

02

## **Взаимодействие ультракороткого импульса с молекулярным ионом водорода**

© М.К. Есеев, В.И. Матвеев

Поморский государственный университет имени М.В. Ломоносова,  
Архангельск  
E-mail: eseev.marat@pomorsu.ru

Поступило в Редакцию 2 июня 2009 г.

Получены аналитические выражения для спектра переизлучения при взаимодействии ультракороткого импульса электромагнитного поля с молекулярным ионом водорода. На примере спектра исследованы эффекты ориентации оси молекулярного иона при данном взаимодействии. Показана сильная зависимость спектров переизлучения от ориентации молекулярных мишеней.

PACS: 42.65.Re, 34.80.Gs, 33.80.-b

Под ультракороткими импульсами в данной работе понимаются импульсы, длительность которых меньше характерных периодов времени для молекулы-мишени [1]. Напряженность электрического поля в ультракоротких импульсах может быть сопоставима с внутриатомным полем. Поэтому не следует налагать на характеристики ограничения, связанные с применением теории возмущений, и использовать непertурбативные подходы. Поле ультракороткого импульса оказывает на атомы и молекулы встряскообразное возмущение. Это воздействие не осложнено длительным процессом временной эволюции и перестройки атомных состояний. Встряхивание атома обуславливает различные электронные переходы внутри атома, что сопровождается переизлучением налетающего ультракороткого импульса. Предварительно авторами исследовались неупругие процессы в атомах при столкновении с быстрыми многозарядными ионами и ультракороткими импульсами электромагнитного поля [1,2]. Полученные спектры переизлучения позволили исследовать корреляционные эффекты на примере атома гелия и сформулировать динамические критерии корректности аналитических волновых функций [3]. В работе [4] были рассчитаны

парциальные спектры переизлучения при взаимодействии с водородо-подобными ионами или атомами. По сравнению с атомом молекула является более сложной системой, и процессы, возникающие при ее взаимодействии с ультракоротким импульсом электромагнитного поля, определяются такими молекулярными параметрами, как ориентация молекулы, межъядерное расстояние. В последнее время значительный интерес вызывают исследования ионизации и диссоциации молекул водорода и молекулярного иона в сверхсильных электромагнитных лазерных полях [5–8]. В этих работах обсуждается экспериментально подтвержденная зависимость молекулярных откликов, а именно спектров высоких гармоник оптического излучения при ионизации молекул, от их ориентации, межъядерного расстояния и симметрии орбиталей. Отдельной задачей является расчет спектров переизлучения ультракоротких импульсов электромагнитного поля на молекуле водорода. Расчет с молекулой водорода усложнен двухцентровым рассеянием падающего ультракороткого импульса, учетом межэлектронных корреляций и выстроенности рассеивающих центров. В общем случае мы можем использовать приближение Гайтлера–Лондона [9] для описания молекулы водорода, получение спектра переизлучения в аналитической форме в этом случае затруднительно. Однако в случае молекулярного иона водорода  $\text{H}_2^+$  можно использовать наши расчеты по парциальным спектрам переизлучения ультракоротких импульсов на атоме водорода.

Пусть ультракороткий импульс электромагнитного поля гауссовой формы взаимодействует с молекулярным ионом. По сути дела на ион падает плоская электромагнитная волна в виде ультракороткого импульса длительностью  $\tau \leq 10^{-18}$  s. Напряженность электрического поля импульса задается выражением:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp \left\{ -\alpha^2 \left( t - \frac{\mathbf{k}_0 \mathbf{r}}{\omega_0} \right)^2 \right\} \cos(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \mathbf{r}),$$

где  $\alpha$  — параметр затухания в гауссовом импульсе принимает значения  $\alpha = 1/\tau$ ,  $\omega_0$  — частота налетающего ультракороткого импульса,  $\mathbf{k}_0$  — его волновой вектор,  $\mathbf{E}_0$  — амплитуда напряженности поля в ультракоротком электромагнитном импульсе [1] (здесь и ниже использована атомная система единиц). В результате действия сверхсильного электромагнитного поля импульса электронная система переизлучает

фотоны с волновым вектором  $\mathbf{k}$ . Вероятность испускания фотона заданной частоты  $\omega$  в единицу телесного угла  $\Omega_k$  с одновременным переходом при возбуждении электронной системы из основного состояния  $|0\rangle$  в возбужденное  $|n\rangle$   $d^2W_{0n}/d\Omega_k d\omega$  может быть найдена в приближении внезапных возмущений. Проинтегрированное по углам вылета переизлученных фотонов выражение для вероятности представляет собой парциальный спектр  $dW_{0n}/d\omega$ . Просуммировав парциальный спектр по всем конечным состояниям системы  $|n\rangle$  (состояния  $|0\rangle$  и  $|n\rangle$  принадлежат полной ортонормированной системе собственных функций невозмущенного гамильтониана), найдем для молекулярного иона полный спектр испускания фотона (ср. [1]):

$$\frac{d^2W}{d\Omega_k d\omega} = \frac{1}{(2\pi)^2 c^3 \omega} \langle \varphi_0 | \left[ \frac{\partial \tilde{V}(\omega)}{\partial \mathbf{r}} \times \mathbf{n} \right] \left[ \frac{\partial \tilde{V}^*(\omega)}{\partial \mathbf{r}} \times \mathbf{n} \right] | \varphi_0 \rangle,$$

где выражение

$$\frac{\partial \tilde{V}(\omega)}{\partial \mathbf{r}} = \exp\left(i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{k}_0 \mathbf{r}\right) f_0(\omega) \left( \mathbf{E}_0 + i \frac{\omega}{\omega_0} (\mathbf{E}_0 \mathbf{r}) \mathbf{k}_0 \right)$$

есть Фурье-образ силы, действующей со стороны электромагнитного поля импульса на электрон мишени,  $\mathbf{r}$  — радиус-вектор, определяющий положение электрона,  $\mathbf{n}$  — единичный вектор, задающий направление вылета переизлученных фотонов. Здесь  $f_0(\omega)$  — функция, возникающая вследствие гауссовой формы налетающего импульса:

$$f_0(\omega) = \sqrt{\pi}/(2\alpha) \left( \exp\left\{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\alpha^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(\omega + \omega_0)^2}{4\alpha^2}\right\} \right).$$

В качестве волновых функций основного состояния для иона водорода  $\text{H}_2^+$  выберем [9] выражение

$$\varphi_0 = [2(1 + S)]^{-1/2} (\varphi_A + \varphi_B),$$

где  $S$  — интеграл перекрытия,  $\varphi_{A,B}$  — водородоподобные волновые функции, центрированные на первом ( $A$ ) и втором ( $B$ ) ядрах. При подстановке данной волновой функции в выражение для полного спектра переизлучения получаем при произвольном конечном состоянии молекулярного иона:

$$\frac{d^2W}{d\Omega_k d\omega} = [(1 + S)]^{-1} \left( \frac{d^2W_{AA}}{d\Omega_k d\omega} + \frac{d^2W_{AB}}{d\Omega_k d\omega} \right), \quad (1)$$

$$\frac{d^2W_{AA}}{d\Omega_k d\omega} = \frac{1}{(2\pi)^2 c^3 \omega} \langle \varphi_A | \left[ \frac{\partial \tilde{V}(\omega)}{\partial \mathbf{r}} \times \mathbf{n} \right] \left[ \frac{\partial \tilde{V}^*(\omega)}{\partial \mathbf{r}} \times \mathbf{n} \right] | \varphi_A \rangle, \quad (2)$$

$$\frac{d^2W_{AB}}{d\Omega_k d\omega} = \frac{1}{(2\pi)^2 c^3 \omega} \langle \varphi_A | \left[ \frac{\partial \tilde{V}(\omega)}{\partial \mathbf{r}} \times \mathbf{n} \right] \left[ \frac{\partial \tilde{V}^*(\omega)}{\partial \mathbf{r}} \times \mathbf{n} \right] | \varphi_B \rangle. \quad (3)$$

Первое слагаемое (2) в выражении (1) соответствует спектру переизлучения на отдельных центрах ( $d^2W_{AA}/d\Omega_k d\omega = d^2W_{BB}/d\Omega_k d\omega$ ). Это соответствует двум последовательным взаимодействиям ультракороткого импульса с электроном на первом и втором ядре. Второе слагаемое (3) — интерференционное, представляет спектр переизлучения, когда электрон оказывается в поле импульса и поле обоих ядер одновременно. Оно, очевидно, будет зависеть от перекрытия волновых функций электрона на ядрах и ориентации молекулярного иона относительно налетающего ультракороткого импульса. Диаграмма направленностей для первого слагаемого (1) после вычислений может быть записан как

$$\frac{d^2W_{AA}}{d\Omega_k d\omega} = \frac{1}{(2\pi)^2 c^3 \omega} |f_0(\omega)|^2 \left\{ [\mathbf{E}_0 \times \mathbf{n}]^2 + \left( \frac{\omega E_0}{Z\omega_0} [\mathbf{k}_0 \times \mathbf{n}] \right)^2 \right\},$$

где  $Z$  — заряд одного ядра молекулярного иона. Проинтегрировав это выражение по углам вылета переизлученных фотонов запишем для первого спектра:

$$\frac{dW_{AA}}{d\omega} = \frac{2}{3\pi c^3 \omega} |f_0(\omega)|^2 \mathbf{E}_0^2 \left( 1 + \frac{\omega^2}{Z^2 c^2} \right). \quad (4)$$

Диаграмма направленностей для второго слагаемого (1) после вычислений может быть записана как

$$\begin{aligned} \frac{d^2W_{AB}}{d\Omega_k d\omega} &= \frac{1}{(2\pi)^2 c^3 \omega} |f_0(\omega)|^2 \\ &\times \left\{ [\mathbf{E}_0 \times \mathbf{n}]^2 S + \left( \frac{\omega}{Z\omega_0} [\mathbf{k}_0 \times \mathbf{n}] \right)^2 \langle \varphi_A | (\mathbf{E}_0 \mathbf{r})^2 | \varphi_B \rangle \right\}. \end{aligned}$$

Проинтегрировав это выражение по углам вылета переизлученных фотонов и рассчитав матричный элемент в скобках в вытянутых сфероидальных координатах [10], запишем для второй части спектра:

$$\frac{dW_{AB}}{d\omega} = \frac{dW_{AB1}}{d\omega} = \frac{dW_{AB2}}{d\omega}, \quad (5)$$

где

$$\frac{dW_{AB1}}{d\omega} = \frac{2}{3\pi c^3 \omega} |f_0(\omega)|^2 \mathbf{E}_0^2 S, \quad (6)$$

$$\frac{dW_{AB2}}{d\omega} = \frac{2}{3\pi c^3 \omega} |f_0(\omega)|^2 \mathbf{E}_0^2 \frac{\omega^2}{Z^2 c^2} \left\{ S_1 \sin^2 \theta_{RE} + S_2 \cos^2 \theta_{RE} \right\}. \quad (7)$$

Здесь  $\theta_{RE}$  — угол между направлением напряженности  $\mathbf{E}_0$  налетающего ультракороткого импульса и осью молекулярного иона, направленной от одного ядра к другому. Многочлены  $S_{1,2}$  зависят от перекрытия волновых функций электрона на двух ядрах:

$$S_1 = e^{-RZ}/15(15 + RZ \{15 + RZ[6 + RZ]\}),$$

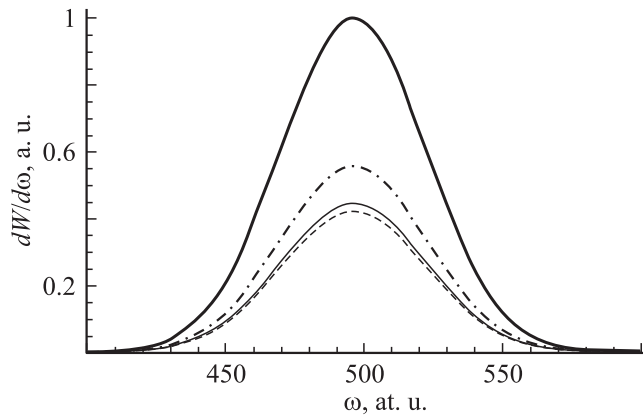
$$S_2 = e^{-RZ}/60(60 + RZ(4 + RZ) \{15 + RZ[3 + RZ]\}).$$

Можно отметить, что вторая часть спектра зависит от расстояния  $R$  между ядрами и ориентации оси молекулы относительно налетающего ультракороткого импульса. Причем  $dW_{AB1}/d\omega$  зависит от  $R$ , т.е. только от перекрытия волновых функций электрона на двух ядрах, а  $dW_{AB2}/d\omega$  от  $R$  и  $\theta_{RE}$ , т.е. зависит еще и от ориентации межъядерной оси относительно направления падающего импульса  $\mathbf{k}_0$ . Таким образом, можно исследовать влияние выстроенности молекулярного иона в зависимости от направления налетающего ультракороткого импульса на спектр переизлучения. На рис. 1 изображены общий спектр как сумма (4) и (5), первая часть спектра (4) и вторая часть спектра (6), (7) при фиксированных углах  $\theta_{RE}$ . На рис. 2 представлены ориентационные зависимости спектров от угла  $\theta_{RE}$ . Для этого построено отношение ориентационной части спектра (7) к общему спектру — суммы (4) и (5), усредненное по всем возможным ориентациям молекулярной оси для двух межъядерных расстояний.

Исходя из анализа полученных аналитических выражений для спектра и графиков, можно сделать следующие выводы:

В предельных случаях, когда  $R \rightarrow \infty$ ,  $H_2^+ \rightarrow H$ , когда  $R \rightarrow 0$ ,  $H_2^+ \rightarrow He^+$ , мы получим спектр атома водорода либо спектр водородоподобного иона гелия [3,4].

Как видно из графика на рис. 1, роль второй части спектра существенна и возрастает при уменьшении  $R$ . При этом существенное влияние на переизлучаемый спектр оказывает не просто перекрытие волновых функций электрона на ядрах, а расположение межъядерной

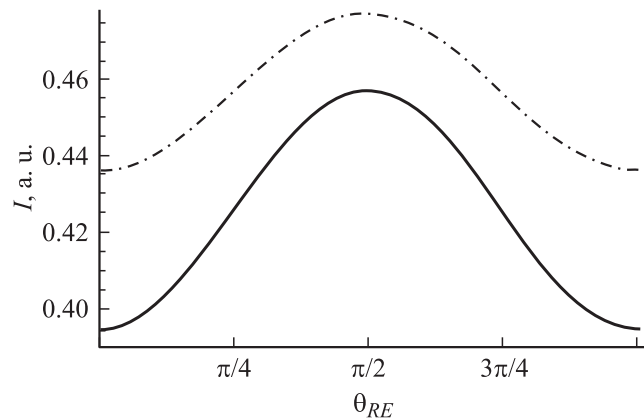


**Рис. 1.** Спектры переизлучения молекулярного иона. Сплошная жирная линия соответствует полному спектру (4) и (5), штрихпунктирная линия — спектру (4) переизлучения без изменения состояния атома, тонкая сплошная — спектру (5), пунктирная — спектру (7). При построении были использованы значения: частота импульса  $\omega_0 = 495$  at.u. (при типичной продолжительности  $\tau = 10^{-18}$  s), напряженность поля импульса  $E_0 = 2$  at.u. (в два раза превосходит внутриатомную),  $Z = 1$ ,  $R = 2$  at.u. (равновесное расстояние в молекулярном ионе водорода),  $\theta_{RE} = 0$  (направление напряженности поля в импульсе совпадает с осью иона). Спектры нормированы на максимальное значение полного спектра (4).

оси молекулярного иона относительно налетающего ультракороткого импульса электромагнитного поля.

По анализу графика на рис. 2 можно заметить, что максимально меняется спектр в случае совпадения направления напряженности  $\mathbf{E}_0$  налетающего ультракороткого импульса и межъядерной оси ( $\mathbf{k}_0 \perp \mathbf{R}$ ). В этом случае направление внешнего поля совпадает или противоположно направлению внутреннему молекулярному полю, в котором находится электрон.

В итоге мы получаем спектр переизлучения на молекулярном ионе в приближении внезапных возмущений. Учет переизлучения ультракороткого импульса на двух центрах одновременно существенно меняет спектр. Спектр переизлучения находится в сильной зависимости от ориентации межъядерной оси относительно налетающего ультрако-



**Рис. 2.** Ориентационные эффекты при переизлучении молекулярным ионом ультракороткого импульса электромагнитного поля в зависимости от выстроенности оси иона относительно направления напряженности поля импульса  $\theta_{RE}$ .  $I$  соответствует отношению ориентационного спектра (7) к полному спектру (4) и (5), усредненному по углам выстроенности. Сплошная линия построена при межъядерном расстоянии  $R = 2$  at.u., штрихпунктирная при межъядерном расстоянии  $R = 1.5$  at.u. При построении были использованы значения: частота импульса  $\omega_0 = 495$  at.u., напряженность поля импульса  $E_0 = 2$  at.u.,  $\omega = \omega_0$ .

роткого импульса, что позволяет определить степень выстроенности молекулярных ионов в веществе. Создать выстроенность молекул и молекулярных ионов при планировании эксперимента по спектрам переизлучения ультракоротких импульсов можно также при помощи лазерного поля [11].

## Список литературы

- [1] Матвеев В.И. // ЖЭТФ. 2003. Т. 124. № 5(11). С. 1023.
- [2] Есеев М.К., Матвеев В.И. // ЖТФ. 2008. Т. 78. В. 8. С. 28.
- [3] Есеев М.К., Матвеев В.И. // Оптика и спектроскопия. 2008. Т. 104. В. 6. С. 885.
- [4] Есеев М.К., Матвеев В.И., Абикулова Н.В. // Оптика и спектроскопия. 2009. Т. 106. В. 2. С. 231.

- [5] *Rudenko A., Ergler Th., Feuerstein B.* et al. // J. Physics: Conference Series. 2007. V. 88. P. 012050.
- [6] *Selsto S., McCann J.F., Forre M.* et al. // Phys. Rev. A. 2006. V. 73. P. 033407.
- [7] *Nikolopoulos L.A.A., Kjeldsem T.K., Madsen L.B.* // Phys. Rev. A. 2007. V. 76. P. 033402.
- [8] *Della Picca R., Fainstein P.D., Martiarena M.L.* // Phys. Rev. A. 2007. V. 75. P. 032710.
- [9] *Давыдов А.С.* Квантовая механика. М.: Наука, 1973.
- [10] *Комаров И.В., Пономарев Л.И., Славянов С.Ю.* Сфероидальные и кулоновские сфероидальные функции. М.: Наука, 1976.
- [11] *Делоне Н.Б., Крайнов В.П., Сухарев М.А.* // Труды Института общей физики РАН. 2000. Т. 57. С. 27.