right)\right|^2}{p_z(\varepsilon)/m_e} \qquad p_z(\varepsilon) = \sqrt{2m_e\varepsilon}$$

Полученные свойства волновых пакетов в результате численного моделирования нестационарного уравнения Шредингера сравним с результатом полуклассической модели, описание которой приведено на следующих слайдах.

Полуклассическая модель формирования волнового пакета свободных электронов

Фаза волнового пакета в импульсном представлении.

С точки зрения полуклассической модели производная фазы волнового пакета в импульсном представлении не зависит от скорости ионизации в каждый момент времени (не зависит от модели ионизации), так как определяется зависимостью импульса электронов от координаты, и никак не зависит от количества электронов. Для её нахождения с помощью интегрирования уравнения движения найдём скорость электрона в конце полуцикла поля, который рождается в континууме в момент времени t_b (t_b– это время внутри полуцикла поля, которое принимает значения от 0 до π/ω):

$$v_z(t_b) = \int_{t_b}^{\pi/\omega} \frac{eE_0}{m_e} \sin(\omega t) dt = \frac{eE_0}{m_e \omega} \left[1 + \cos(\omega t_b)\right], \qquad (6)$$

Расстояние, которое электрон пролетает за это время (от t_b до π/ω), будет равняться следующему значению:

$$z_{classical}(t_b) = \frac{eE_0}{m_e \omega} \left[\left(\frac{\pi}{\omega} - t_b \right) - \frac{\sin(\omega t_b)}{\omega} \right] \qquad (7)$$

Формула (6) задаёт обратную зависимость энергии электрона от момент в который он перешёл в континуум:

$$t_b = t_b(\varepsilon) \qquad \left(\varepsilon = m_e v_z^2 / 2\right)$$

Используя которую, в формуле (7) мы получаем зависимость координаты электрона в конце полуцикла от его энергии

$$z_{classial}(\varepsilon) = f(\varepsilon) \quad \Rightarrow \quad \varepsilon_{classial}(z) = f^{-1}(z) \qquad (8)$$

Как показывает сравнение численного решения уравнения Шредингера (см. формулу (3)) с полуклассической моделью (формула (8)), удаление электронов от начала координат в квантово-механическом случае оказывается большим по сравнении с полуклассической моделью (см. слайды 6, 9, 12). Усреднение этой разницы по ансамблю электронов в полном соответствии с теорией туннелирования Келдыша даёт нам величину очень близкую к ширине потенциального барьера (см. слайд 15), который получается при пиковой интенсивности поля (в центре полуцикла):

$$\left\langle z_{tdse}(\varepsilon) - z_{classical}(\varepsilon) \right\rangle \quad \propto \quad z_{exit} = \frac{I_p}{eE_0}. \qquad (9)$$

Если теперь в уравнении (7) мы учтём зависимость точки выхода от времени t_b, в которое электрон покидает атом и переходит в континуум, то получим:

$$z_{classical}\left(t_b\right)=\frac{I_p}{eE_0\sin\left(\omega t_b\right)}+\frac{eE_0}{m_e\omega}\left[\left(\frac{\pi}{\omega}-t_b\right)-\frac{\sin\left(\omega t_b\right)}{\omega}\right] \qquad (10)$$

Формула (10) совместно с формулой (6) определяют производную фазы волнового пакета свободных электронов, которая получается при учёте не нулевой точки выхода электронов в континуум, которая равна мгновенной ширине барьера (в момент перехода электрона в свободное состояние).

Амплитуда волнового пакета в импульсном представлении.

В отличии от фазы, амплитуда волнового пакета в импульсном представлении вообще не зависит от того, в какой точке электрон перешёл в континуум. Для амплитуды важно только сколько именно электронов стало свободными в каждый конкретный момент времени (чем раньше в пределах полуцикла электрон стал свободным, тем больше у него будет энергия). Это значит, что амплитуда волнового пакета континуума однозначным образом определяется профилем населённости континуума $C(t_b)$ (точнее скоростью ионизации, которая является производной от $C(t_b)$) и параметрами цикла лазерного поля. Для вычисления скорости ионизации и населённости континуума в рамках полуклассической модели была использована адиабатическая модель ионизации (см. предпоследний слайд).

Квадрат амплитуды волнового пакета свободных электронов (волновой функции) в зависимости от энергии $T(\varepsilon)$ -- это функция плотности вероятности. Связать её с профилем населённости континуума можно с помощью следующего простого соображения. Так как мы рассматриваем зависимость волновой функции от энергии, то количество электронов вылетевших в континуум за интервал времени dt_b, окажется распределёнными по энергии в окрестности точки $\varepsilon = f(t_b)$ (которая через скорость является однозначной функцией времени t_b) на интервале $d\varepsilon$, определяющемся производной этой функции:

$$d\varepsilon=\frac{\partial\varepsilon}{\partial t_b}dt_b$$

Количество электронов в на этом интервале по определению функции плотности вероятности будет равно:

$$dN=T\left(\varepsilon\right)d\varepsilon,$$

а с другой стороны это количество электронов равно приращению населённости континуума в момент времени t_b за интервал времени dt_b, что позволяет связать амплитуду волновой функции свободных электронов в конце полуцикла со скоростью изменения населённости континуума внутри полуцикла:

$$T\left(\varepsilon\right)d\varepsilon=dC=\frac{\partial C}{\partial t_b}dt_b \quad\Rightarrow\quad T\left(\varepsilon\right)=\frac{\partial C\left(t_b\left(\varepsilon\right)\right)}{\partial\varepsilon}=\frac{\partial C\left(t_b\left(\varepsilon\right)\right)}{\partial t_b}\frac{\partial t_b}{\partial\varepsilon} \qquad \left(t_b=t_b\left(\varepsilon\right)\right)$$

Из этого следует, что модуль амплитуды волнового пакета можно записать как квадратный корень из следующего выражения:

$$T(\varepsilon)=\frac{\partial C(t_b(\varepsilon))}{\partial\varepsilon}=\frac{\partial C(t_b(\varepsilon))}{\partial t_b}\frac{\partial t_b}{\partial\varepsilon} \qquad (11)$$

Фазовое время в полуклассической модели.

Для нахождения фазового времени в полуклассической модели перепишем формулу (5) с учётом известных нам скорости и координаты электронов в конце полуцикла:

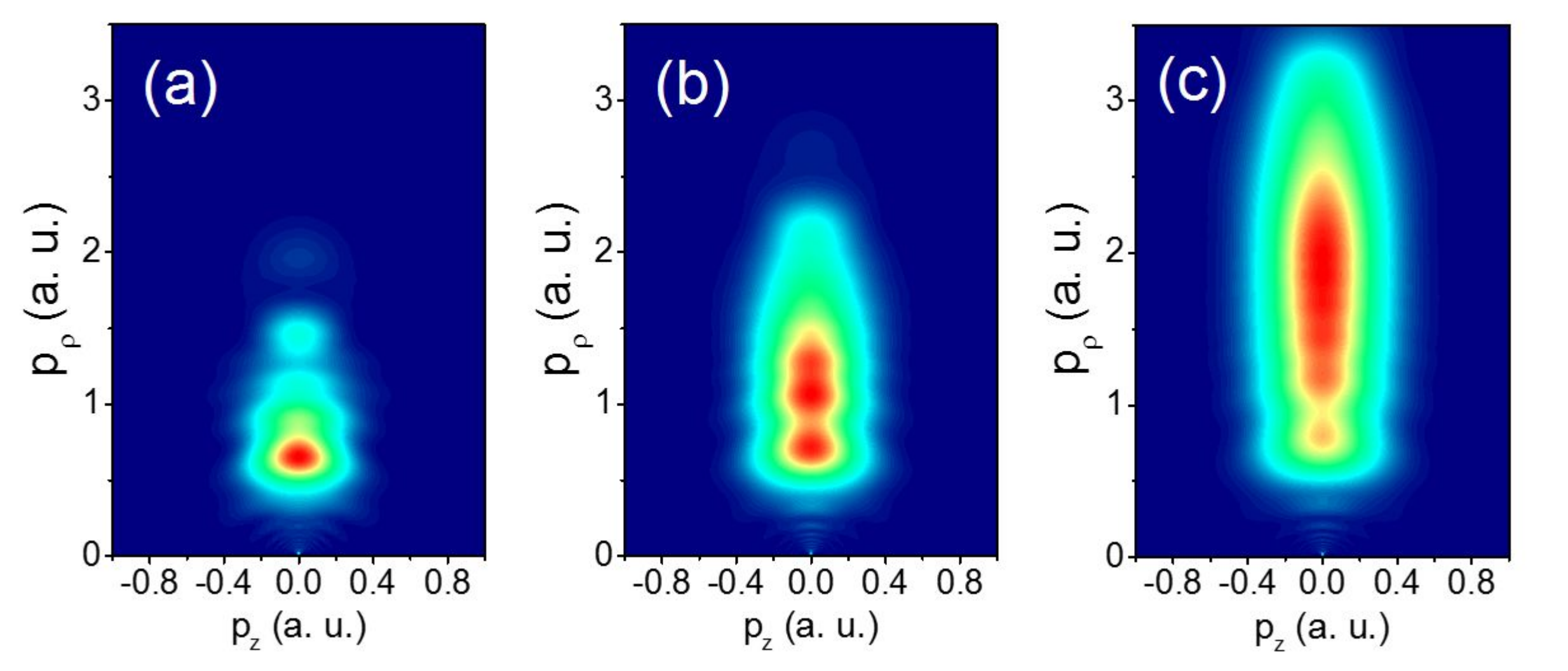
$$t_{phase}^{classical}(\varepsilon)=\frac{z_{classical}(\varepsilon)}{v_z}=\frac{\sin(\omega t_b(\varepsilon))+(\pi-\omega t_b(\varepsilon))\cos(\omega t_b(\varepsilon))}{\omega[1+\cos(\omega t_b(\varepsilon))]} \qquad (12)$$

Если использовать для координаты формулу (10), которая учитывает ненулевую точку выхода, то мы получим следующее выражение:

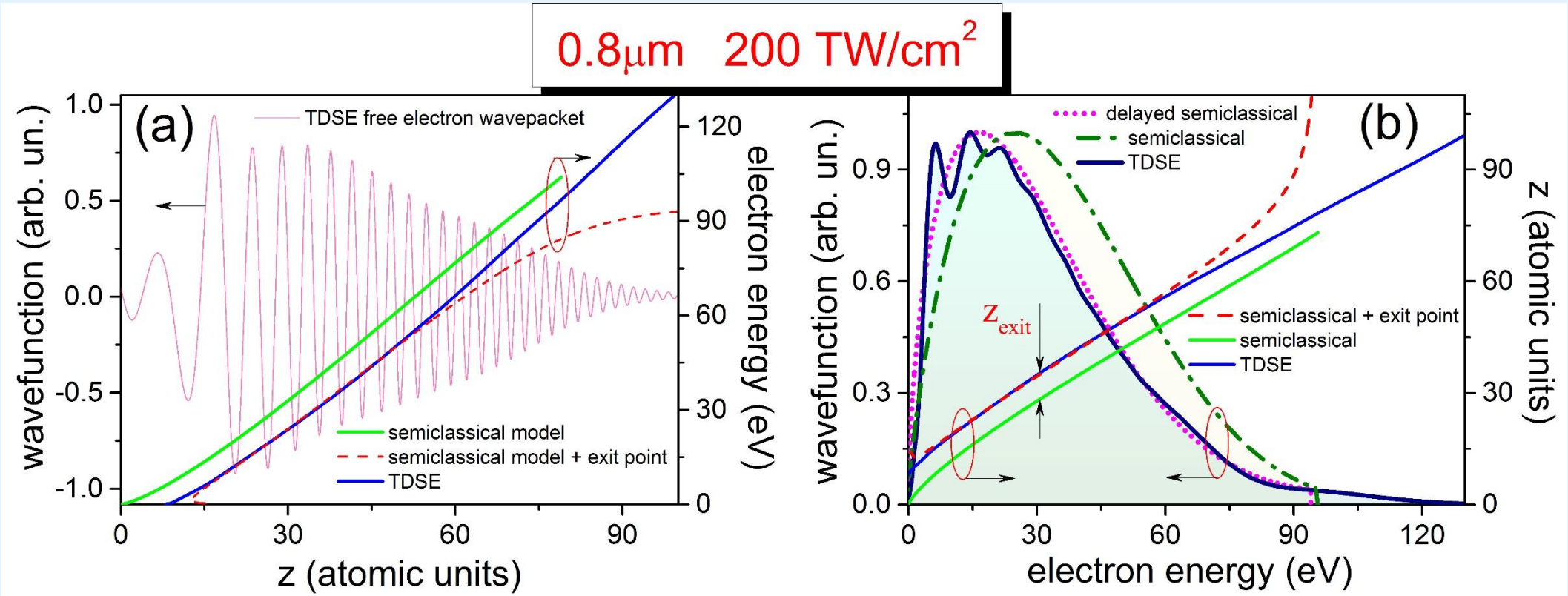
$$t_{phase}^{classical}(\varepsilon)=\frac{I_p}{m_e\omega}\frac{\left[\left(\frac{\pi}{\omega}-t_b(\varepsilon)\right)-\frac{\sin(\omega t_b(\varepsilon))}{\omega}\right]}{\sin(\omega t_b(\varepsilon))}+\frac{\sin(\omega t_b(\varepsilon))+(\pi-\omega t_b(\varepsilon))\cos(\omega t_b(\varepsilon))}{\omega\left[1+\cos(\omega t_b(\varepsilon))\right]} \qquad (13)$$

Формулы (12) и (13) были использованы для построения фазовых времён на слайдах 7, 10 и 13.

Импульсные спектры туннелировавших волновых пакетов

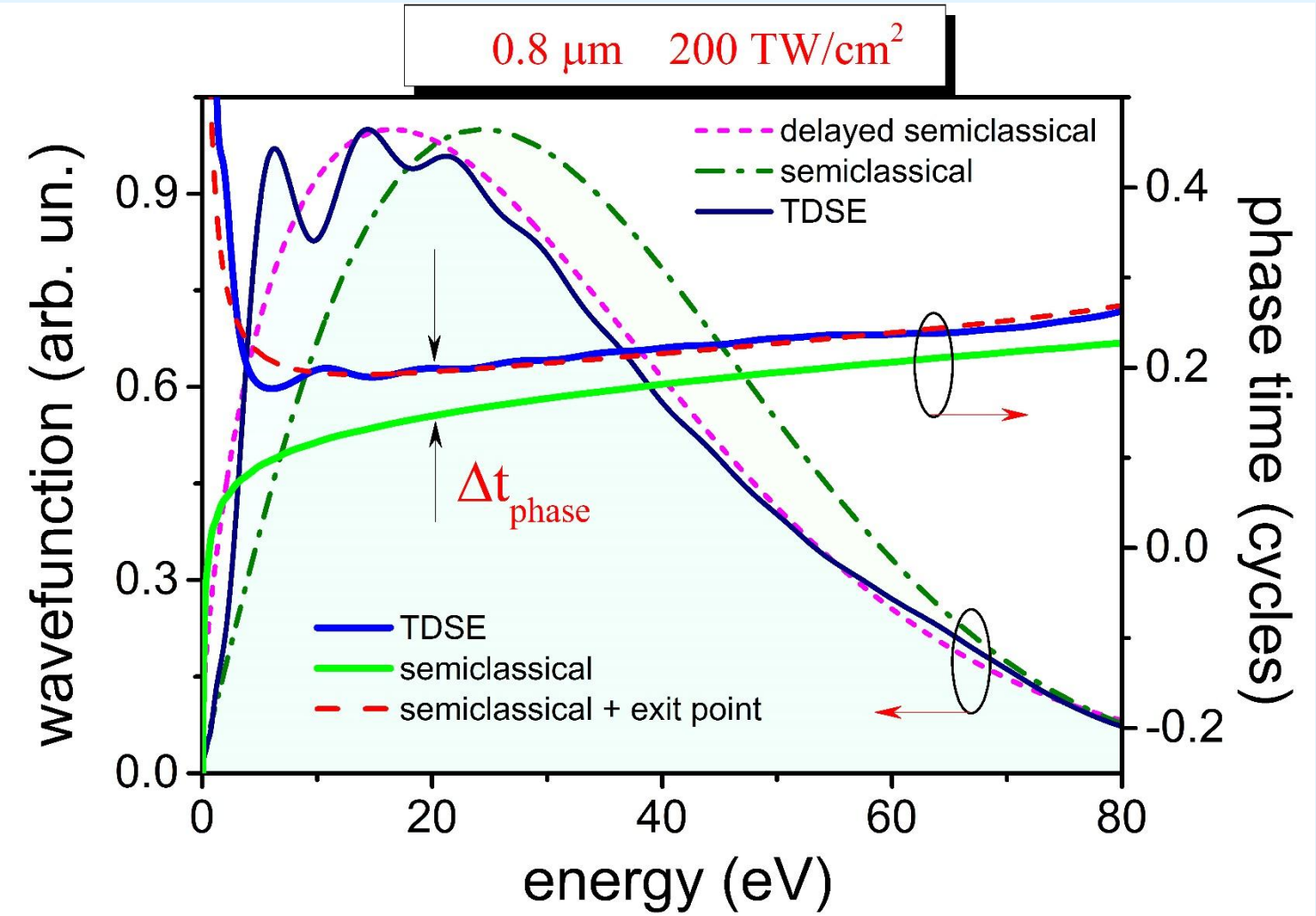


Импульсные спектры волновых пакетов свободных электронов $|\psi_c(\boldsymbol{p})|^2$ в конце полуцикла поля, полученные в результате численного решения уравнения Шредингера Расчёты выполнены для полей с центральной частотой 0.8 мкм и с пиковой интенсивностью 100 ТВ/см^2 (a), 200 ТВ/см^2 (b) и 400 ТВ/см^2 (c).



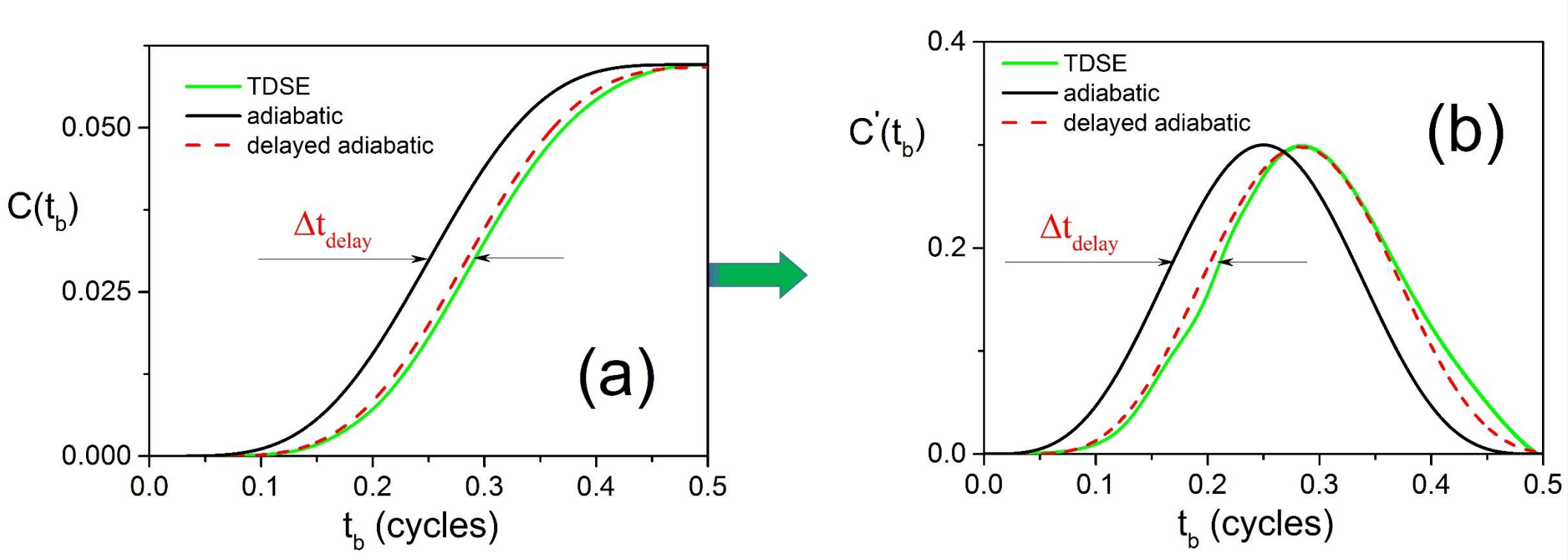
(a) Волновой пакет свободных электронов (показан розовым цветом) в конце полуцикла поля (пространственное представление реальной части волновой функции). Синяя кривая – производная фазы волнового пакета по координате (см. формулу 3), построенная в единицах кинетической энергии (мгновенная частота колебаний определяет импульс электронов) в случае численного решения уравнения Шредингера. Зелёной сплошной и красной штриховой линией показаны производные фазы (также в единицах энергии) в случае полуклассической модели без учёта (чёрная кривая) и с учётом (красная кривая) точки выхода электронов (расстояние равное ширине барьера).

(b) Импульсные спектры волновых пакетов (модуль в квадрате) свободных электронов в конце полуцикла поля, рассчитанные при помощи полуклассической модели (зелёная штрихпунктирная линия), использующей адиабатическую модель ионизации, а также полученные в результате численного решения уравнения Шредингера (синяя кривая). Пурпурной точечной линией показан полуклассический спектр, полученный при условии, что ступенька населённости континуума в пределах полуцикла была равномерно сдвинута на 0.033 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша). Сплошная зелёная кривая – производная импульсной фазы волнового пакета по импульсу в случае численного решения уравнения Шредингера. Синей и красной штриховой линией показаны производные фазы в случае полуклассической модели без учёта и с учётом точки выхода электронов соответственно.



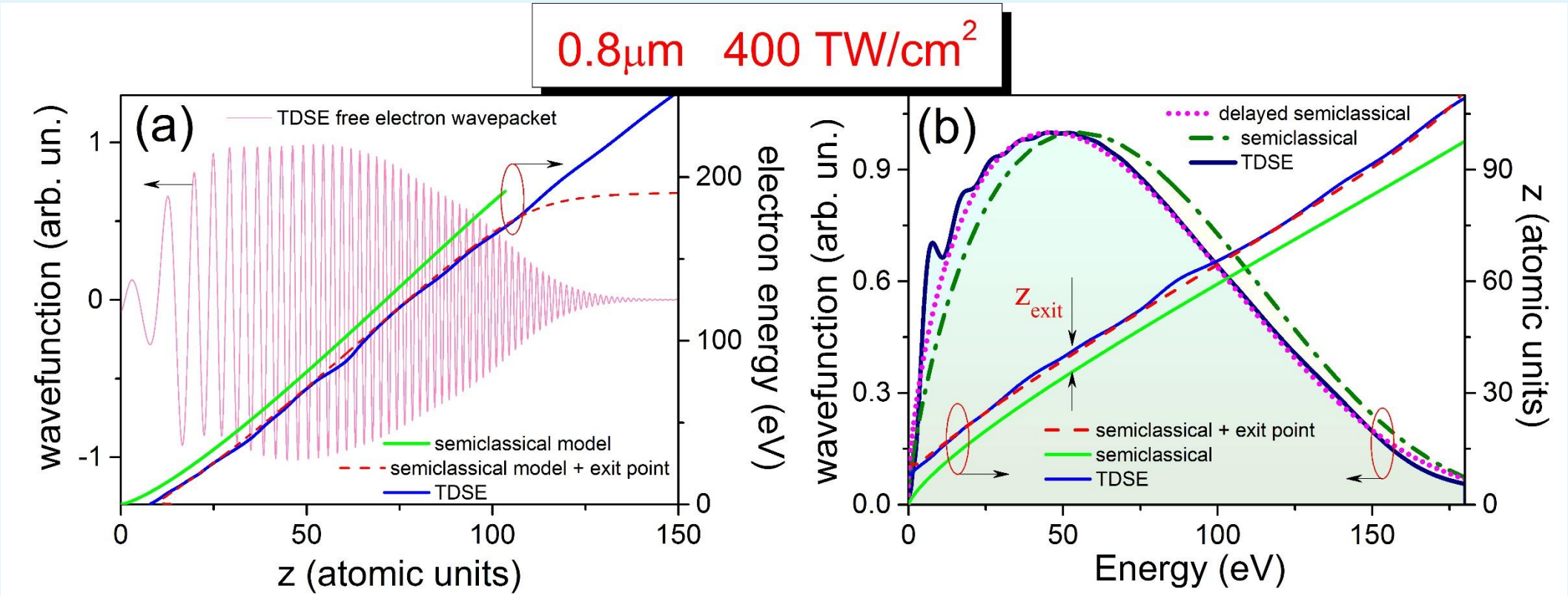
Импульсные спектры волновых пакетов свободных электронов в конце полуцикла поля **(T(ε))**, рассчитанные при помощи полуклассической модели (зелёная штрихпунктирная линия), использующей адиабатическую модель ионизации (см. формулу 11), а также полученные в результате численного решения уравнения Шредингера (тёмно-синяя кривая). Пурпурной штриховой линией показан полуклассический спектр, полученный при условии, что населённость континуума в пределах полуцикла была равномерно сдвинута на 0.033 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша). Синей кривой показано фазовое время (см. формулу 4) – производная фазы волнового пакета по электронной энергии в случае численного решения уравнения Шредингера. Сплошной зелёной и красной штриховой линией показаны производные фазы в случае полуклассической модели без учёта и с учётом точки выхода электронов соответственно (см. формулы 12 и 13)..

0.8 μm
200 TW/cm^2



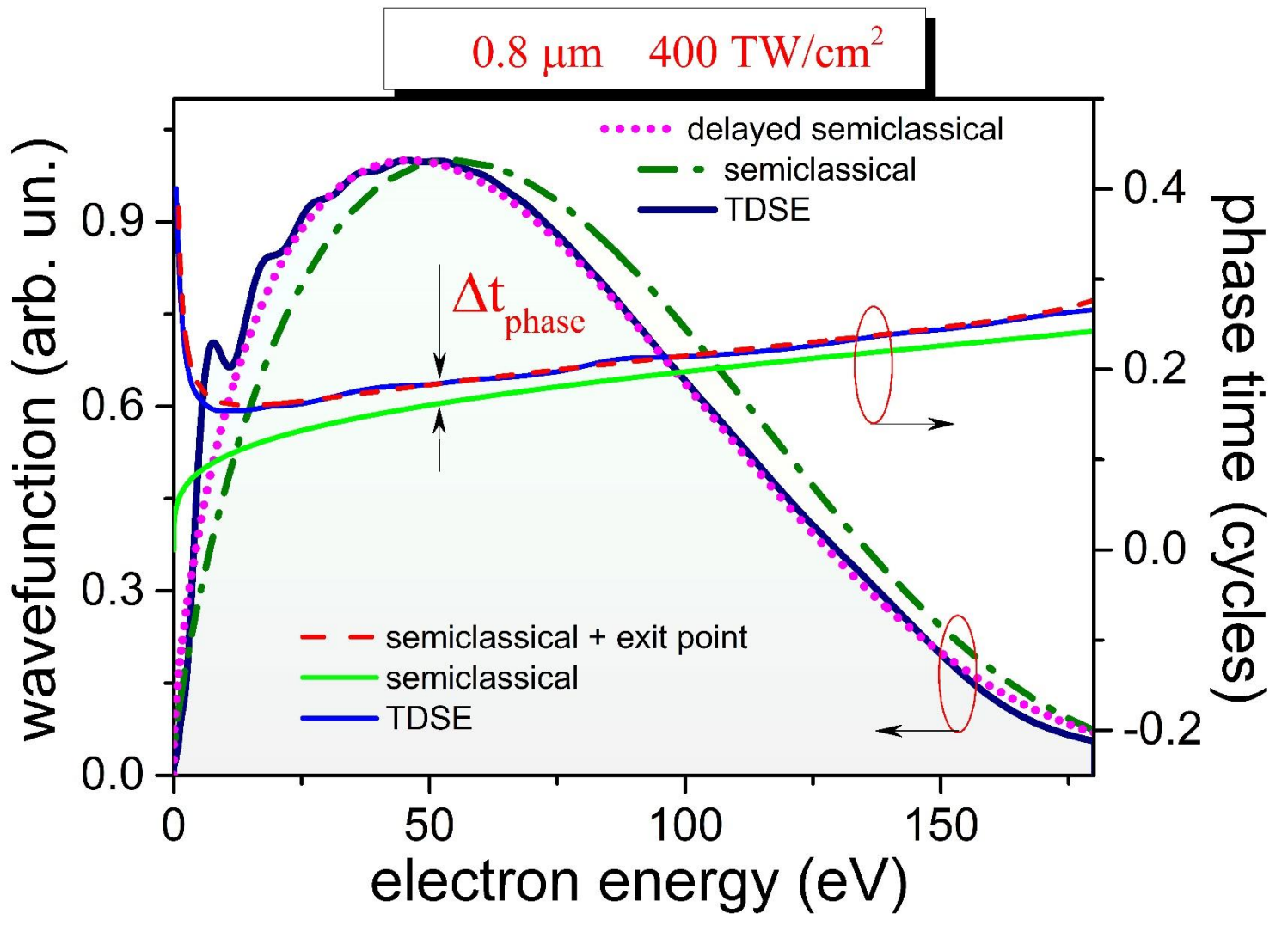
(a) Населённость континуума, рассчитанная в результате численного решения уравнения Шредингера (зелёная линия), а также в результате применения адиабатической модели ионизации (черная кривая), когда скорость ионизации однозначно определяется величиной поля в данный момент. Красная кривая получена из черной путём равномерного сдвига вдоль оси времени на Δt_{delay} = 0.033 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша).

(b) Производные населённостей континуума соответствующие кривым на (a). Они определяют относительное количество электронов, которые рождаются в континууме в данный момент времени.



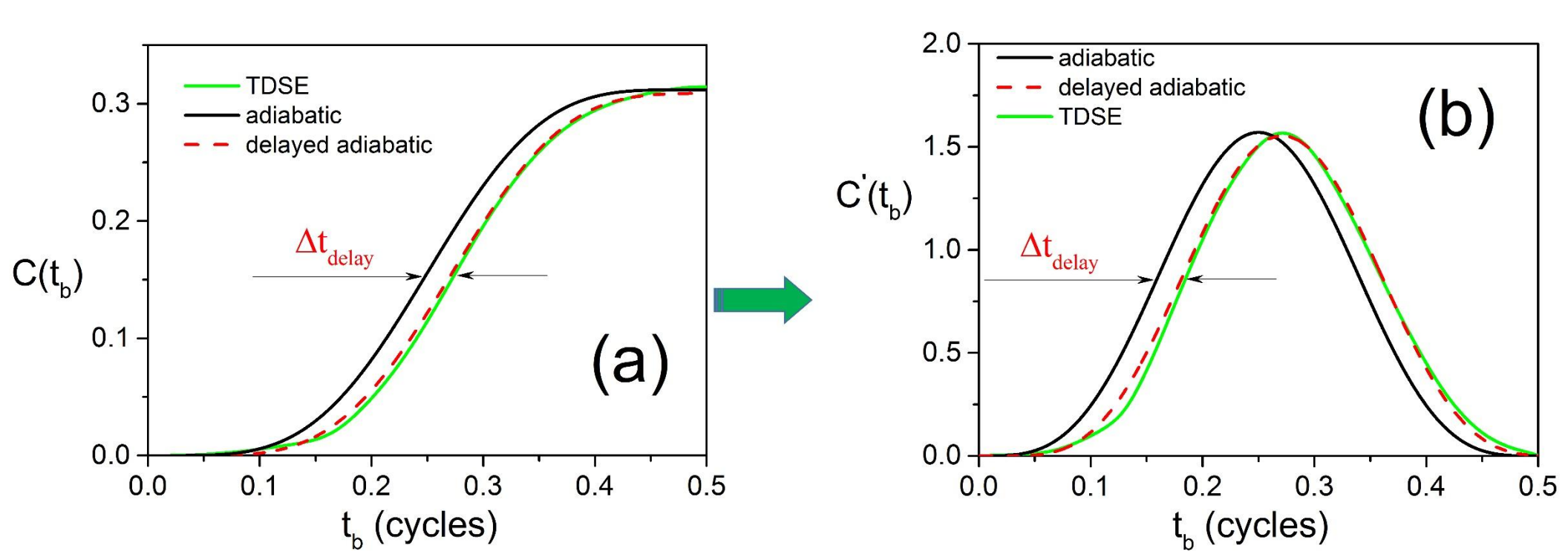
(a) Волновой пакет свободных электронов (показан розовым цветом) в конце полуцикла поля (пространственное представление реальной части волновой функции). Синяя кривая – производная фазы волнового пакета по координате (см. формулу 3), построенная в единицах кинетической энергии (мгновенная частота колебаний определяет импульс электронов) в случае численного решения уравнения Шредингера. Зелёной сплошной и красной штриховой линией показаны производные фазы (также в единицах энергии) в случае полуклассической модели без учёта (чёрная кривая) и с учётом (красная кривая) точки выхода электронов (расстояние равное ширине барьера).

(b) Импульсные спектры волновых пакетов (модуль в квадрате) свободных электронов в конце полуцикла поля, рассчитанные при помощи полуклассической модели (зелёная штрихпунктирная линия), использующей адиабатическую модель ионизации, а также полученные в результате численного решения уравнения Шредингера (синяя кривая). Пурпурной точечной линией показан полуклассический спектр, полученный при условии, что ступенька населённости континуума в пределах полуцикла была равномерно сдвинута на 0.025 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша). Сплошная зелёная кривая – производная импульсной фазы волнового пакета по импульсу в случае численного решения уравнения Шредингера. Синей и красной штриховой линией показаны производные фазы в случае полуклассической модели без учёта и с учётом точки выхода электронов соответственно.



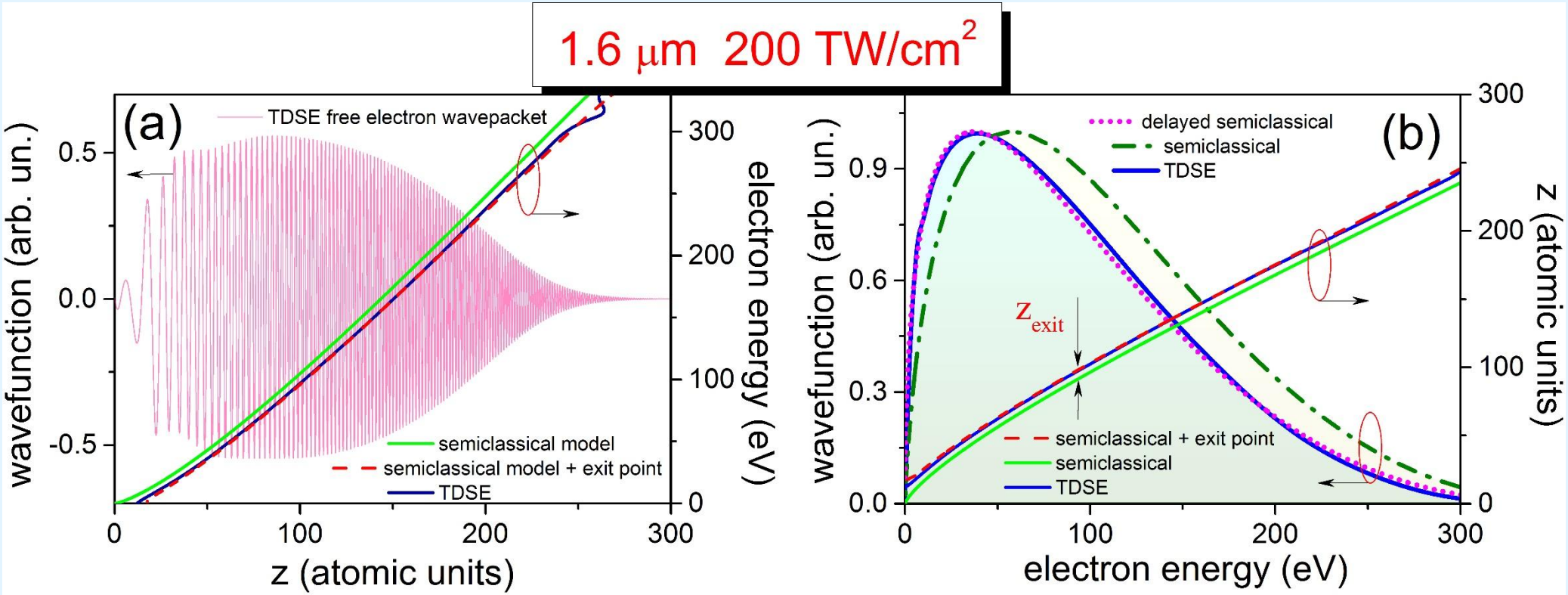
Импульсные спектры волновых пакетов свободных электронов в конце полуцикла поля **(T(ε))**, рассчитанные при помощи полуклассической модели (зелёная штрихпунктирная линия), использующей адиабатическую модель ионизации (см. формулу 11), а также полученные в результате численного решения уравнения Шредингера (тёмно-синяя кривая). Пурпурной штриховой линией показан полуклассический спектр, полученный при условии, что населённость континуума в пределах полуцикла была равномерно сдвинута на 0.025 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша). Синей кривой показано фазовое время (см. формулу 4) – производная фазы волнового пакета по электронной энергии в случае численного решения уравнения Шредингера. Сплошной зелёной и красной штриховой линией показаны производные фазы в случае полуклассической модели без учёта и с учётом точки выхода электронов соответственно (см. формулы 12 и 13).

0.8 μm
400 TW/cm^2



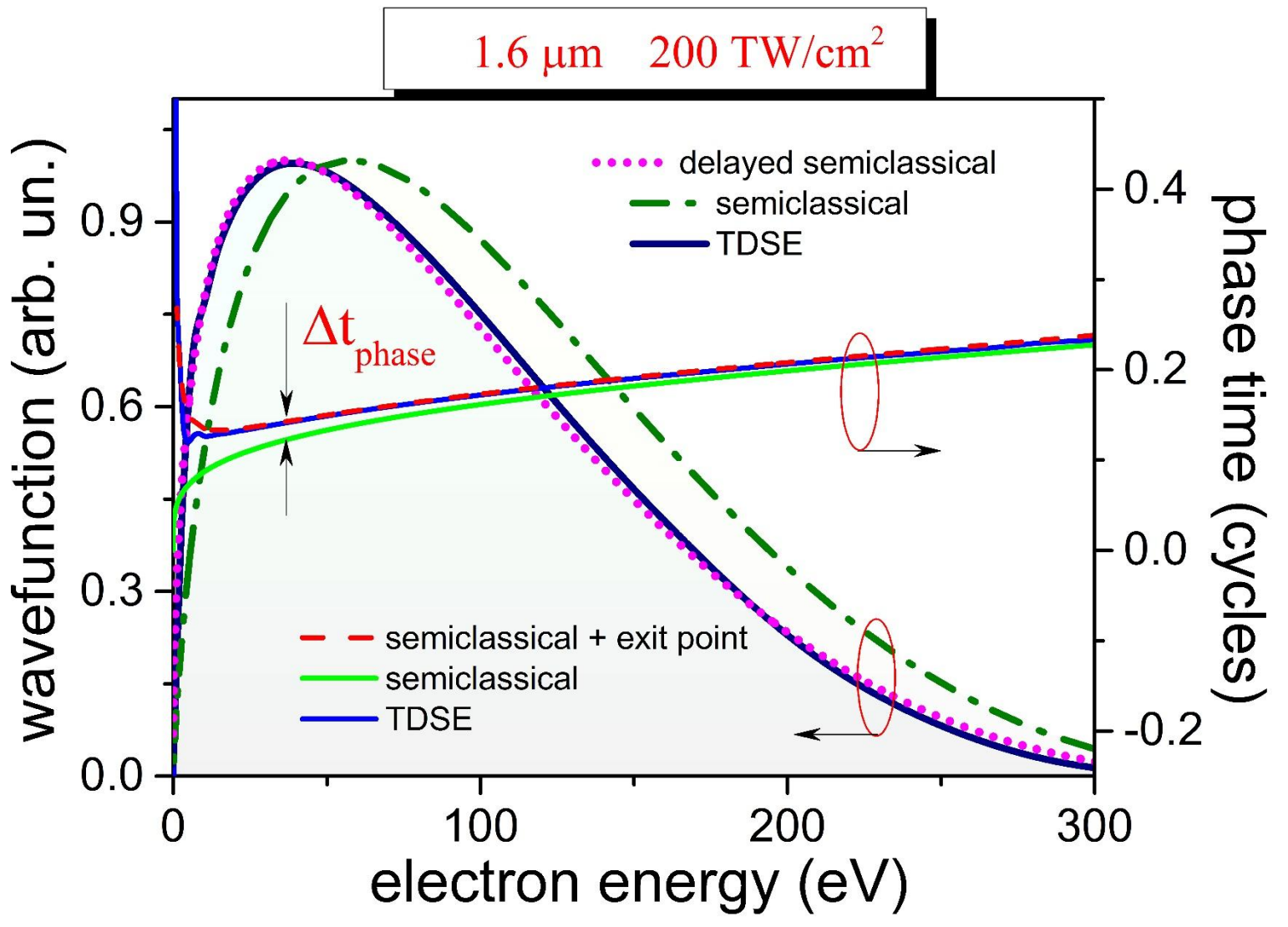
(a) Населённость континуума, рассчитанная в результате численного решения уравнения Шредингера (зелёная линия), а также в результате применения адиабатической модели ионизации (черная кривая), когда скорость ионизации однозначно определяется величиной поля в данный момент. Красная кривая получена из черной путём равномерного сдвига вдоль оси времени на Δt_{delay} = 0.025 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша).

(b) Производные населённостей континуума соответствующие кривым на (a). Они определяют относительное количество электронов, которые рождаются в континууме в данный момент времени.



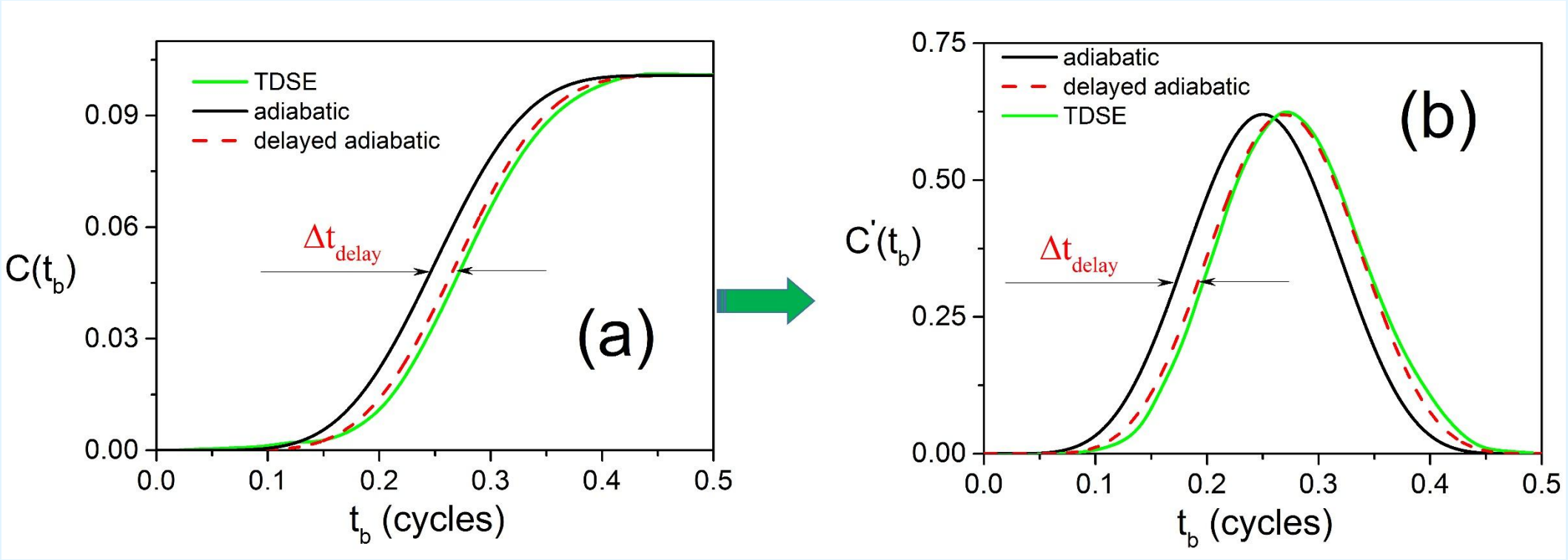
(a) Волновой пакет свободных электронов (показан розовым цветом) в конце полуцикла поля (пространственное представление реальной части волновой функции). Синяя кривая – производная фазы волнового пакета по координате (см. формулу 3), построенная в единицах кинетической энергии (мгновенная частота колебаний определяет импульс электронов) в случае численного решения уравнения Шредингера. Зелёной сплошной и красной штриховой линией показаны производные фазы (также в единицах энергии) в случае полуклассической модели без учёта (чёрная кривая) и с учётом (красная кривая) точки выхода электронов (расстояние равное ширине барьера).

(b) Импульсные спектры волновых пакетов (модуль в квадрате) свободных электронов в конце полуцикла поля, рассчитанные при помощи полуклассической модели (зелёная штрихпунктирная линия), использующей адиабатическую модель ионизации, а также полученные в результате численного решения уравнения Шредингера (синяя кривая). Пурпурной точечной линией показан полуклассический спектр, полученный при условии, что ступенька населённости континуума в пределах полуцикла была равномерно сдвинута на 0.016 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша). Сплошная зелёная кривая – производная импульсной фазы волнового пакета по импульсу в случае численного решения уравнения Шредингера. Синей и красной штриховой линией показаны производные фазы в случае полуклассической модели без учёта и с учётом точки выхода электронов соответственно.



Импульсные спектры волновых пакетов свободных электронов в конце полуцикла поля **(T(ε))**, рассчитанные при помощи полуклассической модели (зелёная штрихпунктирная линия), использующей адиабатическую модель ионизации (см. формулу 11), а также полученные в результате численного решения уравнения Шредингера (тёмно-синяя кривая). Пурпурной штриховой линией показан полуклассический спектр, полученный при условии, что населённость континуума в пределах полуцикла была равномерно сдвинута на 0.016 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша). Синей кривой показано фазовое время (см. формулу 4) – производная фазы волнового пакета по электронной энергии в случае численного решения уравнения Шредингера. Сплошной зелёной и красной штриховой линией показаны производные фазы в случае полуклассической модели без учёта и с учётом точки выхода электронов соответственно (см. формулы 12 и 13)..

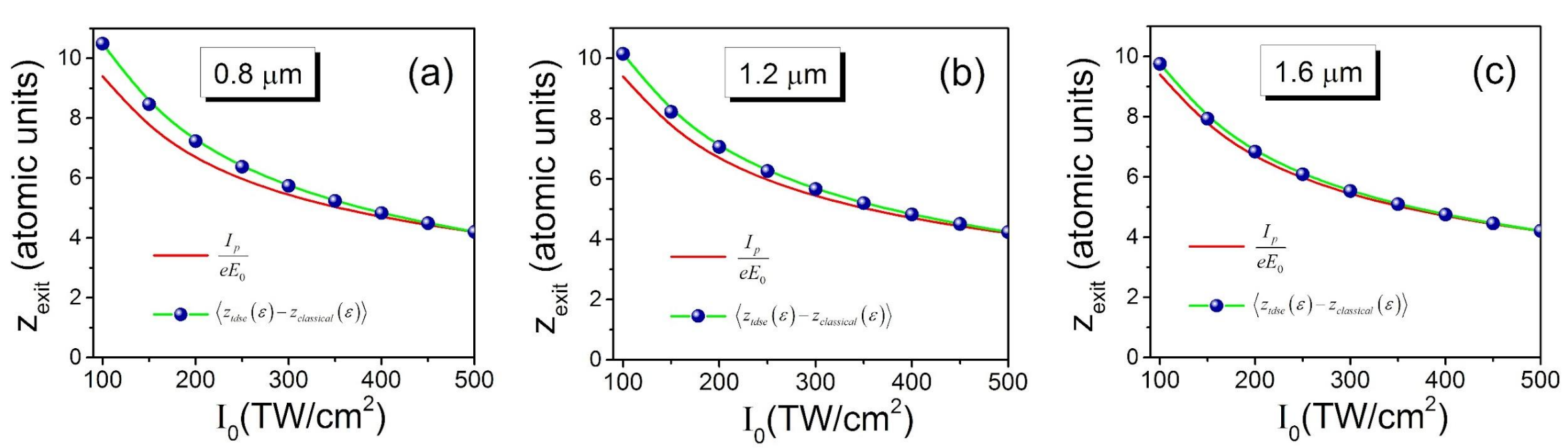
1.6 μm
200 TW/cm^2



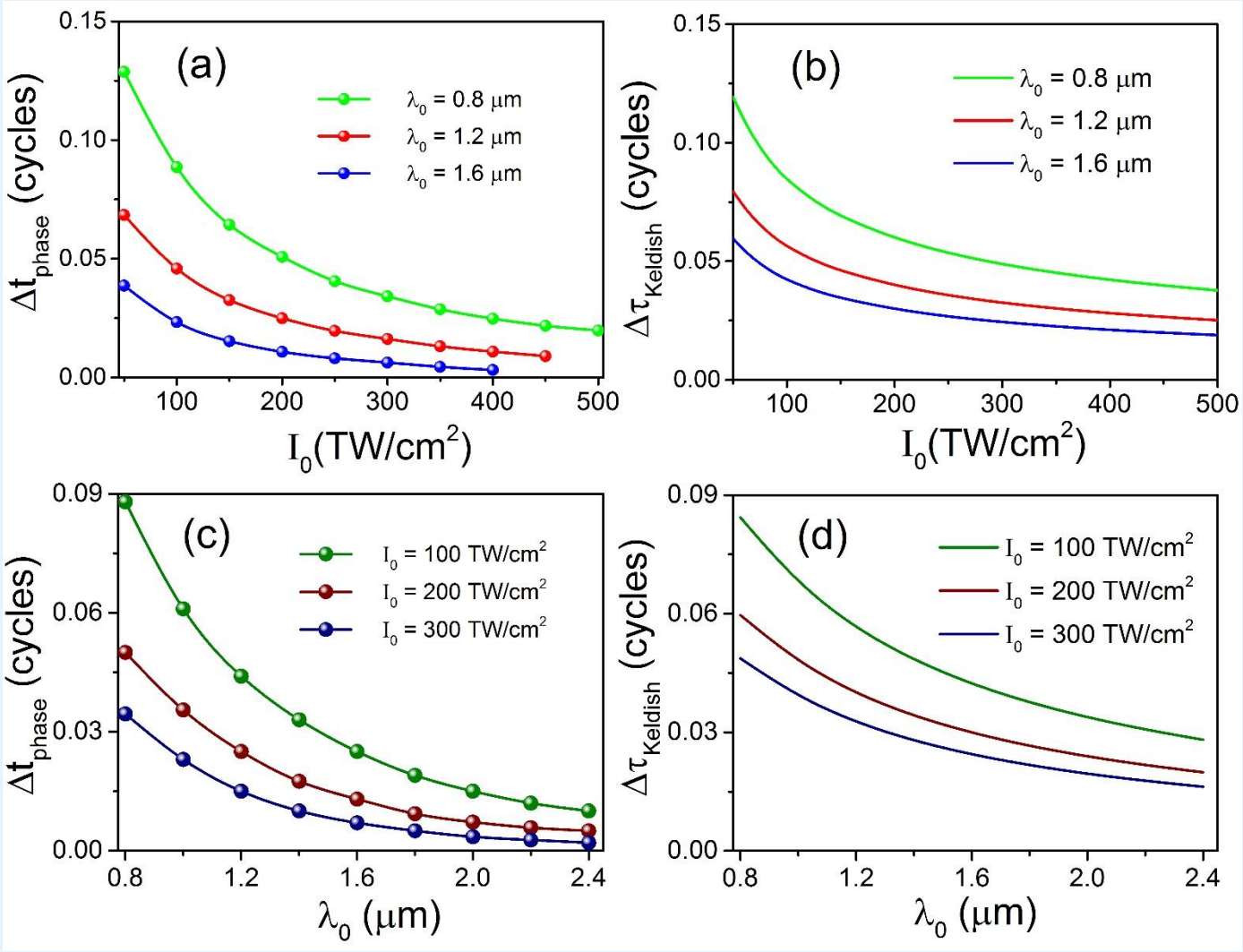
(a) Населённость континуума, рассчитанная в результате численного решения уравнения Шредингера (зелёная линия), а также в результате применения адиабатической модели ионизации (черная кривая), когда скорость ионизации однозначно определяется величиной поля в данный момент. Красная кривая получена из черной путём равномерного сдвига вдоль оси времени на Δt_{delay} = 0.016 цикла (примерно 0.5 времени Келдыша).

(b) Производные населённостей континуума соответствующие кривым на (a). Они определяют относительное количество электронов, которые рождаются в континууме в данный момент времени.

Средняя точка выхода электронов.



Зависимость ширины стационарного барьера при пиковой интенсивности поля в сравнении с разницей средней координаты центра масс волнового пакета в полуклассической модели и получаемой при численном решении уравнения Шредингера (см. формулу (9) на слайде 3). Расчёты выполнены для трёх разных длин волн – 0.8 мкм (a), 1.2 мкм (b) и 1.6 мкм (c).

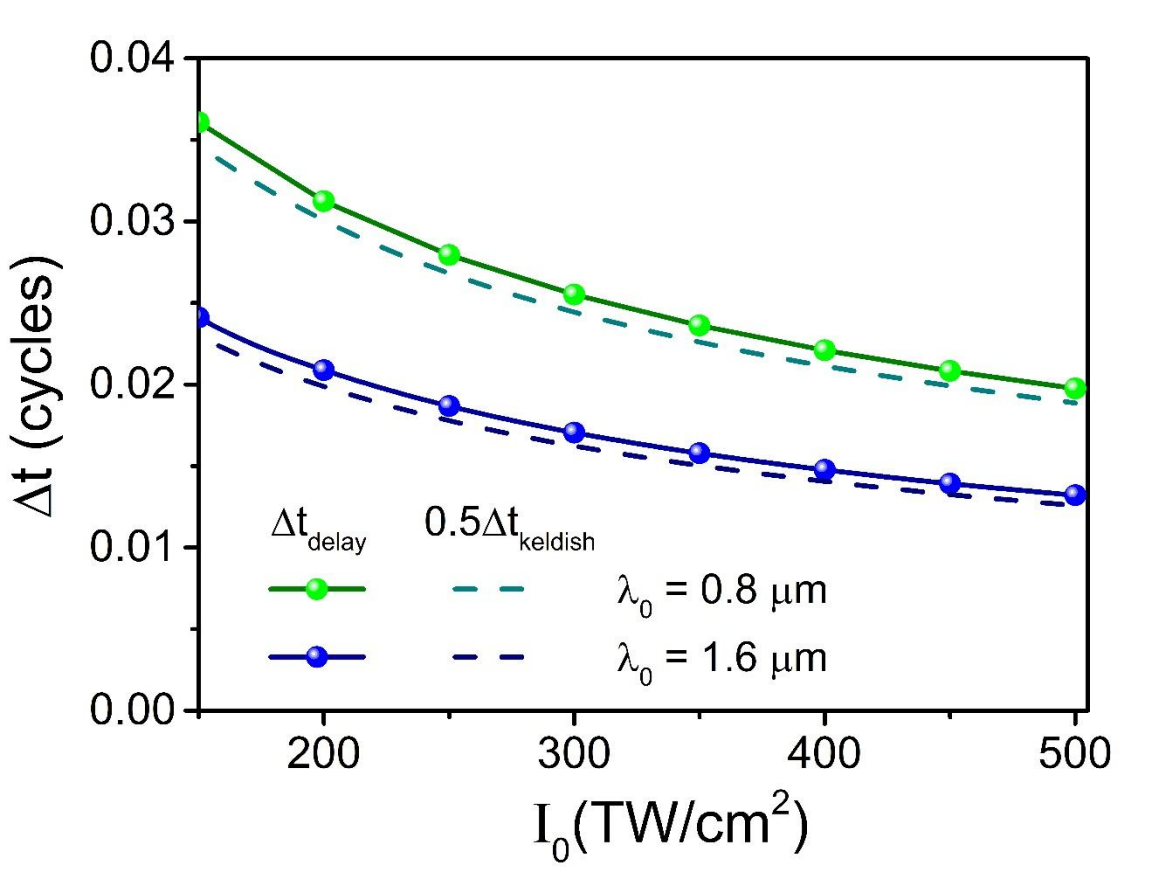


$$\Delta\tau_{Keldish} = \frac{\gamma T_0}{4\pi} = \frac{1}{eE_0}\sqrt{\frac{m_e I_p}{2}}$$

(a) и (c) – фазовое время, характеризующее фазовую задержку ионизации в результате наличия ненулевой точки выхода в континуум (равной ширине барьера в момент перехода электрона из связанного в свободное состояние), извлеченную из пространственного представления волнового пакета, сформированного в результате туннелирования в процессе одного полуцикла поля. Данные времена находились как разница между фазовыми временами, полученными в результате численного решения уравнения Шредингера и полуклассической моделью, использующей адиабатическую модель ионизации, и усреднялись по волновому пакету.

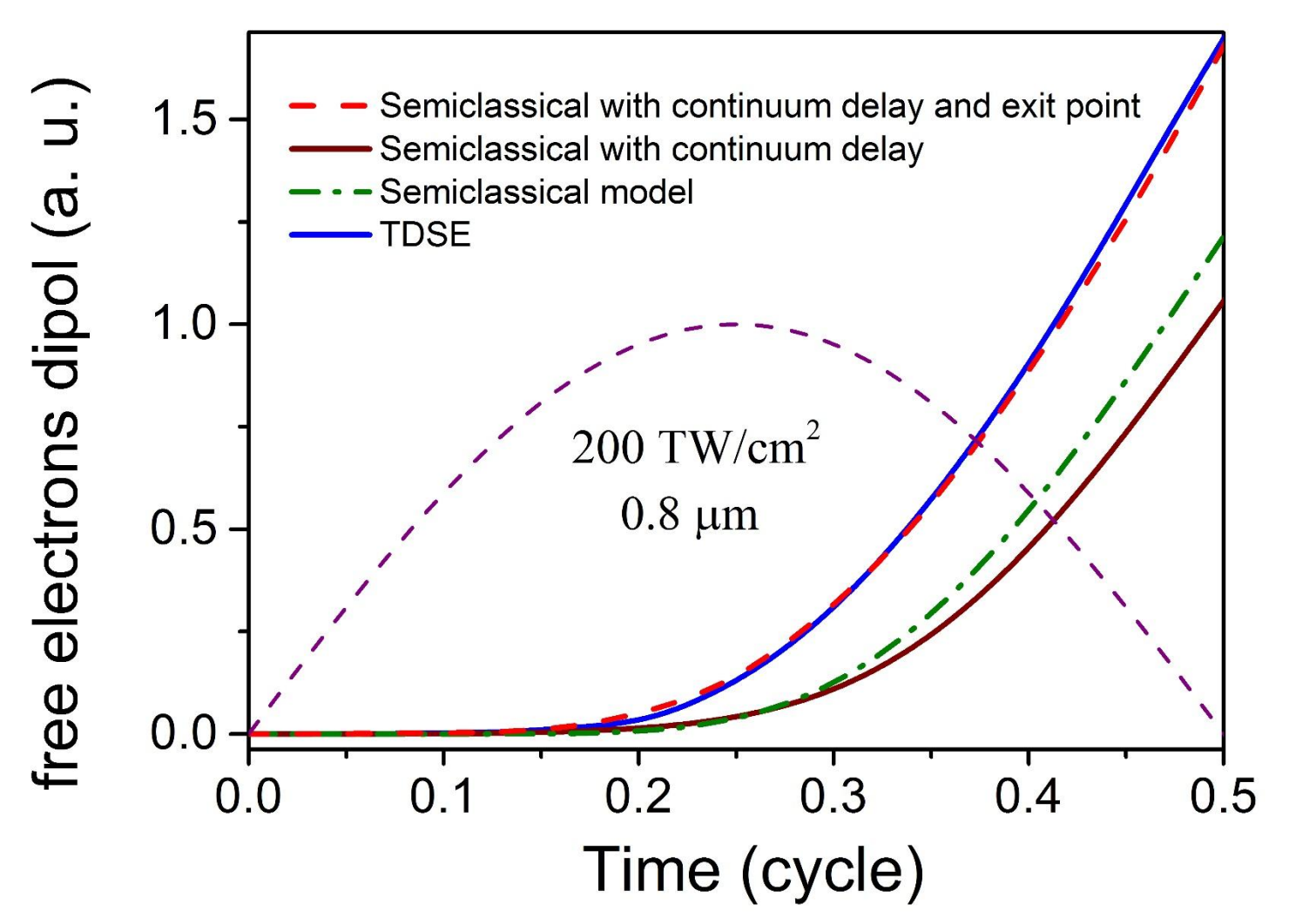
(b) и (d) – зависимости времени туннелирования Келдыша от длины волны и интенсивности поля (формула для времени Келдыша приведена на данном слайде).

Задержка профиля населённости континуума.



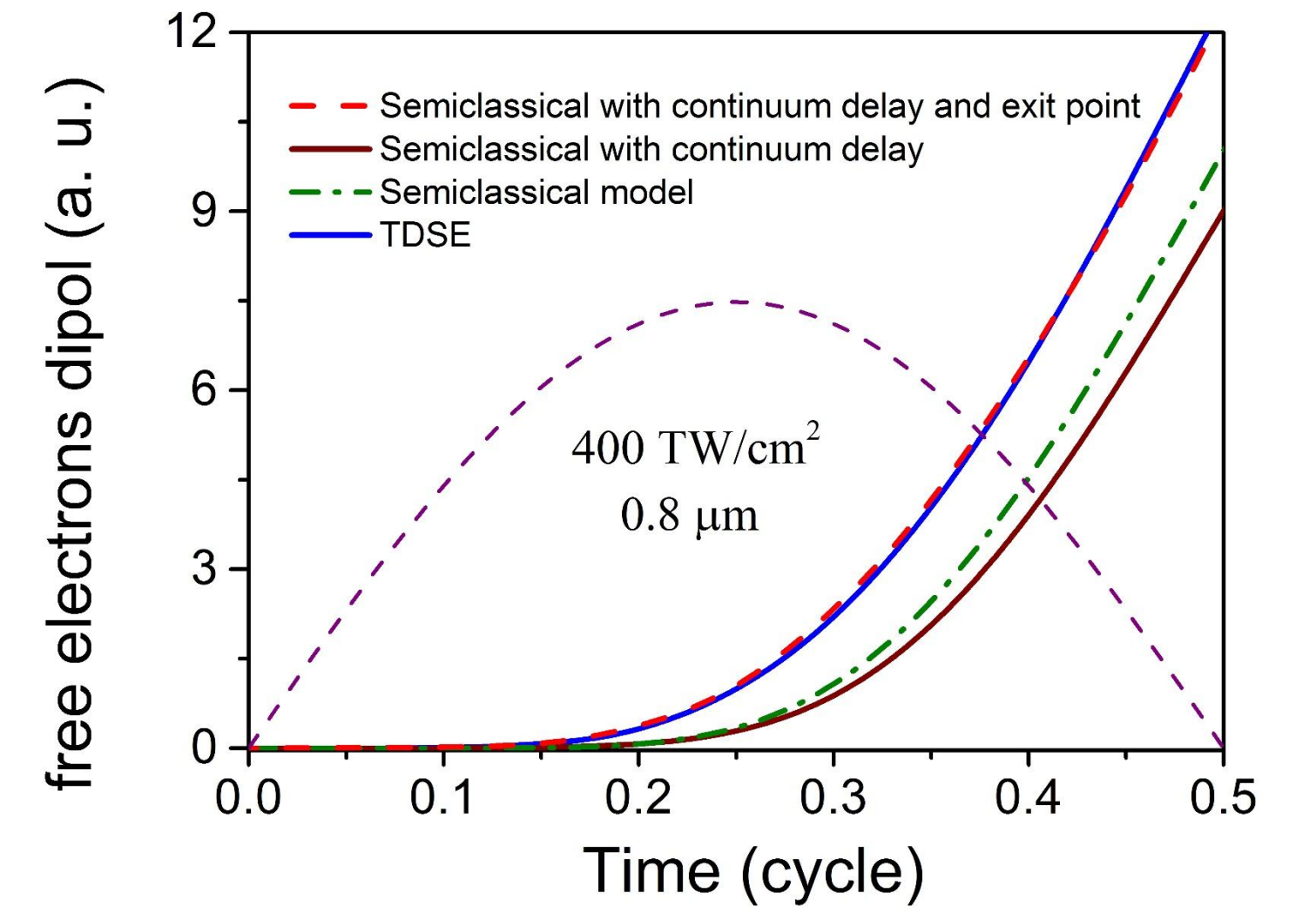
Время задержки профиля населённости континуума. Данное время было извлечено из пространственного представления волнового пакета, сформированного в результате туннелирования в процессе одного полуцикла поля. Оно подбиралось таким образом, чтобы при сдвиге профиля (ступеньки) населённости континуума амплитуда волнового пакета (а самое главное его центр масс) в полуклассическом случае с хорошей точностью совпадал с численным решением уравнения Шредингера (см. пунктирные пурпурные линии на слайдах 6, 9, 12).

Сравнение дипольного момента внутри одиночного полуцикла, получаемого при помощи полуклассической модели и численного решения уравнения Шредингера



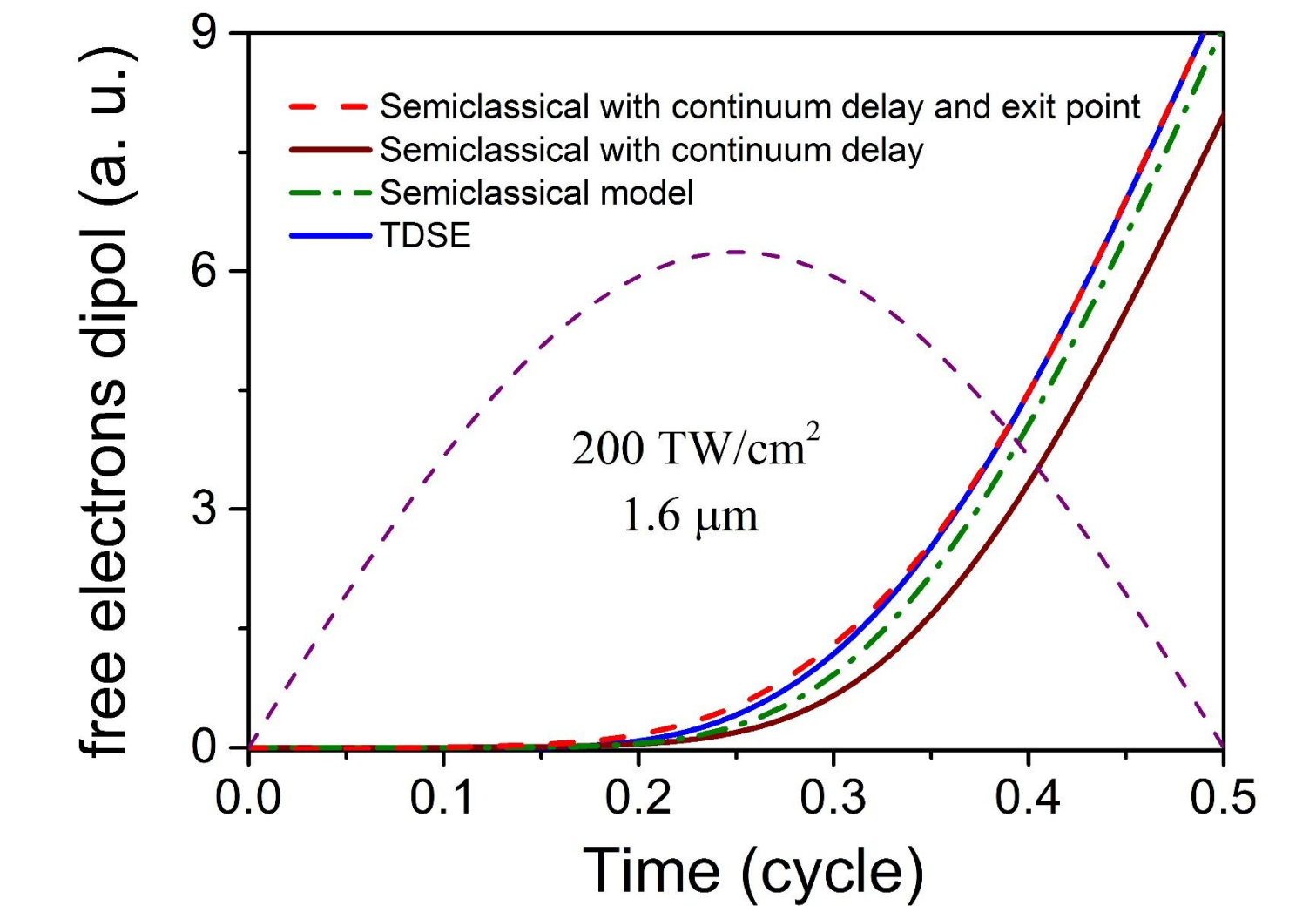
Сравнение дипольного момента внутри одиночного полуцикла, получаемого при помощи полуклассической модели и численного решения уравнения Шредингера (синяя кривая). Зелёная кривая не учитывает задержку профиля населённости континуума и точку выхода, сплошная тёмно-красная кривая учитывает только задержку профиля населённости континуума, а красная пунктирная кривая учитывает оба этих фактора. Кривые построены для пиковой интенсивности поля (пурпурная штриховая линия) равной 200 ТВ/см^2 и длины волны 0.8 мкм.

Сравнение дипольного момента внутри одиночного полуцикла, получаемого при помощи полуклассической модели и численного решения уравнения Шредингера



Сравнение дипольного момента внутри одиночного полуцикла, получаемого при помощи полуклассической модели и численного решения уравнения Шредингера (синяя кривая). Зелёная кривая не учитывает задержку профиля населённости континуума и точку выхода, сплошная тёмно-красная кривая учитывает только задержку профиля населённости континуума, а красная пунктирная кривая учитывает оба этих фактора. Кривые построены для пиковой интенсивности поля (пурпурная штриховая линия) равной 400 ТВ/см^2 и длины волны 0.8 мкм.

Сравнение дипольного момента внутри одиночного полуцикла, получаемого при помощи полуклассической модели и численного решения уравнения Шредингера



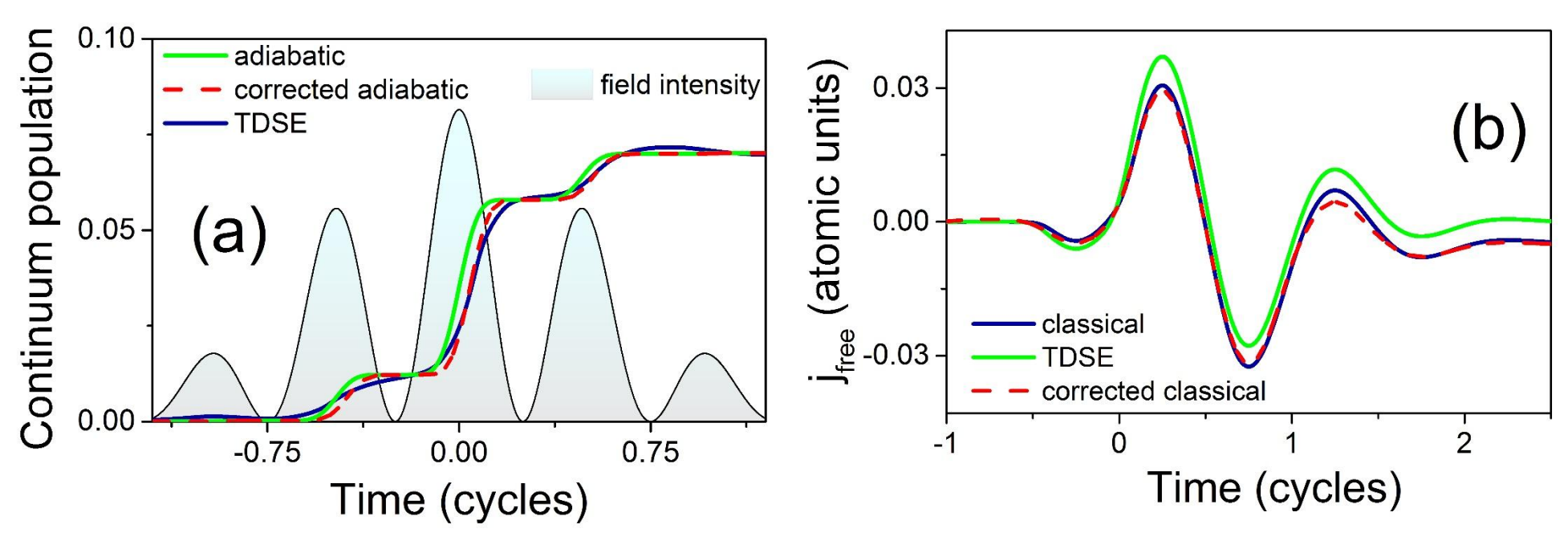
Сравнение дипольного момента внутри одиночного полуцикла, получаемого при помощи полуклассической модели и численного решения уравнения Шредингера (синяя кривая). Зелёная кривая не учитывает задержку профиля населённости континуума и точку выхода, сплошная тёмно-красная кривая учитывает только задержку профиля населённости континуума, а красная пунктирная кривая учитывает оба этих фактора. Кривые построены для пиковой интенсивности поля (пурпурная штриховая линия) равной 200 ТВ/см^2 и длины волны 1.6 мкм.

Оптический нелинейный отклик атомарного водорода на действие короткого одночастотного импульса

Поле короткого импульса в расчётах задавалось формулой : $E(t) = \left(E_0 \cos(\omega t)\right) \cdot e^{-(t/\tau_o)^2}$

Длительность импульса составляла примерно 1 цикл поля на длине волны 800 нм и задавалась значением параметра $\tau_0 = 3\ фс$

Пиковая интенсивность импульса составляла 200 ТВ/см^2.



(a) – населённости континуума, полученные на основании численного решения уравнения Шредингера (синие линии), а также адиабатической модели (зелёные линии). Красной штрихпунктирной линией показана кривая полученная при помощи адиабатической модели, но сдвинутая примерно на 0.04 цикла (основной гармоники), что примерно соответствует половине времени Келдыша для интенсивности равной 200 ТВ/см^2.

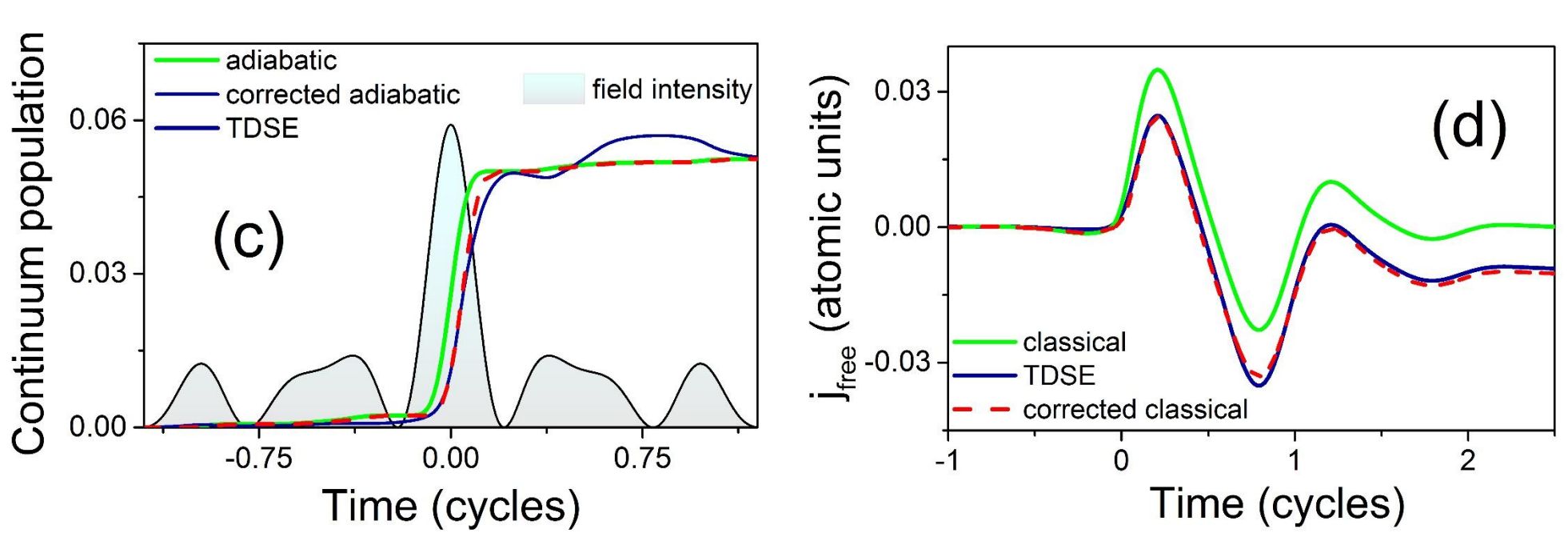
(b) – ток свободных электронов (ток вероятности континуума), полученный в результате численного решения уравнения Шредингера (синие линии), а также вычисленных на основании населённостей континуума, полученных в результате применения задержанной на 0.04 цикла (красная штриховая линия) и незадержанной адиабатической модели (зелёная линия).

Оптический нелинейный отклик атомарного водорода на действие короткого двухчастотного импульса

Поле короткого импульса в расчётах задавалось формулой : $E(t) = \left(E_1 \cos(\omega t) + E_2 \cos(2\omega t)\right) \cdot e^{-(t/\tau_o)^2}$

Длительность каждого импульса составляла примерно 1 цикл поля на длине волны 800 нм и задавалась значением параметра $\tau_0 = 3\ фс$

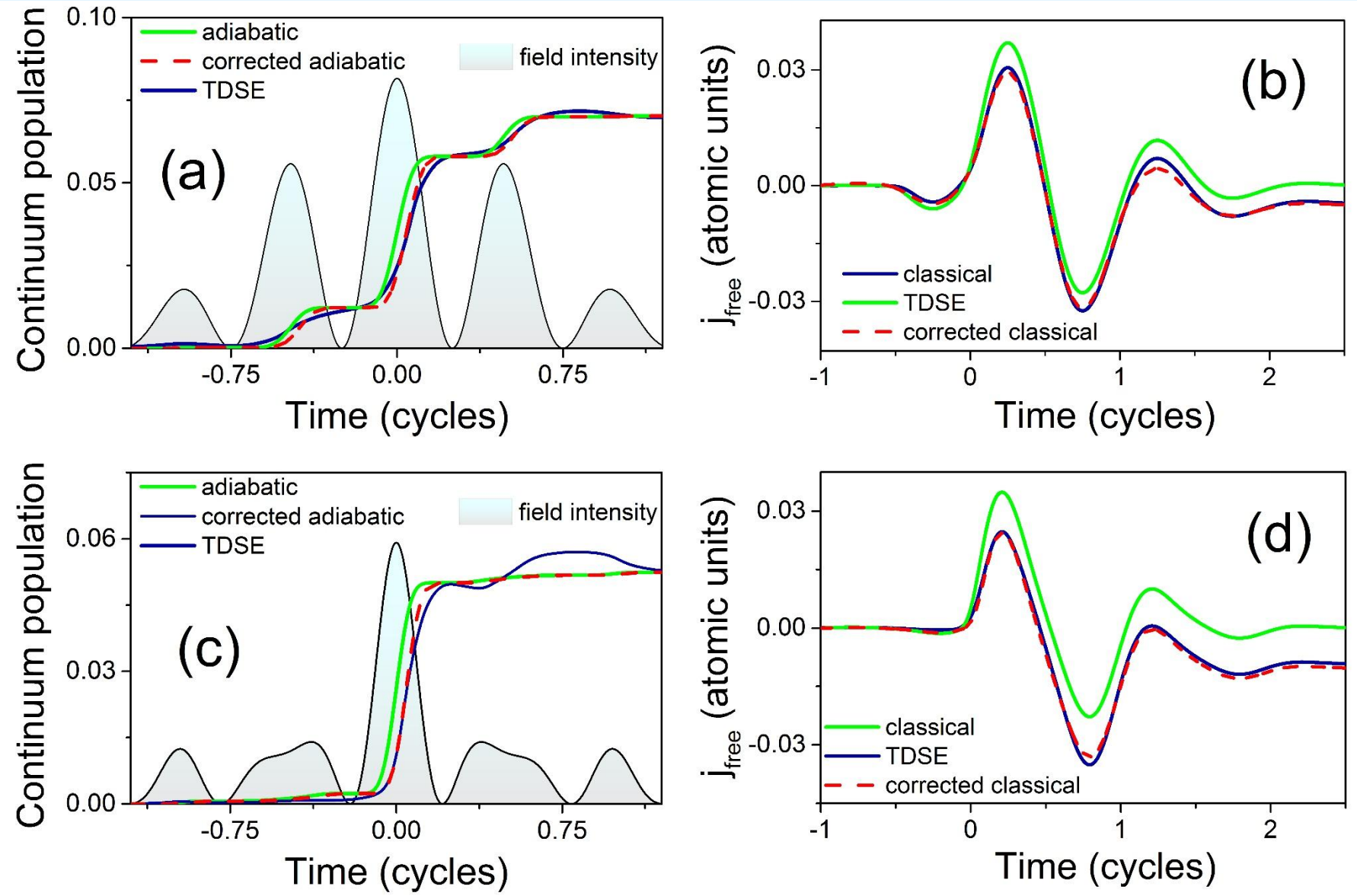
Пиковая интенсивность итогового импульса составляла 200 ТВ/см^2 при соотношении амплитуд E_2/E_1=0.3.



(c) – населённости континуума, полученные на основании численного решения уравнения Шредингера (синие линии), а также адиабатической модели (зелёные линии). Красной штрихпунктирной линией показана кривая полученная при помощи адиабатической модели, но сдвинутая примерно на 0.04 цикла (основной гармоники), что примерно соответствует половине времени Келдыша для интенсивности равной 200 ТВ/см^2.

(d) – ток свободных электронов (ток вероятности континуума), полученный в результате численного решения уравнения Шредингера (синие линии), а также вычисленных на основании населённостей континуума, полученных в результате применения задержанной на 0.04 цикла (красная штриховая линия) и незадержанной адиабатической модели (зелёная линия).

Рис. 4


(a)
Continuum population
0.10
0.05
0.00
adiabatic
corrected adiabatic
TDSE
field intensity
-0.75
0.00
0.75
Time (cycles)
(b)
j_{free} (atomic units)
0.03
0.00
-0.03
classical
TDSE
corrected classical
-1
0
1
2
Time (cycles)
(c)
Continuum population
0.06
0.03
0.00
adiabatic
corrected adiabatic
TDSE
field intensity
-0.75
0.00
0.75
Time (cycles)
(d)
j_{free} (atomic units)
0.03
0.00
-0.03
classical
TDSE
corrected classical
-1
0
1
2
Time (cycles)

Оптический нелинейный отклик атомарного водорода на действие короткого двухчастотного импульса

Рассмотрим случай оптического нелинейного отклика атомарного водорода на действие двухчастотного поля, состоящего из основной частоты и её слабой второй гармоники.

Импульс в расчётах задавался формулой :

$$E(t) = \left(E_1 \cos(\omega t) + E_2 \cos(2\omega t + \varphi)\right) \cdot e^{-(t/\tau_o)^4}$$

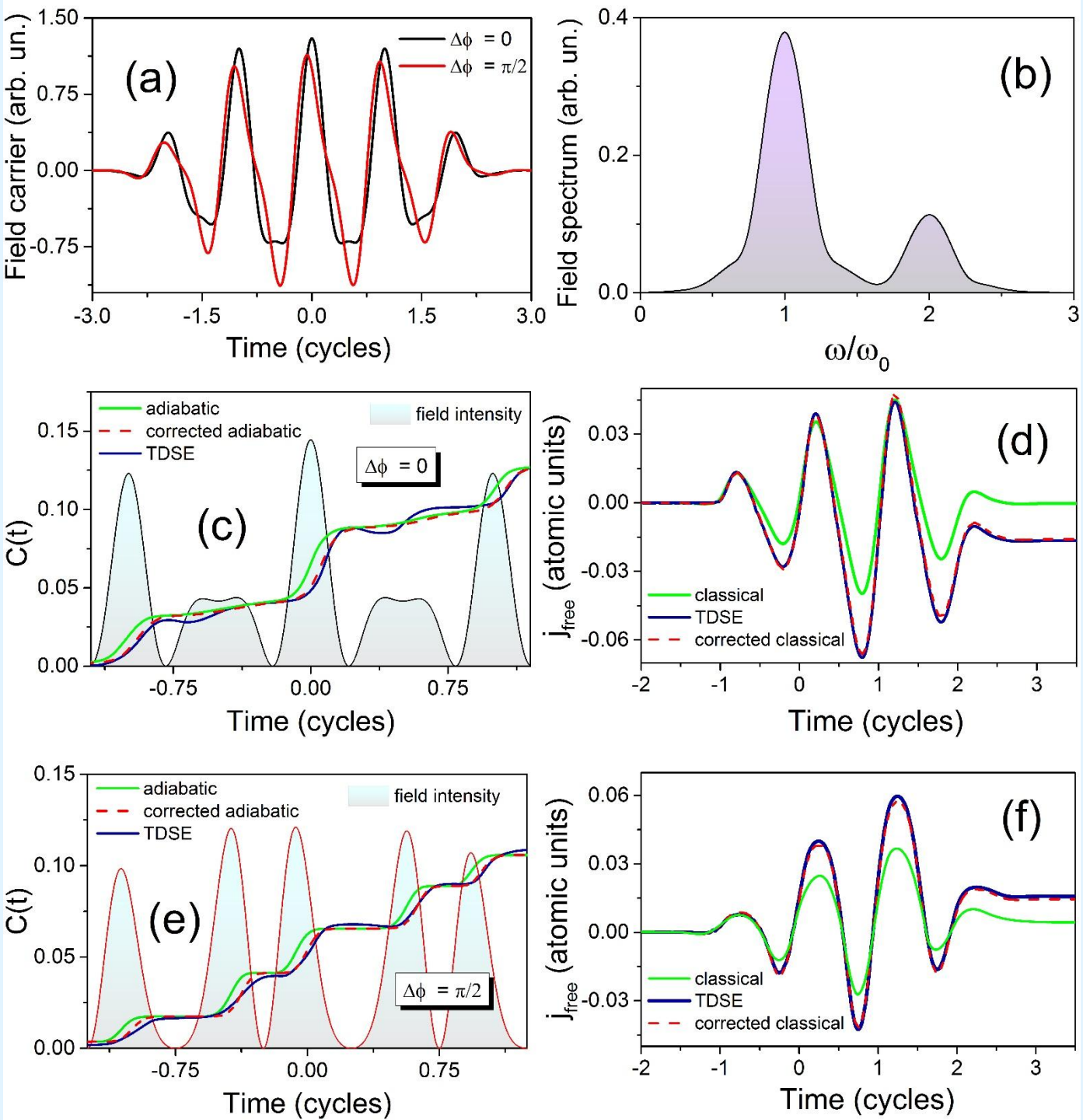
В расчётах, представленных на следующем слайде, соотношение амплитуд первой и второй гармоник всегда было одинаковым:

$$\frac{E_2}{E_1} = 0.3$$

Длительность импульса основной и второй гармоник в расчётах была одинаковой и задавалась значением параметра $\tau_0 = 5\ фс$

Несущие импульсов с разной фазовой расстройкой между гармониками, а также их спектр (не зависит от расстройки), показаны на графиках (a) и (b) соответственно (см. следующий слайд). Населённость континуума, полученная при помощи численного решения уравнения Шредингера показана синей линией на панелях (c) и (e). Результат, который получается на основании адиабатической модели представлена на этих графиках зелёной линией, а красной штрихпунктирной линией показана эта же кривая, но сдвинутая примерно на 0.04 цикла (основной гармоники), что примерно соответствует половине времени Келдыша для интенсивности равной 200 ТВ/см^2.

На панелях (d) и (f) показан ток свободных электронов. Синей кривой показан результат численного решения уравнения Шредингера, а красной штриховой и сплошной зелёной линиями представлены зависимости полуклассического тока свободных электронов, вычисленных на основании населённостей континуума, полученных в результате применения задержанной (на 0.04 цикла) и незадержанной адиабатической модели.



(a) и (b) -- несущие импульсов с фазовой расстройкой между гармониками равной $\phi = 0$ (чёрная линия) и $\phi = \pi/2$, а также их спектр (не зависит от расстройки). Пиковая интенсивность импульса на основной частоте составляла 120 ТВ/см^2, а суммарная пиковая интенсивность с учётом импульса второй гармоники равнялась примерно 200 ТВ/см^2.

(c) и (e) – населённости континуума, полученные на основании численного решения уравнения Шредингера (синие линии), а также адиабатической модели (зелёные линии). Красной штрихпунктирной линией показана кривая полученная при помощи адиабатической модели, но сдвинутая примерно на 0.04 цикла (основной гармоники), что примерно соответствует половине времени Келдыша для интенсивности равной 200 ТВ/см^2.

(d) и (f) – ток свободных электронов (ток вероятности континуума), полученный в результате численного решения уравнения Шредингера (синие линии), а также вычисленных на основании населённостей континуума, полученных в результате применения задержанной на 0.04 цикла (красная штриховая линия) и незадержанной адиабатической модели (зелёная линия).