

SINTEZA LUCRARII

NR CONTRACT: 211/1.X.2007

COD PROIECT: ID539

Director de proiect: Prof. Ladislau Nagy

ARTICOLE PUBLICATE SI LUCRARI COMMUNICATE IN CADRUL CONTRACTULUI

F. Járαι-Szabó and L. Nagy, *Semiclassical description of kinematically complete experiments*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 40, 4259–4267, 2007

S. Borbély, K. Tókési and L. Nagy, *Ionization of the hydrogen atom by intense ultrashort laser pulses*, trimis spre publicare in Phys. Rev. A

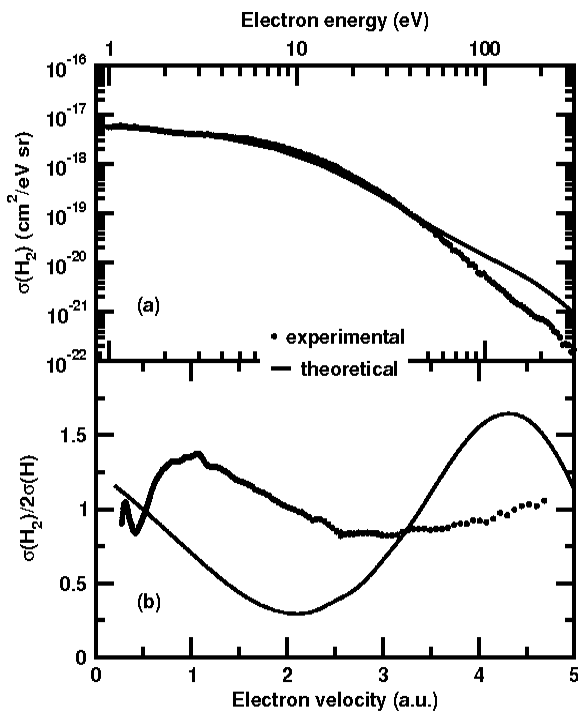
1. Studiul efectelor de interferenta in ionizarea moleculei de azot

Studiul efectelor de interferenta in cazul ionizarii moleculelor biatomice, mai ales a moleculei de hidrogen, este o tema de mare actualitate. Acest fenomen a fost observat experimental in cazul moleculei de hidrogen [1,2,3]. Recent s-a observat efectul de interferenta si in cazul moleculei de azot [4]. Efectul de interferenta se datoreaza caracterului bicentric a moleculei. Din cauza superpozitiei undelor asociate electronului imprastiat pe cele doua nuclee apar oscilatii in raportul sectiunilor eficace $\sigma(\text{H}_2)/\sigma(2\text{H})$ in functie de viteza electronilor emisi. In calculele noastre precedente [5] am elaborat o formula analitica pentru ionizarea moleculei de hidrogen cu proiectile rapide care au reprodus aceste oscilatii si dependenta lor de unghiul de emisie a electronilor. Aceste calcule se bazeaza pe calcule de ordinul intai, starea finala a electronului fiind descrisa de unde plane. Nu se reproduc oscilatiile de ordinul doi observate experimental [6].

Obiectivul nostru a fost de a adapta modelul analitic dezvoltat pentru molecula de hidrogen la molecula de azot, avand si acesta caracter bicentric.

Modelul se bazeaza pe aproximatia semiclassicala, adica proiectilul este tratat clasic iar electronii din molecula tinta sunt tratate cuantic. Sectiunea eficace diferentia in cazul moleculei de hidrogen are forma $C+G((\sin a)/a)$, unde a depinde de distanta internucleara, de componenta paralela a impulsului electronului emis. La molecula de azot ionizarea se poate produce din toti orbitalii ocupati. Pentru orbitalii de legatura $1\sigma_g$ si $2s\sigma_g$ sectiunea eficace diferentia are forma ca si la molecula de hidrogen, iar pentru orbitalii de antilegatura $1\sigma_u^*$ si $2s\sigma_u^*$ in formula mai sus mentionata semnul termenului de oscilatie se schimba. Deoarece acesti orbitali sunt ocupati, in calcularea sectiunii eficace diferentiale termenii de oscilatie se anuleaza. Forma sectiunii eficace in cazul orbitalilor $2p\sigma_g$ si $2p\pi_u$ este mai complicata din cauza functiei de unda a orbitalilor, si are forma $C+G_1((\sin a)/a)+G_2((\sin a)/a^3)+G_3((\sin a)/a^5)+G_4((\cos a)/a^2)+G_5((\cos a)/a^4)$ in cazul orbitalului $2p\sigma_g$. Pentru orbitalul $2p\pi_u$ forma e acelasi, difera numai coeficientii. Pentru accentuarea efectului de interferenta am reprezentat raportul sectiunii eficace a moleculei de azot si a doi atomi de azot in functie de viteza electronului ejectat.

Am comparat rezultatele teoretice obtinute cu ajutorul formulilor de mai sus cu cele experimentale. Am reprezentat grafic raportul sectiunilor eficace pentru orbitalii $2s\sigma_g$, $2s\sigma_u$, $2p\sigma_g$, $2p\pi_u$ si totalul lor pe langa datele experimentale [4] in functie de viteza electronului ejectat. In figura 1a este prezentat acest raport pentru unghiul de emisie a electronului de 30° , iar figura 1b pentru unghiul de emisie a electronului de 90° . Rezultatele obtinute cu calcule de ordinul intai nu redau oscilatiile tipice. Frecventa oscilatiilor experimentale nu depind de unghiul de emisie a electronilor, si este aproape dublu fata de cel asteptat. Acest lucru sugereaza ca oscilatiile sunt cauzate de efecte de ordinul doi, ca reimprastierea electronilor pe nuclee.



Pentru a testa si o alta metoda

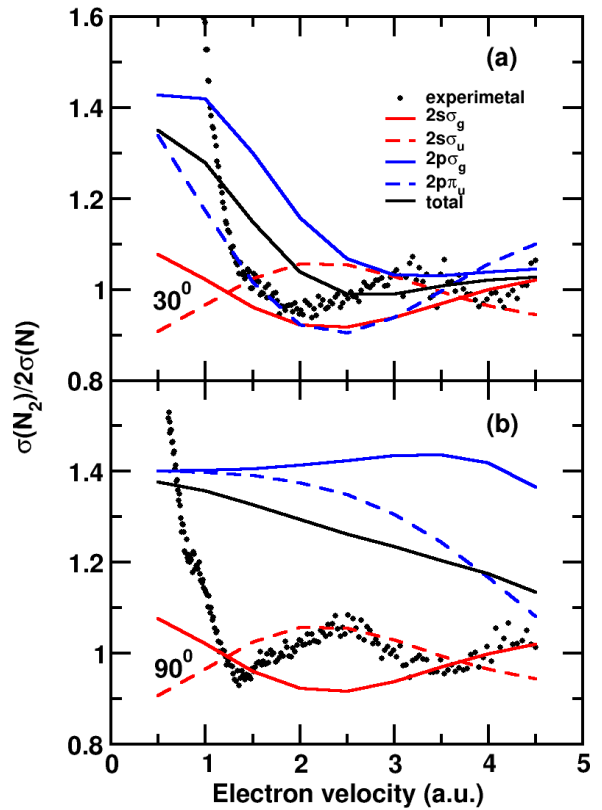


Fig. 2. Sectiunea eficace diferentiala in functie de energia electronului emis (a) si raportul sectiunilor eficace pentru molecula de hidrogen si doi atomi de hidrogen in functie de viteza electronului emis (b) comparat cu datele experimentale [1], pentru proiectil de Kr^{34+} 60MeV/u si unghiul de emisie de 30°

(numerica), am efectuat calcule pentru molecula de hidrogen, cea mai simpla molecula.

Si in cazul calculelor numerice am folosit aproximatia semiclassicala. Starea initiala a moleculei de hidrogen este descrisa de orbitali moleculari de tip Heitler—London cu distanta internucleara fixa. Starea finala este produsul dintre functia de unda Coulombiana a electronului emis si functia de unda in starea legata a ionului rezidual. Calculele sunt de ordinul intai, perturbatia fiind interactiunea coulombiana dintre proiectil si electron.

Pentru compararea rezultatelor obtinute numeric cu cele experimentale am folosit ca proiectili Kr^{33+} [2], Kr^{34+} [1] si H^+ [3]. Am studiat sectiunea eficace diferentiala si pentru diferite unghiuri de emisie a electronului. In figura am prezentat rezultatele numerice pe langa cele experimentale [1] pentru proiectilul Kr^{34+} de energia 60 MeV/u si pentru unghiul de emisie a electronului de 30° . Rezultatele noastre sunt reprezentate cu linie continua iar cele experimentale cu punctele negre.

In figura 2a este prezentata sectiunea eficace diferentiala in functie de energia electronului emis. Se poate vedea ca rezultatele numerice sunt in buna concordanta cu cele experimentale, mai ales la valorile de energie mai mici de 100 eV, iar pentru valori mai mari rezultatele noastre supraestimeaza cele experimentale.

In figura 2b este prezentata raportul sectiunii eficace diferentiale pentru molecula de hidrogen si doi atomi de hidrogen in functie de viteza electronului emis. Pentru a elimina caracterul crescator al raportului cu cresterea vitezei, am ajustat o dreapta pe rezultatele noastre. Si in cazul calculului numeric observam oscilatii, dar perioada si faza difera de cele experimentale. Aceasta diferenta poate fi cauzata de faptul unda coulombiana unicentrica nu este o buna descriere pentru starea finala a electronului emis.

2. Descrierea ionizarii atomilor prin impulsuri laser foarte scurte

In ultimii ani au fost obtinute pulsuri laser cu durata mai mica decat 10 fs si cu intensitatea mai mare decat 10^{18} W/cm², datorita dezvoltarii rapide a tehnologiei de producere a pulsurilor de laseri. Din cauza acestei intensitati mari si a duratei scurte fenomene noi ca multiphoton ionization, above threshold ionization, high harmonics generation, ionizare prin tunelare si ionizare peste bariera (over the barrier ionization) apar in timpul interactiei acestor pulsuri cu sisteme atomice. Aceste fenomene noi pot avea un rol crucial in aplicatii foarte importante cum ar fi fuziunea nucleara, controlul reactiilor chimice etc. Langa aceste aplicatii cu ajutorul acestor fenomene noi a devenit posibila studierea proceselor atomice si reactiilor moleculare cu rezolutie de attosecunda folosind experimente de tip pump-probe [7].

Intelegerea detaliata a acestor fenomene si interpretarea corecta a rezultatelor experimentale necesita modele teoretice adecvate care pot fi aplicate usor pentru diferite sisteme. Pentru atingerea acestui scop este nevoie rezolvarea ecuatiei Schrodinger dependente de timp pentru un sistem atomic in camp electromagnetic extern, care in prezent nu are o solutie analitica cunoscuta. Solutiile cunoscute in prezent pot fi incadrate in doua categorii: solutii numerice si solutii aproximative. Solutiile numerice implica calcule numerice extensive pentru sisteme complexe si la intensitati mari. Convergenta acestor calcule este greu de atins [8]. Solutiile aproximative implica calcule numerice mult mai simple si sunt mai usor de aplicat, dar ele pot fi folosite pentru descrierea fenomenului ales numai in conditii prestabilite de aproximatia folosita.

Ionizarea sistemelor atomice si moleculare in campuri laser cu intensitate mica poate fi descrisa cu o precizie ridicata in cadrul teoriei perturbatiilor dependente de timp. La aceste intensitati ionizarea este dominata de procese care implica transferul unui singur foton. La intensitati mai mari, in timpul ionizarii apar procese nelinere si procese care implica transferul a mai multor fotoni. Aceste fenomene nu pot fi descrise in cadrul teoriei perturbatiilor dependente de timp si descrierea corecta necesita modele care se bazeaza pe aproximatia campurilor puternice (SFA – strong field approximation) [9] sau modele bazate pe teoria Floquet [10]. La intensitati si mai mari potentialul Coulomb este influentat considerabil de campul electromagnetic extern facand posibila aparitia proceselor de ionizare prin tunelare (tunneling ionization), ionizarea peste bariera (over the barrier ionization). Aceste tipuri de ionizari teoretic se pot studia cu ajutorul modelului Volkov [11], care se bazeaza pe aproximatia brusca si pe utilizarea functiilor de unda Volkov. Functiile Volkov sunt solutii a ecuatiei Schrodinger pentru o particula incarcata in camp electromagnetic extern. Modelul Volkov poate fi aplicata cu succes pentru descrierea ionizarii in campuri extrem de intense, dar are limitari importante datorita faptului ca neglijeaza total interactia Coulombiana in timpul ionizarii si dupa aceasta. Acest model a fost imbunatatit prin introducerea functiilor de unda Coulomb – Volkov (CV) in locul functiilor de unda Volkov [11]. Prin acest imbunatatire interactiunea Coulomb a fost luata in considerare dupa ionizare in starea finala a electronului. Si modelul CV are limitari importante datorita faptului ca utilizeaza aproximatia brusca care limiteaza durata pulsului laser la dublul perioadei orbitale a electronului activ.

Intentia noastra a fost construirea unui model a carei precizie este comparabila sau mai buna decat precizia modelului CV, dar care nu are aceasta limitare pentru durata pulsurilor. Modelul nostru se

bazeaza pe solutia aproximativa a ecuatiei Schrodinger dependenta de timp considerand un singur electron activ iar influenta sistemului ramas este reprezentat de un potential Coulombian. In cadrul modelului functia de unda dependenta de timp este exprimata folosind ca baza functiile de unda Volkov asa cum urmeaza

$$\Psi_{II}(t) = \int d\vec{k} c(\vec{k}, t) \Psi_V(\vec{k}, t),$$

Folosind ecuatia Schrodinger si performand calcule analitice simple, a fost obtinuta ecuatia integro-diferentiala pentru coeficientii de expansiune

$$\frac{\partial}{\partial t} c(\vec{q}, t) = -\frac{i}{(2\pi)^3} \int d\vec{s} c(\vec{s} + \vec{q}, t) e^{-\frac{i}{2} \int_0^t dt' \vec{s}(\vec{s} + 2\vec{q} + 2\vec{A}(t'))} \int d\vec{r} V(\vec{r}) e^{i\vec{s}\vec{r}}.$$

Ecuatia obtinuta a fost rezolvata iterativ. In primul pas interactia Coulombiana (reprezentata in ecuatia de mai sus cu $V(\mathbf{r})$) a fost neglijata bazandu-se pe faptul ca in cazul intensitatilor mari interactia electronului cu campul extern este dominanta. In acest caz solutia obtinuta

$$c_f(\vec{p}) = c^0(\vec{p} - \vec{A}(\tau)) e^{-i[E(\vec{p} - \vec{A}(\tau), \tau) - E_f \tau]},$$

este identica cu cea data de modelul Volkov, de aceea solutia de ordinul zero in continuare va fi numita solutia Volkov. Prin utilizarea aproximatiei de ordinul zero (modelul Volkov) obtinem rezultate precise numai in cazul pulsurilor foarte intense.

In aproximatia de ordinul intai (al doilea pas iterativ) ecuatia pentru coeficientii de expansiune a fost rezolvata prin substituirea a solutiei Volkov in partea dreapta a ecuatiei.

$$\frac{\partial}{\partial t} c^{(1)}(\vec{q}, t) = -\frac{i}{(2\pi)^3} \int d\vec{s} c^{(0)}(\vec{s} + \vec{q}) e^{-\frac{i}{2} \int_0^t dt' \vec{s}(\vec{s} + 2\vec{q} + 2\vec{A}(t'))} \int d\vec{r} V(\vec{r}) e^{i\vec{s}\vec{r}}.$$

Aproximatia de ordinul intai este echivalenta cu solutia ecuatiei Schrodinger in cazul in care interactia Coulombiana este considerata ca o perturbatie si problema este tratata cu ajutorul teoriei perturbatiilor dependente de timp.

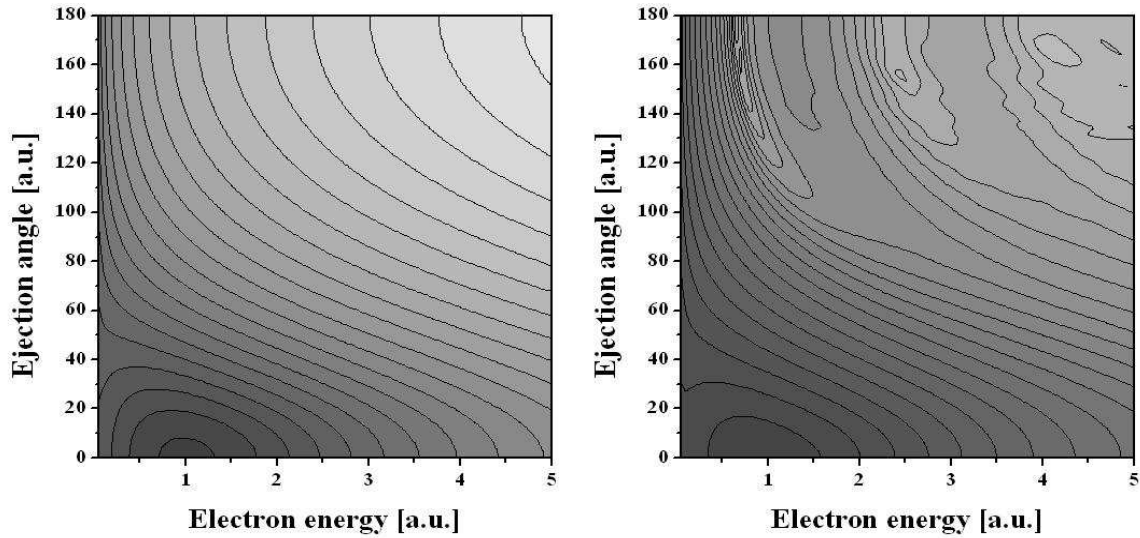


Fig. 3. Densitate de probabilitate de ionizare pentru un puls laser de durata de 3 a.u. cu intensitate de 1 a.u. Stanga – modelul Volkov, Dreapta – modelul de ordinul intai

Modelul de ordinul intai si modelul Volkov au fost aplicate pentru descriere ionizarii atomului in campuri laser. Densitatile de probabilitate de ionizare au fost calculate pentru pulsuri cu durata de 3, 5 si 10 unitati atomice si la intensitati de 1 si 10 unitati atomice pentru fiecare durata de puls. In mare densitatile de probabilitate date de modelul Volkov si de modelul de ordinul intai sunt asemanatoare,

dar dupa o analiza mai detaliata diferente importante au fost identificate. Pentru fiecare puls maximul densitatii de probabilitate dat de modelul de ordin intai este deplasat in directia energiilor mai mici fata de maximul dat de modelul Volkov (vezi Fig. 3.). Aceasta deplasare apare datorita atractiei Coulombiene intre electronul activ si ionul ramas care nu este luat in considerare in modelul Volkov.

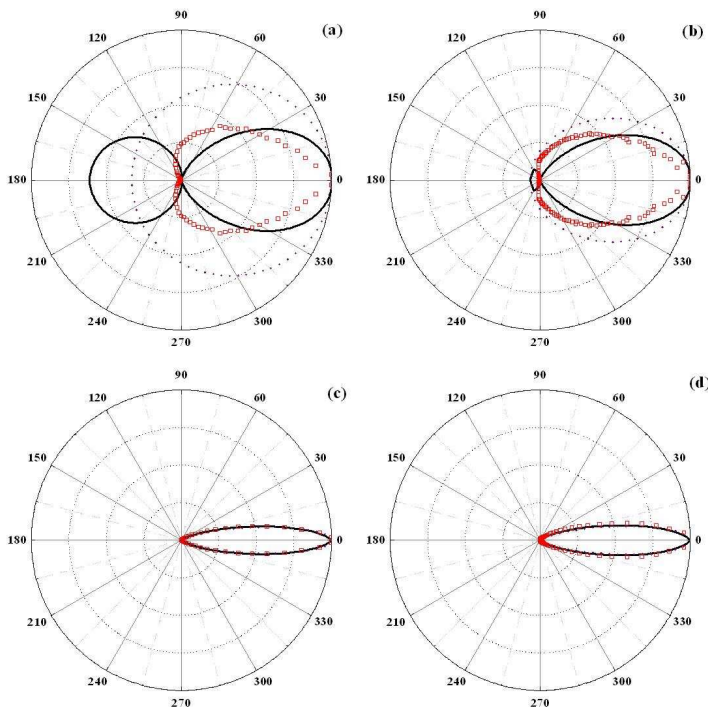


Fig. 4. Distributia unghiulara a electronilor emisi la energii fixate [(a) – 0.02 a.u.; (b) – 0.125 a.u.; (c) – 3.5 a.u.] si distributia unghiulara neta pentru un puls de laser de durata 5 a.u. cu intensitatea de 1 a.u.. Linia solida – app. de ordinul intai, Linie punctata – Volkov, parate - CTMC

Analizand distributia unghiulara a electronilor emisi cu o energie fixa, influenta interactiei Coulombiene asupra procesului de ionizare poate fi studiata. La energie mica o diferenta importanta este observata intre distributia de ordinul intai (fig. 4a) si distributia Volkov, care la energii mai mari se micsoreaza (fig. 4b) si dispare (fig. 4c). Aceasta observatie arata ca interactia Coulombiana are o influenta mai mare asupra electronilor emisi cu o energie mica. Pe fig. 4 este prezentata si distributia obtinuta prin calculele classice folosind modelul CTMC (Classical Trajectory Monte

Carlo) care la intensitati discutate produce rezultate precise, identice cu rezolvarea numerica a ecuatiei Schrodinger. Intre distributia CTMC si cele de ordinul intai la energii mici se observa o diferenta semnificativa, care dispare la energii mai mari, care indica ca ionizarea electronilor emisi cu energie mica este de natura cuantica si ionizarea electronilor emisi cu energii mari este de natura classica. Nici o diferenta nu poate fi observata dintre cele trei (ordinul intai, Volkov, CTMC) distributii unghiulare nete (integrate dupa energii de emisie) prezentate pe fig.4d, care indica ca ionizarea in conditiile studiate este un proces cu caracter clasic si este slab influentat de interactia Coulomb.

Spectrul de fotoionizare a fost obtinut din densitatea de probabilitate prin integrare dupa directii de emisie. Pe fig. 5. este prezentat spectrul de fotoionizare a atomului de hidrogen pentru un puls de laser cu durata de 3 a.u. si intensitatea de 10 a.u. Spectrele prezentate au fost obtinute utilizand diferite modele: modelul de ordinul intai, modelul Volkov, modelul CTMC, modelul CV [11], rezolvarea numerica a ecuatiei Schrodinger (TDSE) [11]. Comparand rezultatele TDSE si CTMC se observa o buna concordanta intre ele, fapt care confirma precizitatea modelului CTMC. Comparand spectrele obtinute din modelul de ordinul intai, cu cele date de modelul CV si de modelul Volkov, se observa ca spectrul modelului de ordinul intai este cel mai apropiat de spectrul TDSE, in consecinta in aceste conditii modelul de ordinul intai este superior fata de modelele CV si Volkov.

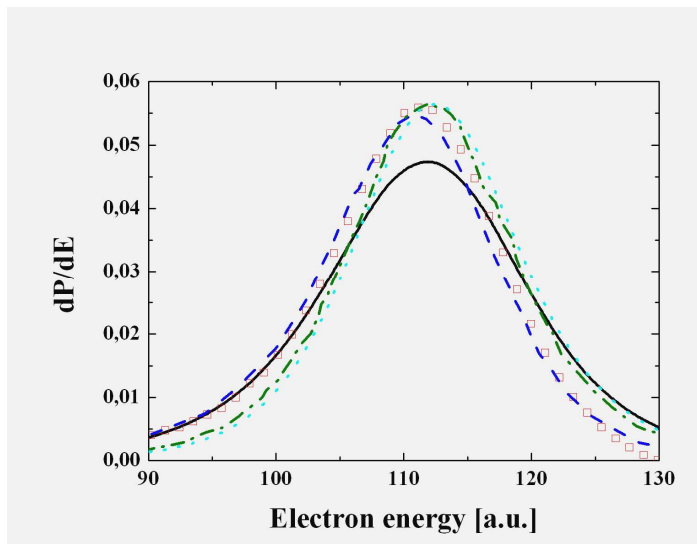


Fig. 3. Spectrul electronilor emisi pentru un puls de laser de urata de 3 a.u. cu intensitate de 10 a.u. Linia solida – app. de ordinul intai, Linia dotata – Volkov, Linia intrerupta – TDSE [11], linia mixta – CV [11], patrate – CTMC.

Comparand spectrul Volkov cu spectrul de ordinul intai, mare diferenta intre ele se observa numai in domeniul energiilor mici, care sugereaza ca in timpul ionizarii interactia Coulombiana are influenta mai puternica asupra electronilor emisi cu energie mai mica.

Modelul construit va fi imbunatatit prin folosirea functiile de unda Coulombiene pentru starea finala in locul undelor plane folosite pana in prezent. Formularea generala a modelului da posibilitate de a aplica modelul pentru o varietate mare de sisteme atomice. In viitorul apropiat modelul va fi aplicat pentru ionizarea moleculelor bicentrice si pentru atomi de gaze nobile.

complete pentru atomul de heliu

În această primă etapă am elaborat un model pentru descrierea teoretică a experimentelor cinematic complete. Aceasta se bazează pe metoda semiclassicală, de ordinul întâi, numită metoda parametrului de impact. În prisma rezultatelor obținute, a fost concepută și o investigație legată de mecanismele interesante.

Cu acest model, folosind niște considerații empirice, am construit imaginea teoretică tridimensională a structurii de emisie a electronului ionizat pentru o energie a electronului ionizat de $E_e = 6.5$ eV iar un transfer de impuls de $q=0.75$ a.u. (Figura 6). Pe panoul din dreapta al figurii reprezentăm secțiunile eficace total diferențiale din planul de împrăștiere și cel perpendicular în comparație cu rezultatele experimentele și teoretice calculate cu modelul CDW [12].

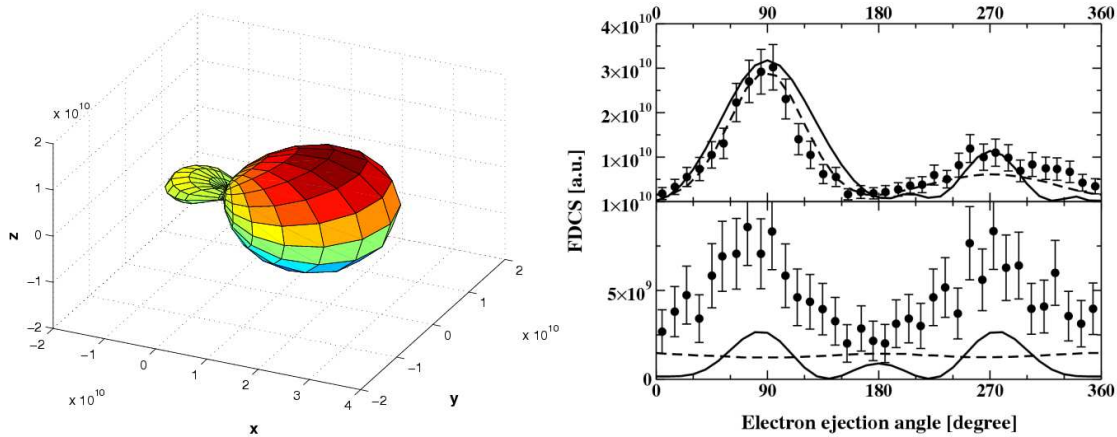


Fig. 6. Imaginea teoretică tridimensională a structurii de emisie a electronului ionizat (panoul din stânga) și secțiunile eficace total diferențiale din planul de împrăștiere și cel perpendicular (panoul din dreapta) pentru o energie a electronului ionizat de $E_e = 6.5$ eV iar un transfer de impuls de $q=0.75$ a.u.

Ca concluzie putem să menționăm că din acest model semiempiric rezultă valori bune ale secțiunilor eficace total diferențiale pentru transfer de impulsuri mici. Structurile caracteristice din planul perpendicular sunt reproduse, discrepanță cu experimente fiind numai în magnitudinea secțiunilor eficace. Se presupune, că cealaltă parte a acestor valori poate fi explicat numai cu includerea în calcule a incertitudinilor experimentale. Modelul nostru semiclasic include împrăștierea proiectilului pe nucleu și de aceea putem concluda că și acesta poate fi un factor important în obținerea structurilor experimentale în planul perpendicular.

REFERINTE

- [1] N. Stolterfoht et al, Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 023201
- [2] N. Stolterfoht et al., Phys. Rev. A **67** (2003) 030702
- [3] S. Hossain et al., Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. B **205** (2003) 484
- [4] J.A. Tanis, J. Baran, F. Jarai-Szabo and L. Nagy, 13th HCI, Belfast (2006) 2-18
- [5] L. Nagy, L. Kocbach, K. Póra and J.P. Hansen J. Phys. B **35** (2002) L453
- [6] N. Stolterfoht et al, Phys. Rev. A **87** (2004) 012701
- [7] J. H. Posthumus, Rep. Prog. Phys. **67** (2004) 623.
- [8] E. Cormier, P. Lambropoulos, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30** (1997) 77.
- [9] H. R. Reiss, Phys. Rev. A **22** (1980) 1786.
- [10] Shih-I Chu, D. A. Telnov, Phys. Rep. **390** (2004) 1.
- [11] G. Duchateau, C. Illescas, B. Pons, E. Cormier, R. Gayet, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **33** (2000) L571
- [12] F. Járjai-Szabó and L. Nagy, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **40**, 4259–4267 (2007)