

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

На правах рукописи

Крапивин Дмитрий Андреевич

**Электронные переходы в двухатомных
квазимолекулах при взаимодействии с
импульсами сильного электромагнитного поля**

Научная специальность 1.3.3. Теоретическая физика

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
Тельнов Дмитрий Александрович
доктор физико-математических наук

Санкт-Петербург
2023

Содержание

Введение	4
Глава 1. Аномальная зависимость вероятности ионизации и угловых распределений электронов от ориентации молекулы H_2^+ при фотоионизации: эффект двухцентрковой интерференции	14
1.1 Уравнение Шредингера в сферической системе координат	15
1.2 Решение нестационарного уравнения Шредингера во внешнем поле	20
1.3 Расчет распределений фотоэлектронов по энергиям и углам вылета	22
1.4 Основные результаты первой главы	24
1.5 Итоги главы 1	39
Глава 2. Многофотонная ионизация релятивистской двухатомной квазимолекулы в сильном внешнем электромагнитном поле	40
2.1 Нестационарное уравнение Дирака для одноэлектронной квазимолекулы в линейно поляризованном электромагнитном поле	40
2.2 Потенциал взаимодействия электрона с ядрами	43
2.3 Вид векторного потенциала	44
2.4 Численное решение нестационарного уравнения Дирака	45
2.5 Результаты задачи на собственные значения уравнения Дирака. .	47
2.6 Нерелятивистское масштабирование и релятивистские эффекты в квазимолекулах	49
2.7 Многофотонная ионизация квазимолекул в дипольном приближении	51
2.8 Нелинейная ионизация за пределами дипольного приближения . .	56
2.9 Итоги главы 2	59
Глава 3. Влияние фазы электромагнитного поля на процессы ионизации и переноса заряда при столкновениях протона с атомом водорода во внешнем поле	61
3.1 Учет движения налетающего протона в уравнении Шредингера при столкновении	62
3.2 Вероятность переноса заряда	67
3.3 Основные результаты главы 3	68

3.4 Итоги главы 3	80
Заключение	82
Список литературы	84

Введение

Актуальность работы и степень разработанности темы исследования. Достижения последних лет в области лазерных технологий сделали возможными экспериментальные наблюдения атомных и молекулярных процессов на сверхкоротких аттосекундных масштабах времени [1, 2, 3, 4] и в области коротких длин волн [1, 5, 6]. Стоит особо отметить лазеры на свободных электронах, которые позволяют получать коротковолновое когерентное излучение вплоть до рентгеновского диапазона, что позволяет исследовать сверхбыструю молекулярную динамику [7]. Благодаря наличию дополнительных степеней свободы, отклик молекул и квазимолекул на воздействие сильного излучения является гораздо более сложным, чем у атомов, и изучение таких процессов представляет собой новый вызов для исследователей. Термином "квазимолекула" в данной работе обозначается система двух взаимодействующих атомов или ионов, находящихся на характерных для молекул межатомных расстояниях друг от друга, но не представляющая собой устойчивого образования. Квазимолекулы могут возникать на определенном интервале времени при столкновении атомов или ионов друг с другом. Даже самые простые двухатомные молекулы и квазимолекулы в сильных лазерных полях привлекают большое внимание со стороны исследователей как в области теории, так и в области эксперимента [8]. Революционные изменения техники эксперимента сделали возможными наблюдения и измерения разнообразных процессов с двухатомными молекулами и квазимолекулами в лазерных полях, которые включают эффекты от вкладов разных молекулярных орбиталей [9] и ориентации молекулярной оси [10, 11], дифракцию электронов [12, 13], построение изображений молекулярных орбиталей [14, 15] и т.д. Особо следует отметить интерференционные явления в спектрах электронов при надпороговой ионизации [16, 17, 18, 19] и спектрах генерации гармоник высокого порядка [20, 21, 22, 23], в которых мо-

жет быть закодирована важная информация о внутренней структуре молекул. Сюда же можно отнести электронную голографию в сильном поле, вызывающую большой интерес в последнее время [24, 25, 26, 27]. Продемонстрирована возможность создания квазистабильных молекулярных систем, в которых межатомные силы связи индуцируются лазером [28], показана возможность качественного изменения спектров вылетающих высокоэнергетических электронов при столкновении иона Ne^{10+} с атомом Ne в слабом внешнем поле [29], найдено, что инфракрасные поля умеренной интенсивности могут значительно увеличивать сечения диссоциативной рекомбинации в области низких энергий за счет эффекта кулоновской фокусировки [30], экспериментально исследована динамика столкновения двух атомов в оптической микроловушке [31], проанализирован механизм переноса заряда с учетом радиального и вращательного взаимодействий при столкновении B^{2+} с атомами Ar и Ne для энергий столкновения $E_{lab} \approx (0.02 - 1080)$ кэВ [32] и многое другое.

Простейшей двухатомной молекулой является одноэлектронный ион H_2^+ , который многократно использовался в теоретических исследованиях как прототип двухатомной молекулы при изучении процессов ионизации и генерации гармоник высокого порядка, включая эффекты ориентации молекулярной оси и двухцентрковой интерференции [33, 34, 35, 36, 37, 38, 39]. В работе [37] выявлена сильная зависимость ионизационной динамики от ориентации молекулы, что можно объяснить эффектом двухцентрковой интерференции. Также при ионизации циркулярно поляризованным лазерным импульсом деструктивная интерференция проявляется в виде расщепления пиков в энергетическом спектре фотоэлектронов при вылете под определенным углом к оси молекулы [34]. В работе [35] исследовалась зависимость многофотонной ионизации и генерации гармоник из основного и возбужденных электронных состояний H_2^+ от ориентации оси молекулы по отношению к поляризации лазерного излучения. В указанных выше работах нестационарное уравнение Шредингера для двухцентрковой квантовой системы во внешнем поле решалось с использованием различных численных методов: метода сплит-оператора с равномерной радиальной сеткой в сферических координатах [34] и метода сплит-оператора в энергетическом представлении в сочетании с псевдоспектральной дискретизацией в вытянутых сфероидальных координатах [35], с применением полиномиальных разло-

жений в сфероидальных координатах [36], комбинированного метода конечных элементов и представления дискретных переменных [39], а также с помощью разложения по базису В-сплайнов и сферических гармоник [40]. Одной из тем исследования данной работы является изучение ионизации H_2^+ под действием сильного линейно поляризованного лазерного излучения с длиной волны в далекой ультрафиолетовой области. В диссертации продемонстрирована аномальная зависимость вероятности ионизации от угла между осью молекулы и вектором поляризации внешнего поля. Обычно эффекты двухцентрковой интерференции связаны с деструктивным характером такой интерференции и проявляются в виде минимумов в спектре фотоионизации или генерации гармоник. В диссертации рассматривается явление конструктивной двухцентрковой интерференции, максимум которой соответствует такой геометрии, когда ось молекулы не параллельна поляризации лазерного излучения, что приводит к неожиданному результату, когда максимальная вероятность ионизации наблюдается при перпендикулярной ориентации оси молекулы. Эффект проявляется в виде локального минимума, в угловых распределениях фотоэлектронов, в направлении поляризации внешнего поля при параллельной ориентации оси молекулы.

Внешнее электромагнитное поле позволяет управлять процессом захвата электрона при столкновениях. Это обстоятельство вызывало интерес еще в начале 1970-х годов прошлого века [41]. Ряд исследований в последние годы посвящен изучению влияния фазы электромагнитного поля на этот процесс. Это обстоятельство связано с тем, что в настоящее время доступны лазерные источники со стабилизированной фазой [42, 43], а также описаны экспериментальные методы измерения фазы поля [44, 45]. В работе [46] исследовалось поле с длиной волны $\lambda = 780$ нм и интенсивностью 3.5×10^{12} Вт/см². Было показано, что для несимметричных сталкивающихся систем, таких как H-He^{2+} , изменение фазы линейно поляризованного в плоскости столкновения электромагнитного поля может существенно увеличивать вероятность переноса заряда в диапазоне энергий столкновения 0.05–10 кэВ/а.е.м. В работе [47] также было показано, что в низкоэнергетических столкновениях значение фазы электромагнитного поля оказывает существенное влияние на процесс переноса заряда. В симметричных системах, напротив, линейно поляризованное внешнее поле с вектором поляризации в плоскости столкновения оказывает слабое влияние на перенос заряда,

если ионизация пренебрежимо мала: вероятность обнаружить электрон на налетающей частице практически одинакова для различных начальных фаз поля и почти не отличима от результата в отсутствие поля. Пример таких расчетов был показан в работе [48] для столкновения $\text{H}-\text{H}^+$. Результаты работы [49] демонстрируют существенное влияние фазы поля как на вероятность ионизации, так и на вероятность переноса заряда для сильного циркулярно поляризованного поля интенсивности 5×10^{13} Вт/см². В работе [50] показано значительное увеличение сечения переноса заряда в столкновении $\text{H}-\text{He}^{2+}$ для параллельной и перпендикулярной поляризации лазера при интенсивности 3.5×10^{12} Вт/см² и длине волны 800 нм. В работе [51] изучена возможность оптимального управления процессом переноса заряда с помощью лазерного поля в медленных столкновениях в рамках одномерной модели. Одна из целей данной диссертации — изучение влияния фазы и интенсивности линейно поляризованного в плоскости столкновения поля на ионизацию и вероятность захвата электрона налетающей частицей в симметричной системе $\text{H}-\text{H}^+$ при низкоэнергетических столкновениях для различных частот.

Помимо явления двухцентральной интерференции и влияния фазы электромагнитного поля на процесс захвата электрона, представляет большой интерес исследование одноэлектронных квазимолекул во внешних сильных полях с очень высокими частотами и интенсивностями. Теоретическая обработка таких систем должна быть полностью релятивистской, так как электрон движется с очень большой скоростью под действием как кулоновского поля сильно заряженного ядра, так и сильного внешнего электромагнитного поля. Несколько релятивистских подходов к описанию взаимодействия ионов с лазером были предложены недавно. Они включают численное решение нестационарного уравнения Дирака в сферических координатах с разложением угловой части волновой функции по сферическим гармоникам [52, 53, 54]. Кинетически сбалансированные базисные наборы В-сплайнов были введены в работе [55] как для радиальных, так и для угловых координат в нестационарном уравнении Дирака с осевой симметрией. Разработаны неэрмитовы подходы, такие как комплексное вращение координат [56] и комплексное масштабирование координат [57]. Указанные подходы стали мощным инструментом в исследованиях процессов многофотонной ионизации. Другие теоретические и вычислительные подходы

включают релятивистский метод тесной связи [58, 59], релятивистское обобщение метода матричных итераций [60] и классический релятивистский метод усреднения по фазовому пространству [61], обобщенный на произвольные центральные потенциалы для нестационарного уравнения Дирака. Релятивистское приближение сильного поля с поправкой на кулоновское взаимодействие было использовано для рассмотрения надпороговой ионизации [62, 63].

Для внешних электромагнитных полей в инфракрасном, видимом и ультрафиолетовом диапазонах, где длина волны излучения значительно превышает размер атома, обычно используется дипольное приближение для описания взаимодействия атома, молекулы или квазимолекулы с полем. В этом приближении не учитывается пространственная зависимость векторного потенциала внешнего поля, поэтому электрическое поле электромагнитной волны однородно в пространстве, а магнитное поле обращается в нуль. В релятивистской области существует широкий диапазон параметров лазерного поля, таких как энергия фотона и пиковая интенсивность, где дипольное приближение хорошо оправдано. Ранее оно успешно применялось в уравнении Дирака для изучения многозарядных ионов, подверженных воздействию сильных лазерных полей [52, 55, 58]. Однако, когда энергия фотона и пиковая интенсивность лазерного импульса увеличиваются, недипольные эффекты становятся все более и более сильными, дипольное приближение становится неприменимым. Конечно, это может произойти даже для нерелятивистских атомных или молекулярных систем, описываемых нерелятивистским уравнением Шредингера [53, 64, 65, 66, 67]. Что касается релятивистских систем, то было предпринято несколько попыток выйти за рамки дипольного приближения и включить недипольные поправочные члены во взаимодействии с внешним полем в релятивистском уравнении Дирака [52, 57, 54, 68]. В работе [57] показано, что пространственная зависимость в огибающей импульса, а не в несущей, обеспечивает доминирующий вклад за пределами дипольного приближения. В связи с этим, в диссертации рассмотрена проблема релятивистской ионизации в сильном поле для важных прототипов одноэлектронных систем, таких как гомоядерные двухатомные квазимолекулы. Среди таких систем только H_2^+ может существовать в виде стабильной молекулы. Квазимолекулы с более высокими ядерными зарядами могут временно образовываться во время столкновений в пучках ионов или накопителях. С одной

стороны, по сравнению с атомарными ионами, квазимолекулы обладают меньшей симметрией и большим количеством степеней свободы, что значительно усложняет их реакцию на внешние поля. С другой стороны, при приближении общего заряда ядра к критическому значению сильно заряженные квазимолекулы могут предоставить уникальную возможность для изучения квантовых электродинамических процессов, индуцированных лазером, в сверхсильных полях.

В работе используются атомные единицы ($\hbar = |e| = m_e = 1$), если явно не указано иное.

Основные цели работы заключаются в разработке и применении численно стабильных алгоритмов решения уравнения Шредингера и уравнения Дирака для исследования взаимодействия двухатомных молекул и квазимолекул с импульсами сильного когерентного излучения. Для этого решаются следующие **задачи**:

1. Разработка алгоритма решения полностью трехмерного нестационарного уравнения Шредингера и нестационарного уравнения Дирака в вытянутой сфероидальной системе координат с использованием численных псевдоспектральных методов.
2. Изучение влияния двухцентральной интерференции на процесс ионизации молекулы H_2^+ , приготовленной в первом возбужденном электронном состоянии $1\sigma_u$, линейно поляризованным лазерным импульсом с несущей длиной волны в далекой ультрафиолетовой области в рамках нерелятивистского подхода (уравнение Шредингера).
3. В рамках релятивистского подхода (уравнение Дирака) вычислены энергии связанных состояний и сделана оценка релятивистских эффектов с помощью масштабирования параметров системы по заряду ядра Z для различных гомоядерных квазимолекул.
4. Вычисление сечений захвата электрона в столкновении протона с атомом водорода в основном состоянии в линейно поляризованном в плоскости столкновения поле. Проведен анализ влияния частоты и фазы электромагнитного поля на процесс захвата электрона налетающей частицей.

Научная новизна. В рамках диссертации разработан полностью трехмерный алгоритм решения нестационарного уравнения Дирака во внешнем поле для двухатомных квазимолекул за рамками дипольного приближения. Разработан аналогичный алгоритм для уравнения Шредингера. Продемонстрирована возможность выбора параметров лазерного поля таким образом, чтобы максимум ионизации, как и максимум в угловых распределениях фотоэлектронов, наблюдался при перпендикулярной ориентации оси квазимолекулы и вектора поляризации лазерного поля. Представлен анализ влияния фазы линейно поляризованного электромагнитного поля в низкоэнергетических столкновениях протона с атомом водорода для длин волн в инфракрасной и далекой ультрафиолетовой области.

Научная ценность и практическая значимость. Разработанные алгоритмы описания взаимодействия молекул и квазимолекул с линейно поляризованным внешним полем могут найти свое применение в области приготовления молекул в определенном квантовомеханическом состоянии, в исследовании молекулярной электронной структуры и движения электронов для различных фиксированных ядерных конфигураций. Алгоритм, разработанный для релятивистского уравнения Дирака, позволяет проводить оценку релятивистских эффектов в квазимолекулах, а также создает необходимую теоретическую основу для управления резонансными процессами, когда несущая частота лазерного поля совпадает с разностью двух уровней в квазимолекуле, в результате чего ионизация может быть существенно усилена. Практическое приложение полученных результатов напрямую связано с возможностью создания компактных источников интенсивного когерентного излучения и аттосекундных импульсов. Результаты диссертации целесообразно использовать в научно-исследовательских организациях и центрах, занимающихся взаимодействием сильного лазерного излучения с веществом: Институт общей физики РАН, Научно-исследовательский институт ядерной физики МГУ, РИЦ Курчатовский институт, Санкт-Петербургский государственный университет, Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Московский физико-технический институт, Институт прикладной физики РАН, Воронежский государственный университет, Институт прикладной физики имени А. В. Гапонова-Грехова РАН.

Положения, выносимые на защиту

1. Вероятность ионизации молекулы H_2^+ в $1\sigma_u$ состоянии под действием линейно поляризованного электромагнитного поля и угловые распределения фотоэлектронов зависят от ориентации молекулы аномальным образом вследствие двухцентрковой интерференции.
2. Релятивистские эффекты приводят к увеличению потенциала ионизации квазимолекулы и к сдвигу резонансной частоты при взаимодействии с электромагнитным полем. Существенная неоднородность векторного потенциала электромагнитного поля в области электронного волнового пакета является причиной возникновения недипольных эффектов, выражающихся в усилении ионизации квазимолекулы под воздействием электромагнитного поля.
3. В процессе столкновения во внешнем поле протона с атомом водорода фаза электромагнитного поля, в случае медленно осциллирующего поля, оказывает существенное влияние на процесс захвата электрона. Фаза быстро осциллирующего электромагнитного поля не оказывает существенного влияния на динамику системы.

Достоверность полученных результатов. Все результаты проходили проверку на сходимость, путем увеличения точности расчета. Рассчитанные величины хорошо согласуются с теоретическими результатами других авторов, когда существует возможность их сравнить. Результаты, представленные в диссертации, были опубликованы в авторитетных журналах и обсуждены на нескольких международных конференциях.

Апробация результатов исследования

1. Международная студенческая конференция “Science and progress”, 12-14 ноября, 2018, Санкт-Петербург, Россия.
2. Всероссийский молодежный научный форум “OpenSciens 2021”, 16-18 ноября, 2021, Гатчина, Россия.

3. Всероссийская конференция по естественным и гуманитарным наукам с международным участием – «Наука СПбГУ-2021», 28 декабря, 2021, онлайн.
4. Всероссийская конференция по естественным и гуманитарным наукам с международным участием – «Наука СПбГУ-2022», 21 ноября, 2022, онлайн.
5. Международная летняя конференция по теоретической физике 2023, 3-7 июля, 2023, Москва, Россия.

Кроме того, результаты неоднократно докладывались на семинарах кафедры квантовой механики физического факультета Санкт-Петербургского государственного университета.

Публикации автора по теме диссертации. По теме диссертационной работы опубликовано 3 статьи в журналах, рекомендованных ВАК РФ и/или входящих в базы данных РИНЦ, Web of Science и Scopus:

1. Multiphoton Ionization of One-Electron Relativistic Diatomic Quasimolecules in Strong Laser Fields / D. A. Telnov, D. A. Krapivin, J. Heslar, S.-I. Chu // The Journal of Physical Chemistry A. — 2018. — Vol. 122, no. 11. — Pp. 8026–8036. [69]
2. *Krapivin D. A., Telnov D. A.* Anomalous dependence of ionization probability and electron angular distributions on orientation of molecular axis in photoionization of H_2^+ : effect of two-center interference // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2021. — Vol. 54, no. 20. — P. 205601. [70]
3. *Krapivin D. A., Telnov D. A.* Influence of the phase of the electromagnetic field on the processes of charge transfer and ionization in laser-assisted collisions of protons with hydrogen atoms // The European Physical Journal D. — 2023. — Vol. 77, no. 99. [71]

Личный вклад автора Все основные результаты были получены лично автором или в результате совместной работы с другими исследователями.

Структура и объем работы

Диссертация содержит 93 страницы, 17 рисунков и 3 таблицы. Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения, списка литературы, который включает в себя 99 наименований.

- Во **введении** обоснована актуальность диссертационной работы, сформулирована цель и аргументирована научная новизна исследований, указана практическая значимость полученных результатов и представлены выносимые на защиту научные положения.
- В **первой главе** подробно изложен теоретический подход и используемые численные методы при решении уравнения Шредингера во внешнем поле в калибровке скорости для двухцентрковой молекулы H_2^+ . Построены волновые функции непрерывного спектра для одноэлектронной молекулы H_2^+ . Исследована зависимость полной вероятности ионизации системы от ориентации молекулярной оси в линейно поляризованном лазерном поле из начального состояния $1\sigma_u$. Построены распределения вылетающих фотоэлектронов по энергиям и углам вылета для длин волн в мягком рентгеновском и XUV-диапазонах в однофотонном режиме.
- **Вторая глава** диссертации посвящена изучению релятивистских эффектов в одноэлектронных квазимолекулах подверженных воздействию внешнего поля и эффектам, возникающим за счет выхода за рамки дипольного приближения.
- **Третья глава** посвящена изучению влияния фазы линейно поляризованного электромагнитного поля на процесс переноса заряда в столкновениях $\text{H}-\text{H}^+$. Столкновения рассматриваются в низкоэнергетическом режиме (скорость налетающего протона соответствует энергии 0.25 кэВ) в рамках дипольного приближения электромагнитного поля.
- В **заключении** приведены основные результаты и выводы, полученные в рамках диссертационной работы.

Глава 1. Аномальная зависимость вероятности ионизации и угловых распределений электронов от ориентации молекулы H_2^+ при фотоионизации: эффект двухцентрковой интерференции

В этой главе подробно изложен теоретический подход и используемые численные методы при решении уравнения Шредингера во внешнем поле в калибровке скорости для двухцентрковой молекулы H_2^+ .

Уравнение Шредингера для двухцентрковой молекулярной системы наиболее удобно решать в вытянутой сфероидальной системе координат. Такая система максимально учитывает симметрию двухцентрковой молекулы, а параметр сфероидальной системы координат позволяет задавать простым образом межъядерное расстояние. Изначально решается стационарное уравнение Шредингера, чтобы получить энергии и волновые функции связанных состояний. На следующем шаге описывается эволюция начального состояния системы во внешнем поле с течением времени. В качестве начального состояния рассмотрена антисимметричная волновая функция $1\sigma_u$, для межъядерного расстояния 2 а.е. Для изучения спектра фотоэлектронов конструируются волновые функции непрерывного спектра с правильным асимптотическим поведением на больших расстояниях. Расчет распределений фотоэлектронов по углам и энергиям вылета позволяет проанализировать зависимость полной вероятности ионизации и фотоэлектронных спектров от ориентации молекулярной оси. Оказывается так, что в интервале длин волн от 6 до 23 нм обнаруживается аномальное поведение вероятности ионизации, где она возрастает с увеличением угла между вектором поляризации внешнего поля и осью молекулы, достигая максимума при перпендикулярной ориентации молекулы. Такое аномальное поведение объясняется двухцентрковой интерференцией вкладов в волновой пакет от областей

пространства вблизи ядер молекулы.

В главе 1 поле считается линейно поляризованным и рассматривается в дипольном приближении.

1.1 Уравнение Шредингера в сфероидальной системе координат

Нестационарное уравнение Шредингера для одноэлектронной молекулярной (либо квазимолекулярной) системы во внешнем поле имеет вид:

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = [H_0 + V]\Psi(\mathbf{r}, t). \quad (1.1)$$

Здесь H_0 — невозмущенный гамильтониан, включающий оператор кинетической энергии и потенциал взаимодействия электрона с ядрами $U(\mathbf{r})$:

$$H_0 = -\frac{1}{2}\nabla^2 + U(\mathbf{r}), \quad (1.2)$$

а V — оператор взаимодействия с внешним электромагнитным полем. В данной главе диссертации ядра молекулы считаются неподвижными. При выборе калибровки скорости в дипольном приближении оператор V записывается следующим образом:

$$V = -i(\mathbf{A} \cdot \nabla) + \frac{1}{2}A^2, \quad (1.3)$$

причем векторный потенциал \mathbf{A} в этом случае зависит от времени, но не зависит от пространственных координат. Сила, действующая на электрон со стороны внешнего электрического поля, выражается через векторный потенциал с помощью обычного соотношения:

$$\mathbf{F} = \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}. \quad (1.4)$$

Для двухцентровой молекулярной системы уравнение Шредингера (1.1) удобнее всего решать в вытянутых сфероидальных координатах ξ, η, ϕ , которые связаны с декартовыми следующим образом [72]:

$$\begin{aligned} x &= a\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)} \cos \phi, \\ y &= a\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)} \sin \phi, \\ z &= a\xi\eta. \end{aligned} \quad (1.5)$$

Интервалы изменения сфероидальных координат задаются следующими соотношениями:

$$1 < \xi < \infty, \quad -1 < \eta < 1, \quad 0 < \phi < 2\pi. \quad (1.6)$$

Для записи уравнения Шредингера в сфероидальной системе координат, используются множители Ламе:

$$H_\xi = a\sqrt{\frac{\xi^2 - \eta^2}{\xi^2 - 1}}, \quad H_\eta = a\sqrt{\frac{\xi^2 - \eta^2}{1 - \eta^2}}, \quad H_\phi = a\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)}. \quad (1.7)$$

Связь ортов декартовой системы координат с ортами сфероидальной системы координат задается следующими соотношениями:

$$\vec{e}_z = \frac{f\eta}{H_\xi}\vec{e}_\xi + \vec{e}_\eta \frac{f\xi}{H_\eta}, \quad (1.8)$$

$$\vec{e}_x = \vec{e}_\xi \cos \phi \frac{f\xi}{H_\eta} - \vec{e}_\eta \cos \phi \frac{f\eta}{H_\xi} - \sin \phi \vec{e}_\phi, \quad (1.9)$$

$$\vec{e}_y = \vec{e}_\xi \sin \phi \frac{f\xi}{H_\eta} - \vec{e}_\eta \sin \phi \frac{f\eta}{H_\xi} + \cos \phi \vec{e}_\phi. \quad (1.10)$$

Дифференциальный оператор набла имеет следующее выражение:

$$\vec{\nabla} = \frac{1}{H_\xi} \frac{\partial}{\partial \xi} \vec{e}_\xi + \frac{1}{H_\eta} \frac{\partial}{\partial \eta} \vec{e}_\eta + \frac{1}{H_\phi} \frac{\partial}{\partial \phi} \vec{e}_\phi. \quad (1.11)$$

В сфероидальных координатах, оператор кинетической энергии и потенциал взаимодействия электрона с ядрами имеют вид:

$$-\frac{1}{2}\nabla^2 = -\frac{1}{2a^2} \frac{1}{\xi^2 - \eta^2} \left[\frac{\partial}{\partial \xi} (\xi^2 - 1) \frac{\partial}{\partial \xi} + \frac{\partial}{\partial \eta} (1 - \eta^2) \frac{\partial}{\partial \eta} + \frac{\xi^2 - \eta^2}{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \right], \quad (1.12)$$

$$U(\xi, \eta) = -\frac{(Z_1 + Z_2)\xi + (Z_2 - Z_1)\eta}{a(\xi^2 - \eta^2)}, \quad (1.13)$$

где Z_1 и Z_2 — заряды ядер, $Z_1 = Z_2 = 1$ для молекулы H_2^+ . Ось z декартовой системы координат, в данной главе диссертации, направлена вдоль оси молекулы. Ядра молекулы совпадают с центрами сфероидальной системы координат, а расстояние между ними R задается параметром a : $R = 2a$. В расчетах полагается $a = 1$ а.е., что отвечает равновесному межъядерному расстоянию $R_e = 2$ а.е.

молекулы H_2^+ в основном электронном состоянии. Прежде чем решать нестационарное уравнение (1.1), нужно решить задачу на собственные значения для невозмущенного гамильтониана H_0 :

$$[H_0 + U]\Psi_i(\mathbf{r}) = E_i\Psi_i(\mathbf{r}), \quad (1.14)$$

чтобы получить волновую функцию начального состояния в виде собственной функции первого возбужденного электронного состояния молекулы ($1\sigma_u$). Поскольку в этом электронном состоянии молекула H_2^+ нестабильна и диссоциирует, создание такого состояния может быть результатом резонансного возбуждения из стабильного основного состояния ($1\sigma_g$). Практическая реализуемость такого процесса подтверждена экспериментально [73]. При численном решении задачи размер пространственной области определяется параметром R_b . При $a\xi = R_b$ на волновую функцию наложено нулевое граничное условие. В расчетах данной главы $R_b = 80$ а.е., что, для используемых параметров внешнего поля (см. ниже), позволяет корректно описывать все физически значимые для данной задачи процессы. Для численного решения задачи на собственные значения (1.14) производится дискретизация координат ξ и η при помощи обобщенного псевдоспектрального метода. Идея применения таких методов состоит в дискретизации функций по некоторым точкам, называемым точками коллокации. Сначала задается отображение $x \rightarrow \xi : x \in (-1; 1)$:

$$a\xi_i = a + R_l \frac{(1 + x_i)^2}{1 - x_i + 4\frac{R_l}{R_b}}, \quad (1.15)$$

где R_l параметр, регулируя который можно изменять распределение точек коллокации, а также повысить точность расчетов. R_b является граничным параметром, он должен выбираться достаточно большим для правильного описания динамики системы в лазерном поле. Размер пространственной области, за пределами которого волновая функция полагается равной нулю, для сетки $a\xi$ (псевдорadiaльной) полагается равным $R_b + a$. Отображение (1.15) квадратично в окрестности $\xi=1$, поэтому плотность точек коллокации вблизи центров вытянутой сфероидальной системы координат высока. Это важно для точных расчетов с моделью не точечного ядра, так как размер ядра на несколько порядков меньше размера молекулярной системы. Для дискретизации ξ и функций

зависящих от ξ используется схема Гаусса-Лежандра-Радау. Точки коллокации для этой схемы имеют вид [74, 75]:

$$x_i : P_{N_x}(x_i) - P_{N_x+1}(x_i) = 0, \quad (1.16)$$

где $P_{N_x+1}(x_i), P_{N_x}(x_i)$ полиномы Лежандра, вычисленные в точках коллокации (N_x — количество точек коллокации для координаты ξ). Веса для дискретизации в точках коллокации имеют вид:

$$w_i^x = \frac{1}{(N_x + 1)^2} \frac{1 + x_i}{(P_{N_x}(x_i))^2}. \quad (1.17)$$

Формулы интегрирования и дифференцирования произвольной функции:

$$\int_{-1}^1 f(x) dx = \sum_{i=1}^{N_x+1} f(x_i) w_i^x, \quad (1.18)$$

$$\frac{df}{dx}(\xi(x_i)) = \frac{1}{\xi_i'} \sum_{i'=1}^{N_x+1} D_{ii'}^x f(x_{i'}), \quad (1.19)$$

где:

$$D_{ii'}^x = \frac{(1 + x_{i'}) P_{N_x}(x_i)}{(x_i - x_{i'}) (1 + x_i) P_{N_x}(x_{i'})} \quad (i \neq i'), \quad (1.20)$$

$$D_{ii}^x = -\frac{(1 + x_i) P_{N_x}(x_i)}{2(1 + x_i)(1 + x_i) P_{N_x}(x_i)} \quad (i = i'). \quad (1.21)$$

Для координаты η задается отображение $\eta \rightarrow y : y \in (-1; 1)$

$$\eta_j = \sin\left(\frac{\pi}{2} y_j\right). \quad (1.22)$$

Для η применяется схема Гаусса-Лежандра (N_y — количество точек коллокации для координаты η):

$$y_j : P_{N_y}(y_j) = 0, \quad \int_{-1}^1 g(y) dy = \sum_{j=1}^{N_y} g(y_j) w_j^y, \quad (1.23)$$

$$w_j^y = \frac{1}{(1 - y_j^2) [P'_{N_y}(y_j)]^2}, \quad (1.24)$$

$$\frac{dg}{d\eta}(\eta(y_j)) = \frac{1}{\eta_j'} \sum_{j'=1}^{N_y} D_{jj'}^y g(y_{j'}), \quad (1.25)$$

где:

$$D_{jj'}^y = \frac{P'_{N_y}(y_j)}{(y_j - y_{j'})P'_{N_y}(y_{j'})} \quad (j \neq j'), \quad (1.26)$$

$$D_{jj'}^y = \frac{y_j P'_{N_y}(y_j)}{(1 - y_j^2)P'_{N_y}(y_j)} \quad (j = j'). \quad (1.27)$$

Координата ϕ дискретизируется используя метод сетки Фурье [76]. В данном методе строится сетка с равномерным шагом:

$$\phi = s\Delta\phi. \quad (1.28)$$

Невозмущенный гамильтониан (1.2) в сфероидальной системе координат может быть записан в виде:

$$H_0 = T(\xi, \eta, \phi) + U(\xi, \eta)$$

Далее определяется целое число n с помощью следующего соотношения:

$$2n = (N_\phi - 1),$$

где N_ϕ число точек сетки, которое обязательно является нечетным. Тогда, дискретизированный (по углу ϕ) гамильтониан запишется в виде:

$$H_{ss'} = \langle \psi_s | H | \psi_{s'} \rangle = \frac{1}{\Delta\phi} \left(\sum_{l=-n}^n \frac{e^{il2\pi(s-s')/N_\phi}}{N_\phi} T_l + U(\phi_s) \delta_{ss'} \right), \quad (1.29)$$

где:

$$T_l = l\Delta k, \quad \Delta k = \frac{2\pi}{N_\phi \Delta\phi} = 1. \quad (1.30)$$

После объединения отрицательных и положительных значений l в формуле (1.29) получается следующее выражение:

$$H_{ss'} = \frac{1}{\Delta\phi} \left(\sum_{l=1}^n \frac{2\cos(2\pi l(s-s')/N_\phi)}{N_\phi} T_l + U(\phi_s) \delta_{ss'} \right). \quad (1.31)$$

После дискретизации, уравнение (1.1) представляет собой систему линейных уравнений, из которой находятся, путем диагонализации, значения энергий и волновые функции связанных состояний.

1.2 Решение нестационарного уравнения Шредингера во внешнем поле

Внешнее поле линейно поляризовано и направлено под углом β к оси z , то есть к оси молекулы. Для гомоядерной молекулы физический смысл имеет интервал изменения угла β от 0° до 90° . Оси x и y декартовой системы координат фиксированы таким образом, что вектор \mathbf{F} всегда лежит в плоскости $x - z$. Сила \mathbf{F} может быть разложена на составляющие вдоль осей декартовой системы координат x и z :

$$\mathbf{F}(t) = F(t)[\sin \beta \mathbf{e}_x + \cos \beta \mathbf{e}_z], \quad (1.32)$$

где $F(t)$ выбрано в следующем виде:

$$F(t) = F_0 \sin^2 \left(\frac{\omega t}{2N} \right) \sin \omega t \quad (0 \leq \omega t \leq 2\pi N). \quad (1.33)$$

В формуле (1.33) N — число оптических циклов в импульсе, ω — несущая частота электромагнитной волны. В данной главе диссертации расчеты выполнены для значений $\omega = 3.645$ а.е. (что соответствует длине волны 12.5 нм) и $N = 8$. Для описания эволюции во времени волновой функции уравнения (1.1) используются либо метод сплит-оператора в энергетическом представлении [77], либо метод Кранка-Николсон [78]. В методе сплит-оператора используется следующая схема для описания эволюции волновой функции:

$$\begin{aligned} \Psi(t + \Delta t) = & \exp(-i\frac{1}{2}\Delta t H_0) \times \\ & \exp(-i\Delta t V(t + \frac{1}{2}\Delta t)) \times \exp(-i\frac{1}{2}\Delta t H_0) \Psi(t). \end{aligned} \quad (1.34)$$

Выражение $\exp(-i\frac{1}{2}\Delta t H_0)$ является свободным пропагатором. Пропагатор поля зависит от времени и должен рассчитываться на каждом временном шаге. Однако эта операция не требует много времени. Второй метод основан на применении алгоритма Кранка-Николсон:

$$\begin{aligned} & \left[1 + \frac{i}{2}\Delta t H \left(t + \frac{1}{2}\Delta t \right) \right] \Psi(t + \Delta t) \\ & = \left[1 - \frac{i}{2}\Delta t H \left(t + \frac{1}{2}\Delta t \right) \right] \Psi(t), \end{aligned} \quad (1.35)$$

где Δt — выбранный шаг по времени. Для нахождения волновой функции в момент времени $t + \Delta t$ на каждом шаге решается система линейных уравнений (1.35). Чем меньше значение Δt , тем точнее приближение (1.35) для расчета волновой функции, но тем больше число шагов и время вычислений. Расчет волновой функции на каждом временном шаге в этом методе включает не только умножение матрицы на вектор, но и решение системы линейных уравнений. Как было проверено численно, временной шаг может быть установлен примерно в 100 раз большим, чем в методе сплит-оператора, для достижения того же уровня точности, что значительно сокращает общее количество временных шагов. Численные тесты для электромагнитного поля в дипольном приближении демонстрируют, что с увеличением числа точек коллокации (ростом значения выражения $N_x \cdot N_y \cdot N_\phi$) время, необходимое на выполнение алгоритма Кранка-Николсон, возрастает существенно быстрее времени выполнения программы основанной на использовании метода сплит-оператора. При выбранном числе точек коллокации (см. ниже) метод Кранка-Николсон оказывается быстрее метода сплит-оператора. Все расчеты, представленные в данной главе, были выполнены методом Кранка-Николсон. Число шагов установлено равным $N_s = 512$ для каждого оптического цикла, что обеспечивает разумный компромисс между точностью и скоростью вычислений. В результате воздействия внешнего поля, волновая функция распространяется к границам области, внутри которой проводится дискретизация. Для предотвращения нефизического отражения волновой функции от границ этой области, волновая функция на каждом шаге умножается на масочную функцию, плавно уменьшающуюся до нулевого значения к границе области:

$$f(\xi) = \cos \left(\pi \frac{a\xi - R_a}{2(R_b - R_a)} \right)^{1/4} \quad (R_a \leq a\xi \leq R_b), \quad (1.36)$$

$$f(\xi) = 1 \quad (a \leq a\xi \leq R_a),$$

где параметр R_a определяет значение ξ , при котором масочная функция начинает убывать. Пиковая напряженность поля выбрана равной $F_0 = 1.194$ а.е., что соответствует интенсивности поля $I_0 = 5 \times 10^{16}$ Вт/см². В расчетах приграничный слой задавался значением $R_a = 65$ а.е. При произвольной ориентации оси молекулы относительно вектора поляризации внешнего поля проекция углового момента на ось молекулы не сохраняется, и задача (1.35) является существенно

трехмерной. В данной главе использовались следующие параметры численных расчетов: 180 точек коллокации для координаты ξ , 16 точек коллокации для координаты η и 5 для координаты ϕ . Общий линейный размер матрицы системы уравнений (1.35) равен 14400.

Длительность лазерного импульса при учете приведенных выше параметров составляет 334 ас, что существенно меньше характерного времени движения ядер. Это оправдывает используемое приближение неподвижных ядер, при котором рассматривается лишь динамика электронного движения, а ядра создают статическое электрическое поле.

1.3 Расчет распределений фотоэлектронов по энергиям и углам вылета

При выбранных параметрах лазерного импульса ионизация происходит, в основном, в однофотонном режиме. Вероятность обнаружить электрон после поглощения одного фотона много больше, чем вероятность обнаружить электрон после поглощения двух и более фотонов. При этом энергия электрона после однофотонной ионизации ($E = \omega + E_i$, E_i — энергия начального состояния) такова, что он не успевает достичь границ области с радиусом R_b за время действия лазерного импульса. В этом случае распределения фотоэлектронов по энергиям и углам вылета можно получить, проектируя волновую функцию электрона, по окончании действия импульса, на волновые функции непрерывного спектра невозмущенного гамильтониана с правильным асимптотическим поведением на больших расстояниях (линейная комбинация плоской волны и сходящейся сферической волны).

Поскольку стационарное уравнение Шредингера для двухцентрковой кулоновской системы допускает разделение переменных в вытянутых сфероидальных координатах, волновую функцию непрерывного спектра (с энергией $E > 0$) можно представить в виде следующего разложения:

$$\Psi_f(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-\infty}^{\infty} C_{lm}(\mathbf{k}) R_{lm}(\xi) S_{lm}(\eta) \exp(im\phi), \quad (1.37)$$

где $C_{lm}(\mathbf{k})$ — коэффициенты разложения (\mathbf{k} — импульс электрона на бесконечном удалении, $k = \sqrt{2E}$). В выражении (1.37) индекс суммирования m имеет

смысл проекции углового момента на ось молекулы (ось z), в то время как индекс l нумерует кулоновские сфероидальные функции [$S_{lm}(\eta)$ и $R_{lm}(\xi)$ — псевдоугловые и псевдорadiaльные функции], но не связан с угловым моментом, который не является хорошим квантовым числом в отсутствие сферической симметрии. Сами кулоновские сфероидальные функции удовлетворяют обыкновенным дифференциальным уравнениям второго порядка:

$$\left[\frac{\partial}{\partial \eta} (1 - \eta^2) \frac{\partial}{\partial \eta} - \frac{m^2}{1 - \eta^2} + 2Ea^2(1 - \eta^2) + 2a(Z_2 - Z_1)\eta \right] S_{lm}(\eta) = \lambda_{lm} S_{lm}(\eta), \quad (1.38)$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial \xi} (\xi^2 - 1) \frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{m^2}{\xi^2 - 1} + 2Ea^2(\xi^2 - 1) + 2a(Z_2 + Z_1)\xi \right] R_{lm}(\xi) = -\lambda_{lm} R_{lm}(\xi). \quad (1.39)$$

Уравнения (1.38) и (1.39) связаны посредством константы разделения λ_{lm} . Уравнение (1.38) для псевдоугловой функции является задачей на собственные значения (с учетом требования конечности функции $S_{lm}(\eta)$ в особых точках $\eta = \pm 1$ на концах интервала изменения координаты η), и λ_{lm} играет роль собственного значения. Эта задача решается с помощью обобщенного псевдоспектрального метода, аналогично диагонализации невозмущенного гамильтониана H_0 . Для заданной энергии E и проекции углового момента m собственные значения λ_{lm} нумеруются индексом l ($l = 0.1, 2 \dots$).

Псевдорadiaльная кулоновская сфероидальная функция $R_{lm}(\xi)$ строится как решение задачи Коши для уравнения (1.39) при заданных параметрах m , E и λ_{lm} [79]. В малой окрестности точки $\xi = 1$ функция представляется рядом Тейлора, коэффициенты которого находятся с помощью несложных рекуррентных соотношений. Затем применяется конечно-разностный метод Нумерова для построения функции на оставшемся интервале значений ξ . Из асимптотики псевдорadiaльных функций при $\xi \rightarrow \infty$ можно извлечь сфероидальные фазы рассеяния δ_{lm} :

$$R_{lm}(\xi) \underset{\xi \rightarrow \infty}{\approx} \frac{1}{ka\xi} \sin \left[ka\xi + \frac{Z_1 + Z_2}{k} \ln(2ka\xi) - \frac{l\pi}{2} + \delta_{lm} \right]. \quad (1.40)$$

Правильная асимптотика волновых функций непрерывного спектра (1.37) и их нормировка на дельта-функцию в импульсном пространстве,

$$\langle \Psi_f(\mathbf{k}', \mathbf{r}) | \Psi_f(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \rangle = \delta^{(3)}(\mathbf{k} - \mathbf{k}'), \quad (1.41)$$

будут обеспечены, если коэффициенты разложения $C_{lm}(\mathbf{k})$ в формуле (1.37) имеют следующий вид:

$$C_{lm}(\mathbf{k}) = \frac{2i^l}{(2\pi)^{3/2}} \exp[-i(\delta_{lm} + m\phi_k)] S_{lm}(\cos \theta_k), \quad (1.42)$$

где θ_k и ϕ_k — углы вектора импульса фотоэлектрона \mathbf{k} в сферической системе координат.

Дифференциальная вероятность ионизации, которая описывает распределение фотоэлектронов по энергиям и углам вылета, может быть вычислена по следующей формуле:

$$\frac{\partial^2 P}{\partial \Omega \partial E} = k |T_{fi}|^2, \quad (1.43)$$

$$T_{fi} = \langle \Psi_f(\mathbf{k}, \mathbf{r}) | \Psi(\mathbf{r}, \tau) \rangle, \quad (1.44)$$

где момент времени τ соответствует окончанию действия лазерного импульса: $\tau = 2\pi N/\omega$.

1.4 Основные результаты первой главы

В качестве начального состояния было выбрано первое возбужденное состояние электрона в молекуле H_2^+ , то есть состояние $1\sigma_u$. В этом состоянии, как и в основном состоянии $1\sigma_g$, электронная плотность сконцентрирована вокруг ядер, но волновая функция антисимметрична при инверсии координат, и имеется узловая плоскость, проходящая через центр молекулы перпендикулярно молекулярной оси. В большинстве расчетов этой главы межъядерное расстояние равно $R=2$ а.е., то есть равно равновесному межъядерному расстоянию в основном состоянии $1\sigma_g$. При такой геометрии начального состояния естественно ожидать наименьшей вероятности ионизации в том случае, если ось молекулы ориентирована перпендикулярно вектору поляризации внешнего поля. При вылете электрона в направлении внешнего поля, то есть перпендикулярно оси молекулы, интерференция вкладов в амплитуду ионизации от окрестностей двух

ядер всегда деструктивная, что приводит к подавлению ионизации. Поскольку электроны приводятся в движение линейно поляризованным лазерным полем, у них больше шансов вылететь вдоль направления внешнего поля. Эти простые качественные соображения подтверждаются расчетами многофотонной ионизации H_2^+ при длине волны лазера в ближней инфракрасной области [35]: максимум и минимум вероятности ионизации соответствуют параллельной и перпендикулярной ориентации молекулярной оси соответственно. Однако для длин волн от 6 до 23 нм в мягком рентгеновском и XUV-диапазонах рассчитанная вероятность ионизации имеет аномальную зависимость с максимумом при перпендикулярной ориентации.

На рисунке 1.1 представлена зависимость полной вероятности ионизации H_2^+ в зависимости от угла между направлением поляризации электрического поля лазера и молекулярной осью для нескольких несущих длин волн. До включения внешнего поля электрон находится в первом возбужденном состоянии $1\sigma_u$, а межъядерное расстояние R выбрано равным 2 а.е. Показаны результаты для несущих длин волн как внутри, так и вне интервала 6–23 нм. Пиковая интенсивность поля варьируется от 5×10^{15} Вт/см² при $\lambda = 34$ нм до 5×10^{18} Вт/см² при $\lambda = 4$ нм. Интенсивности достаточно высоки, чтобы получить заметные вероятности ионизации, поэтому данные, полученные путем решения нестационарного уравнения Шредингера, являются достаточно точными и надежными (очень малые вероятности ионизации не могут быть точно извлечены из численного решения). Основываясь на тестах на сходимость, можно оценить относительную погрешность вычисленных вероятностей ионизации ниже 1%. На рисунке 1.1 видно, что при $\lambda = 10$ нм и $\lambda = 20$ нм поведение вероятности ионизации, как функции угла ориентации β , прямо противоположно тому, что можно было бы ожидать из простых интуитивных соображений, изложенных выше. Вероятность ионизации возрастает с увеличением угла β и достигает максимума при $\beta = 90^\circ$, то есть, когда молекулярная ось перпендикулярна вектору поляризации внешнего поля. Как показали расчеты, такая аномальная ориентационная зависимость вероятности ионизации наблюдается для длин волн в диапазоне от 6 до 23 нм. Для длин волн $\lambda = 4$ нм и $\lambda = 34$ нм, которые вне указанного интервала, восстанавливается ожидаемая картина с минимумом при $\beta = 90^\circ$.

Диапазон длин волн, в котором наблюдается аномальная зависимость ве-

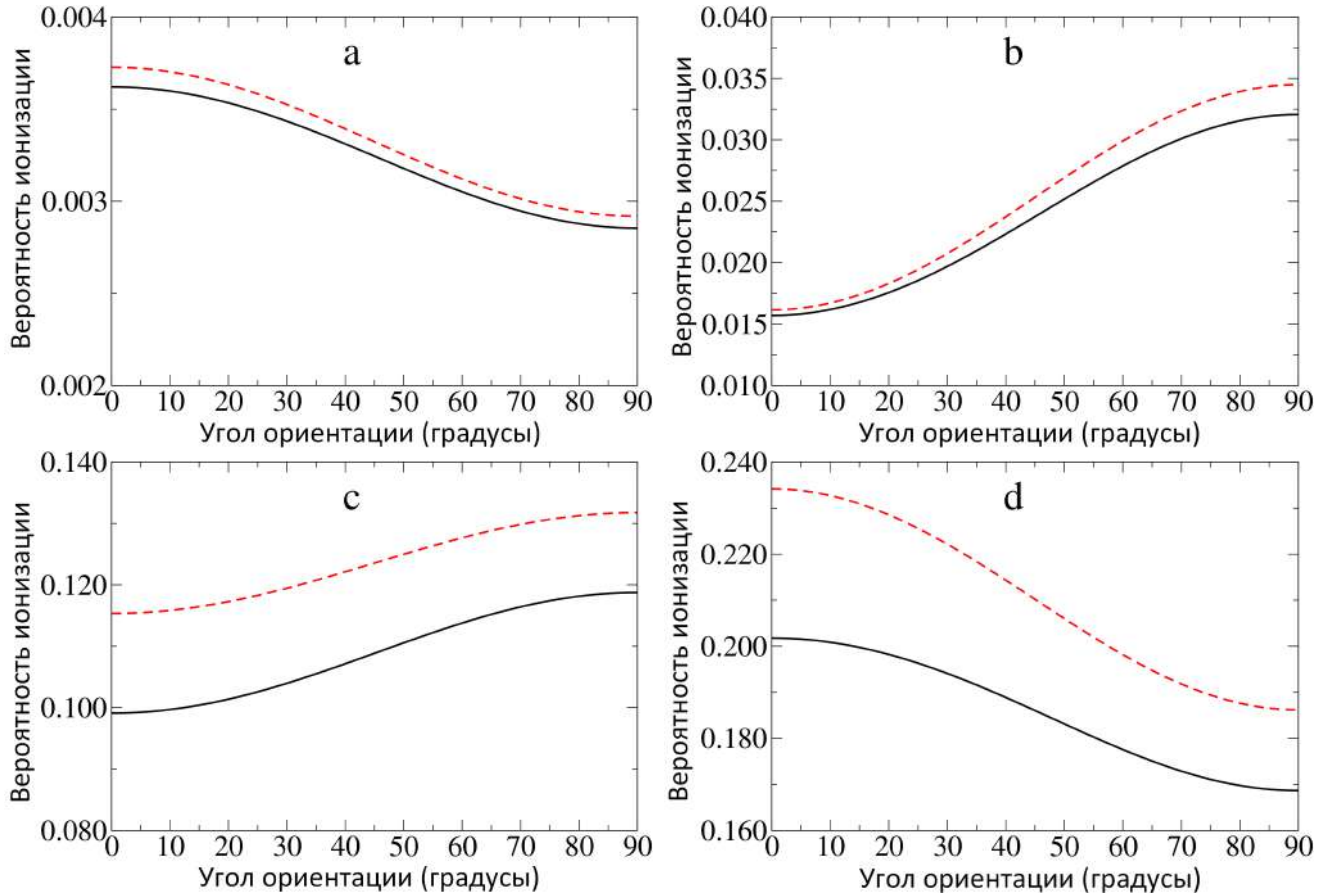


Рис. 1.1: Полная вероятность ионизации молекулы H_2^+ , находящейся в начальном состоянии $1\sigma_u$, в зависимости от угла β между вектором поляризации поля и осью молекулы: (a), $\lambda = 4$ нм, $I_0 = 5 \times 10^{18}$ Вт/см²; (b), $\lambda = 10$ нм, $I_0 = 5 \times 10^{17}$ Вт/см²; (c), $\lambda = 20$ нм, $I_0 = 5 \times 10^{16}$ Вт/см²; (d), $\lambda = 34$ нм, $I_0 = 5 \times 10^{15}$ Вт/см². Межъядерное расстояние $R = 2$ а.е., длительность импульса 8 оптических циклов. Сплошная черная линия – численные данные, полученные из решения уравнения Шредингера, пунктирная красная линия – данные полученные из теории возмущений первого порядка.

роятности ионизации, может быть оценен с помощью теории возмущений. Как правило, такой подход применим, если внешнее поле относительно слабое. Теория возмущений первого порядка может использоваться для расчета вероятности однофотонной ионизации. Можно получить следующее полуаналитическое выражение для зависимости вероятности ионизации от угла ориентации молекулярной оси β :

$$P = P_{\parallel} \cos^2 \beta + P_{\perp} \sin^2 \beta, \quad (1.45)$$

где P_{\parallel} — вероятность вылета электрона вдоль молекулярной оси, а P_{\perp} — перпендикулярно ей. Эти вероятности выражаются через матричные элементы связанно-свободного дипольного перехода:

$$P_{\parallel} = \sum_{l=0}^{\infty} \int_0^{\infty} dE G(E) |\langle \Psi_{El0} | z | \Psi_i \rangle|^2, \quad (1.46)$$

$$P_{\perp} = \sum_{l=1}^{\infty} \sum_{m=\pm 1} \int_0^{\infty} dE G(E) |\langle \Psi_{Elm} | x | \Psi_i \rangle|^2. \quad (1.47)$$

Волновые функции непрерывного спектра Ψ_{Elm} зависят от энергии E , квантового числа l и проекции углового момента m на молекулярную ось (см. (1.38) и (1.39)). Соотношение ортогональности и нормировки для этих функций:

$$\langle \Psi_{E'l'm'} | \Psi_{Elm} \rangle = \delta_{ll'} \delta_{mm'} \delta(E - E'). \quad (1.48)$$

Функция $G(E)$ определяется зависимостью лазерного поля от времени. Для формы импульса (1.33) она определяется следующим образом:

$$G(E) = \frac{F_0^2}{4} \left[\frac{2\omega}{\omega^2 - (E - E_i)^2} - \frac{\omega_-}{\omega_-^2 - (E - E_i)^2} - \frac{\omega_+}{\omega_+^2 - (E - E_i)^2} \right]^2 \sin^2 \left[\frac{\pi N(E - E_i)}{\omega} \right]. \quad (1.49)$$

Здесь используются следующие обозначения:

$$\omega_- = \omega \left(1 - \frac{1}{N} \right), \quad \omega_+ = \omega \left(1 + \frac{1}{N} \right). \quad (1.50)$$

Как видно на рисунке 1.1, теория возмущений первого порядка, воспроизводит правильную зависимость вероятности ионизации от угла ориентации β , по

крайней мере, качественно. Согласно (1.45), вероятность ионизации имеет максимум при $\beta = 90^\circ$, если $P_\perp > P_\parallel$. На рисунке 1.2 (левый график) показана зависимость отношения P_\perp/P_\parallel от длины волны лазерного поля. Для начального состояния $1\sigma_u$ это отношение меньше единицы для длин волн между порогом однофотонной ионизации при $\lambda = 23$ нм и $\lambda = 68$ нм. В этом интервале длин волн картина ориентационной зависимости вероятности ионизации соответствует изложенной выше интуитивной картине с максимумом при $\beta = 0^\circ$ и минимумом при $\beta = 90^\circ$. Однако между $\lambda = 23$ нм и $\lambda = 6$ нм обнаруживается аномальная зависимость вероятности ионизации от угла β с максимумом при $\beta = 90^\circ$ и минимумом при $\beta = 0^\circ$. Для еще более коротких длин волн можно увидеть чередующиеся интервалы $P_\perp < P_\parallel$ и $P_\perp > P_\parallel$ с отношением P_\perp/P_\parallel , постепенно приближающимся к единице. На рисунке 1.2 (левый график) также показаны данные для начального состояния $1\sigma_g$. Видно, что в последнем случае отношение P_\perp/P_\parallel колеблется почти в противофазе по сравнению со случаем начального состояния $1\sigma_u$. С учетом влияния двухцентрковой интерференции на ионизацию, когда вклады в амплитуду ионизации вносят области локализации электронной плотности в окрестности ядер, разница между $1\sigma_g$ и $1\sigma_u$ состояниями связана с разностью фаз волновой функции на ядрах молекулы. Для состояния $1\sigma_g$ разность фаз равна нулю, а для состояния $1\sigma_u$ она равна π , что приводит к изменению интерференционной картины.

Помимо разности фаз исходной волновой функции на ядрах молекулы, результат двухцентрковой интерференции существенно зависит от кинетической энергии испущенного электрона (которая, в свою очередь, определяется энергией фотона и потенциалом ионизации) и межъядерным расстоянием. При изменении этих параметров могут качественно измениться характеристики зависимости вероятности ионизации от ориентации молекулярной оси. На рисунке 1.1 представлены данные для того же начального состояния $1\sigma_u$ и межъядерного расстояния $R = 2$ а.е. но для различных энергий фотонов, определяющих импульс фотоэлектрона k согласно закону сохранения энергии (не считая уширения распределения энергии из-за конечной длительности лазерного импульса):

$$k = \sqrt{2(E_i + \omega)}. \quad (1.51)$$

Для сравнения, на рисунке 1.3 показана зависимость вероятности ионизации от

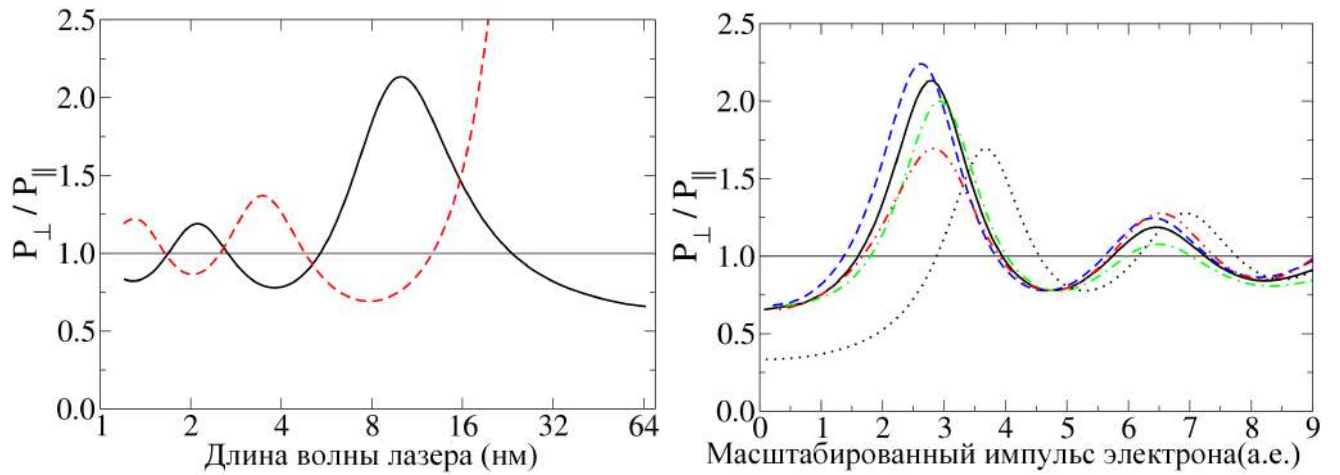


Рис. 1.2: Отношение P_{\perp}/P_{\parallel} из теории возмущений первого порядка в зависимости от длины волны несущей (левый рисунок выполнен в логарифмическом масштабе) и масштабированного импульса фотоэлектрона ka (правый рисунок). Сплошная черная линия на обоих рисунках соответствует начальному состоянию $1\sigma_u$ с межъядерным расстоянием $R = 2$ а.е. Левый рисунок: пунктирная красная линия, начальное состояние $1\sigma_g$ с межъядерным разделением $R = 2$ а.е. Правый рисунок: синяя пунктирная линия, начальное состояние $1\sigma_u$ с межъядерным расстоянием $R = 2.4$ а.е.; штрихпунктирная зеленая линия, начальное состояние $1\sigma_u$ с межъядерным расстоянием $R = 1.6$ а.е.; пунктирная черная линия, аналитическая аппроксимация (1.54) для начального состояния $1\sigma_u$; красная прерывистая линия с двойной точкой, скорректированное аналитическое приближение (1.54), (1.55) для $\kappa_0^2 = 5.5$.

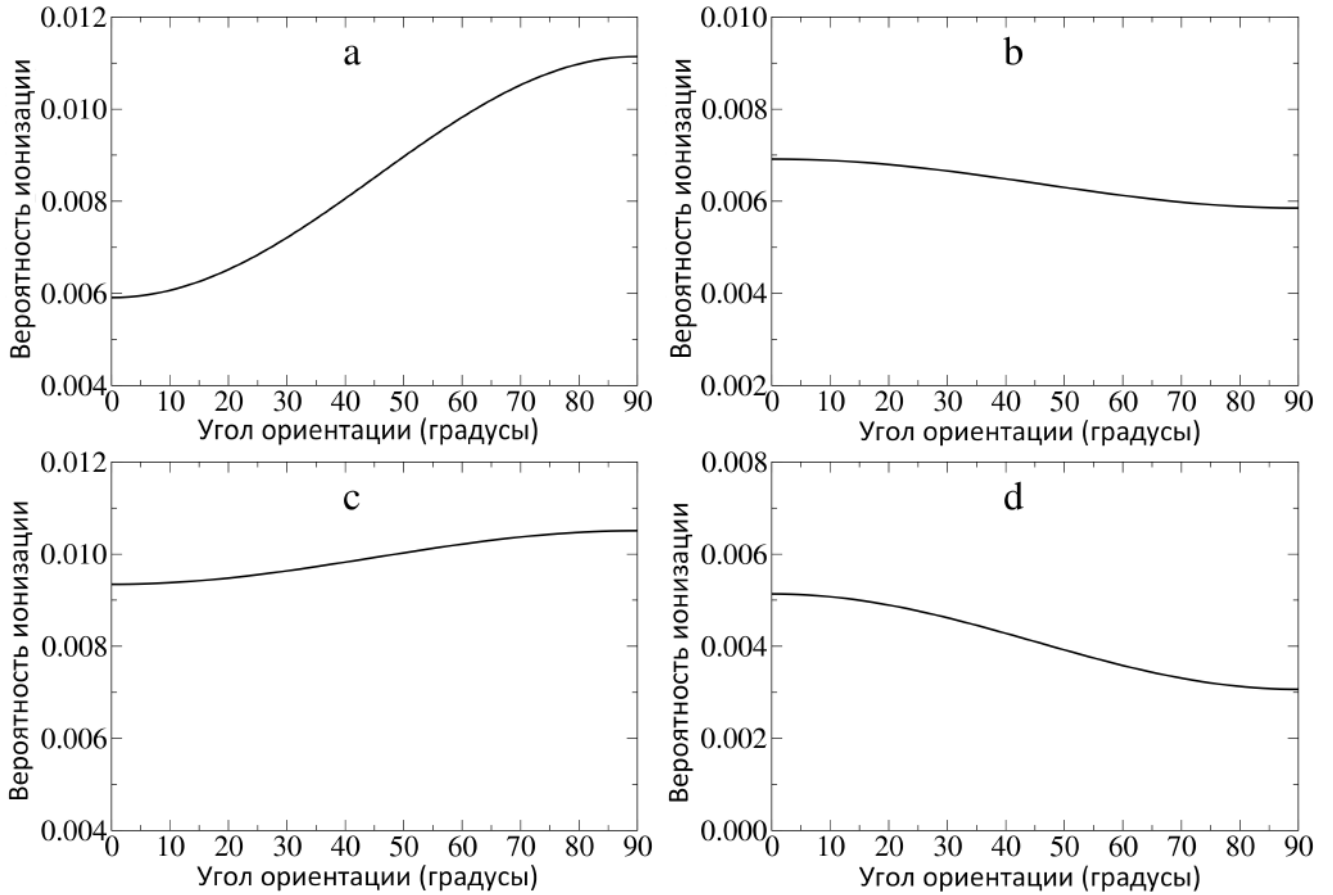


Рис. 1.3: Вероятность ионизации H_2^+ как функция угла β между вектором поляризации поля и молекулярной осью: (а), начальное $1\sigma_u$ состояние, $R = 2$ а.е., $\lambda = 12.5$ нм; (б), начальное $1\sigma_g$ состояние, $R = 2$ а.е., $\lambda = 11.2$ нм; (в), начальное $1\sigma_u$ состояние, $R = 1.6$ а.е., $\lambda = 12.5$ нм; (д), модельный атомарный ион с $Z = 2.31$ а.е., начальное $2p_0$ состояние, $\lambda = 12.5$ нм. Длительность импульса составляет 8 оптических циклов. Пиковая интенсивность $I_0 = 5 \times 10^{16}$ Вт/см².

угла β при фиксированном импульсе электрона k . Помимо результатов для состояния $1\sigma_u$ при $R = 2$ а.е. и $R = 1.6$ а.е., приведены данные для состояния $1\sigma_g$ при $R = 2$ а.е. и для модельного атомарного иона, изначально находящегося в состоянии $2p_0$ (с нулевой проекцией углового момента на ось z). Последний случай соответствует пределу $R \rightarrow 0$ состояния $1\sigma_u$ молекулы H_2^+ . Если положить, что заряд ядра атомарного иона составляет $Z = 2.31$ а.е., то энергия состояния $2p_0$ равна энергии состояния $1\sigma_u$ в молекуле H_2^+ при $R = 2$ а.е. Как видно на рисунке 1.3, ориентационная зависимость для начального состояния $1\sigma_u$ становится более пологой по мере уменьшения межъядерного расстояния: максимум ионизации смещается от $\beta = 90^\circ$ до $\beta = 0^\circ$.

Колебания отношения P_\perp/P_\parallel , наблюдаемое на рисунке 1.2, и аномальная ориентационная зависимость вероятности ионизации в интервале длин волн 6–23 нм для начального состояния $1\sigma_u$ при $R = 2$ а.е. может быть объяснена эффектом двухцентрковой интерференции. Очень грубое, но полезное приближение для дипольных матричных элементов можно сделать, если использовать линейную комбинацию смещенных сферически симметричных орбиталей для описания состояния $1\sigma_u$:

$$\Psi_i \approx \Phi(|\mathbf{r} + a\mathbf{e}_z|) - \Phi(|\mathbf{r} - a\mathbf{e}_z|), \quad (1.52)$$

и заменить континуальные состояния плоскими волнами $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$. Это приближение восходит к ранней работе Коэна и Фано [80], изучавших интерференционные эффекты в полных сечениях фотоионизации двухатомных молекул. Квадраты матричных элементов оператора импульса в калибровке скорости имеют следующие приближенные выражения:

$$\begin{aligned} |\langle \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) | \hat{p}_z | \Psi_i \rangle|^2 &\approx 4k_z^2 \sin^2(k_z a) |\tilde{\Phi}(k)|^2, \\ |\langle \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) | \hat{p}_x | \Psi_i \rangle|^2 &\approx 4k_x^2 \sin^2(k_z a) |\tilde{\Phi}(k)|^2, \end{aligned} \quad (1.53)$$

где k_x и k_z — проекции импульса электрона \mathbf{k} на оси x и z соответственно, а $\tilde{\Phi}(k)$ Фурье-образ сферически симметричной орбитали $\Phi(r)$. После интегрирования (1.53) по углам вектора \mathbf{k} получается аналитическое приближение для отношения P_\perp/P_\parallel :

$$\frac{P_\perp}{P_\parallel} \approx \frac{\varkappa^3 + 3\varkappa \cos \varkappa - 3 \sin \varkappa}{\varkappa^3 - 3\varkappa^2 \sin \varkappa - 6\varkappa \cos \varkappa + 6 \sin \varkappa}, \quad (1.54)$$

где $\varkappa = 2ka$. Функция в правой части (1.54) имеет осциллирующую зависимость от масштабированного импульса электрона ka (импульса электрона, умноженного на половину межъядерного расстояния), который возникает из-за фактора двухцентральной интерференции в матричных элементах (1.53). Хотя структура колебаний отношения P_{\perp}/P_{\parallel} качественно воспроизводится функцией (1.54), количественное согласие между численными данными и аналитическим приближением довольно плохое, особенно при малых импульсах электрона. Связанные с этим вопросы обсуждались в литературе в отношении фотоионизации H_2^+ в основном электронном состоянии [81], а также электронных спектров после надпороговой многофотонной ионизации [16] и передачи импульса фотона [82]. В этих работах сделан вывод, что аппроксимация начального и конечного состояния линейной комбинацией атомных орбиталей и волновой функцией свободной частицы соответственно недостаточно хороша для точного воспроизведения численных данных [81]. Что касается приближения плоских волн для конечных электронных состояний, можно ожидать, что оно будет не очень хорошим при низких энергиях электронов (как и борновское приближение теории рассеяния). В то время как строгий подход к улучшению качества аппроксимации должен заключаться в использовании более точных волновых функций континуума, включающих фазы рассеяния, в данной диссертации предлагается простая эмпирическая коррекция модели (1.54). Приближение плоских волн не учитывает увеличение импульса электрона в потенциальной яме вблизи ядер. Эта область вносит основной вклад в матричные элементы оператора импульса, вычисляемые пространственным интегрированием в (1.53). Чтобы в некоторой степени учесть этот эффект, в функции (1.54) можно сделать следующую замену:

$$\varkappa \rightarrow \sqrt{\varkappa^2 + \varkappa_0^2}, \quad (1.55)$$

где \varkappa_0^2 — подгоночный параметр, эффективно отражающий глубину потенциальной ямы. Исправленные результаты для $\varkappa_0^2 = 5.5$ также показаны на рисунке 1.2. Как видно, согласие с численными данными в этом случае гораздо лучше. На правом рисунке 1.2 численные данные для различных межъядерных расстояний, представленные как функции масштабированного импульса электрона ka , близки друг к другу, что подтверждает роль этого параметра в

описании фотоионизации.

Энергетические и угловые распределения фотоэлектронов также могут помочь понять двухцентровую интерференционную природу аномальной ориентационной зависимости вероятности ионизации. Простое соотношение, описывающее конструктивную интерференцию волн от двух центров, может быть записано в виде (см., например, [21], где обсуждаются эффекты двухцентрковой интерференции при генерации высоких гармоник):

$$ka \cos \theta = \left(n + \frac{1}{2}\right) \pi \quad (n = 0, 1, 2 \dots). \quad (1.56)$$

Здесь θ — угол вылета электрона относительно оси молекулы. Соответственно, условие деструктивной интерференции может быть записано в виде:

$$ka \cos \theta = n\pi \quad (n = 0, 1, 2 \dots). \quad (1.57)$$

Формулы (1.56) и (1.57) учитывают, что начальная волновая функция $1\sigma_u$ антисимметрична, что приводит к дополнительной разности фаз π между вкладками в амплитуду ионизации со стороны окрестностей двух ядер. Как отмечалось выше, деструктивная интерференция соответствует углу вылета электрона $\theta = 90^\circ$ независимо от межъядерного расстояния и длины волны лазера, при $n = 0$ в формуле (1.57). Конструктивной интерференции можно добиться, если $n = 0$ и $ka > \pi/2$ в формуле (1.56). Значение $ka = \pi/2$ хорошо согласуется с началом области аномальной зависимости, показанной на рисунке 1.2 на правом рисунке. Если $\lambda < 8$ нм, то условие деструктивной интерференции (1.57) может быть выполнено при $n = 1$. При длине волны $\lambda = 8$ нм соответствующий угол, при котором должно наблюдаться подавление эмиссии электронов вдоль оси молекулы, равен $\theta = 0^\circ$. Это по-прежнему способствует аномальной ориентационной зависимости вероятности ионизации. Однако при более коротких длинах волн этот деструктивный интерференционный минимум смещается в сторону больших углов излучения. В конце концов, около $\lambda = 6$ нм характер зависимости от ориентации оси молекулы меняется, как показано на рисунке 1.2. На еще более коротких длинах волн множественные интерференционные минимумы и максимумы приводят к чередованию интервалов длин волн с $P_\perp > P_\parallel$ и $P_\perp < P_\parallel$.

Чтобы проиллюстрировать влияние конструктивной интерференции на угловые распределения фотоэлектронов, были построены распределения по энергиям и углам вылета для длины волны $\lambda = 12.5$ нм. Эта же длина волны использовалась при расчетах фотоэлектронных спектров для лазерных импульсов с круговой поляризацией [37]. В этом случае, согласно (1.56), интерференционный максимум должен наблюдаться при угле излучения $\theta \approx 50^\circ$ (а также при угле $\theta = 180^\circ - 50^\circ = 130^\circ$, если угол θ отсчитывается от выбранного положительного направления оси z). Если электрон вылетает вдоль молекулярной оси ($\theta = 0^\circ$ или $\theta = 180^\circ$) при ионизации H_2^+ , разница фаз между волнами, пришедшими из окрестностей ядер, делает дифференциальную вероятность ионизации в 2.4 меньшей по сравнению с максимально возможной величиной при $\theta = 50^\circ(130^\circ)$. В результате, в случае параллельной ориентации молекулярной оси ($\beta = 0^\circ$), когда фотоэлектроны должны вылетать преимущественно вдоль молекулярной оси, полная ионизация оказывается подавлена. Эти соображения иллюстрируются распределениями фотоэлектронов по их энергиям и углам вылета, представленным на рисунке 1.4. Распределения показаны в плоскости $x - z$, в которой лежит молекулярная ось и вектор поляризации электрического поля лазера. Такая плоскость не определяется однозначно при параллельной ориентации молекулы ($\beta = 0^\circ$), но в этом случае распределения электронов инвариантны относительно вращения вокруг оси z и имеют тот же самый вид в любой плоскости, содержащей эту ось. На рисунке 1.4 (а также на рисунках 1.5 и 1.6 ниже) правые полуплоскости всех рисунков соответствуют положительной полуоси x , где азимутальный угол $\phi = 0^\circ$. Левые полуплоскости соответствуют отрицательной полуоси x , где $\phi = 180^\circ$.

Энергетические распределения на рисунке 1.4 описывают первый пик надпороговой ионизации с максимумом при кинетической энергии электрона $E = 2.98$ а.е. Ширина этого пика в энергетической области определяется в основном шириной частотного спектра лазерного импульса. При параллельной ориентации молекулы ($\beta = 0^\circ$) максимум расположен не в направлении оси молекулы и вектора поляризации лазерного поля [$\theta = 0^\circ(180^\circ)$], а при $\theta \approx 45^\circ(135^\circ)$. Такое положение максимума обусловлено балансом двух факторов: с одной стороны, электрическое поле лазера направлено вдоль молекулярной оси и стремится выбить электрон в этом направлении, а с другой стороны, наибольшее усиление

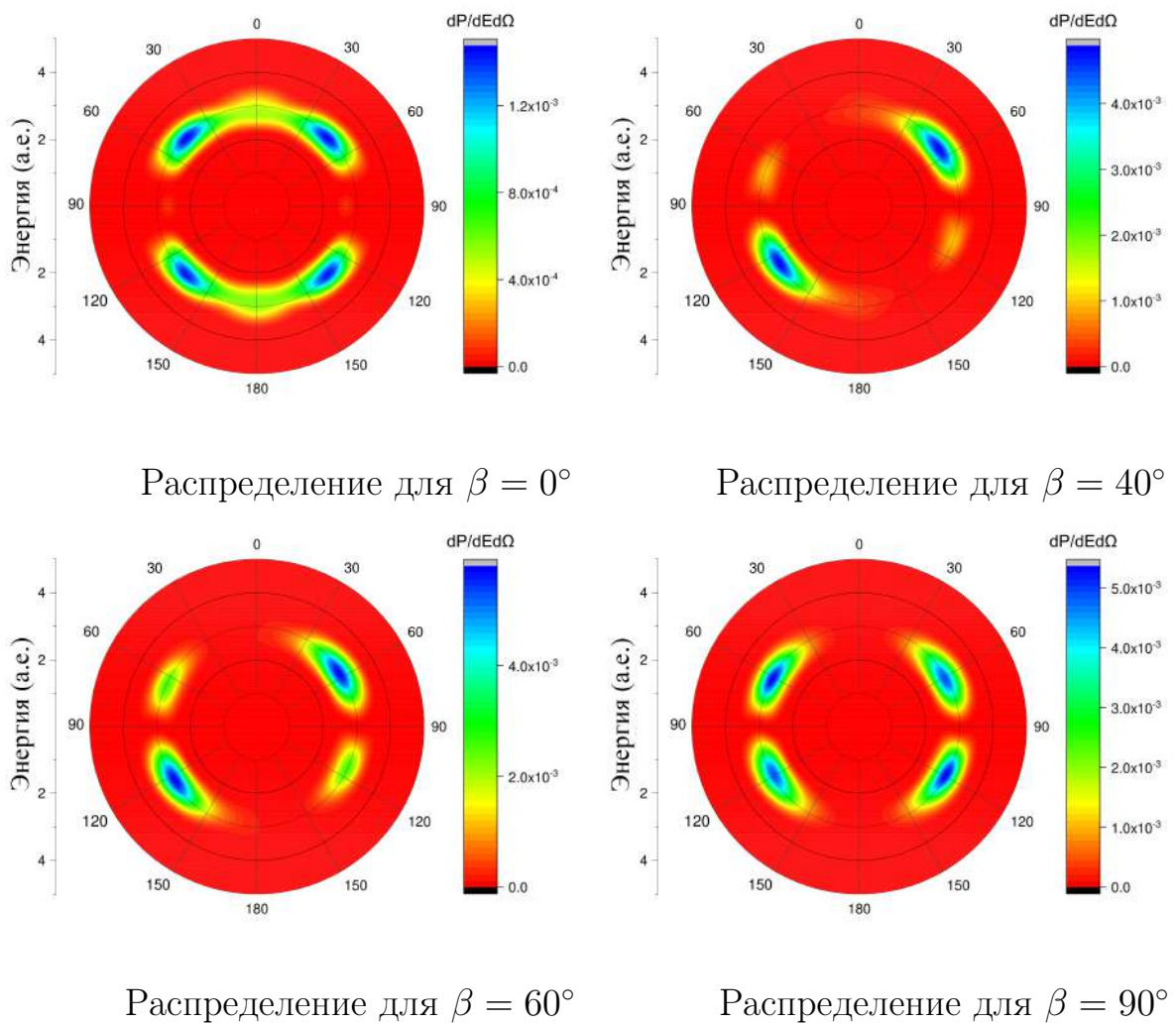


Рис. 1.4: Энергетическое и угловое распределения фотоэлектронов для молекулы H_2^+ , подготовленной в состоянии $1\sigma_u$, линейно поляризованным импульсом с длиной волны 12.5 нм и пиковой интенсивностью 5×10^{16} Вт/см² для различных ориентаций молекулярной оси.

ние сигнала за счет конструктивной интерференции имеет место при $\theta = 50^\circ$. Аналогичные угловые распределения электронов при $\beta = 0^\circ$ были получены и объяснены наличием двухцентрового интерференционного максимума в работе [38], где использовалась двумерная модель H_2^+ . Для углов $\beta = 40^\circ$ и $\beta = 60^\circ$ максимум углового распределения находится в окрестности $\theta = 50^\circ$, то есть в направлении, где ожидается наибольшая интерференция, и близком к направлению поляризации внешнего поля. Наконец, при $\beta = 90^\circ$ максимум в угловом распределении находится примерно при $\theta = 60^\circ (120^\circ)$. Как и в случае $\beta = 0^\circ$, это обусловлено балансом двух факторов: с одной стороны, подавлением эмиссии электронов в направлении перпендикулярном оси молекулы за счет деструктивной интерференции, а с другой стороны, конструктивной интерференцией при $\theta = 50^\circ$. В этом случае полная вероятность ионизации оказывается выше, чем при $\beta = 0^\circ$. В результате возникает аномальная зависимость полной вероятности ионизации от ориентации оси молекулы, как показано на рисунке 1.3.

На рисунке 1.5 показаны распределения фотоэлектронов по энергиям и углам вылета для молекулы H_2^+ , изначально подготовленной в первом возбужденном состоянии $1\sigma_u$, во внешнем поле с длиной волны 39 нм и пиковой интенсивностью поля 5×10^{14} Вт/см². На рисунке 1.6 показаны аналогичные распределения в случае атомарного иона с зарядом ядра $Z = 2.31$ а.е. для начального состояния $2p_0$ во внешнем лазерном поле с длиной волны $\lambda = 12.5$ нм и пиковой интенсивностью поля 5×10^{16} Вт/см². В обоих случаях для ориентации $\beta = 0^\circ$ виден ярко выраженный максимум в угловом распределении фотоэлектронов при угле вылета $\theta = 0^\circ (180^\circ)$. При длине волны лазера $\lambda = 39$ нм дифференциальная вероятность ионизации монотонно убывает при изменении угла вылета от 0° до 90° . При $\theta = 90^\circ$ дифференциальная вероятность ионизации близка к нулю из-за деструктивной двухцентральной интерференции. Для атомарного иона (рисунок 1.6, $\beta = 0^\circ$) двухцентровая интерференция отсутствует, а локальный максимум в угловом распределении наблюдается при угле вылета $\theta = 90^\circ$, хотя этот максимум менее выражен, чем основной максимум при $\theta = 0^\circ$. При изменении угла ориентации β от 0° до 90° основной максимум в угловом распределении постепенно смещается от $\theta = 0^\circ (180^\circ)$ до $\theta = 45^\circ (135^\circ)$.

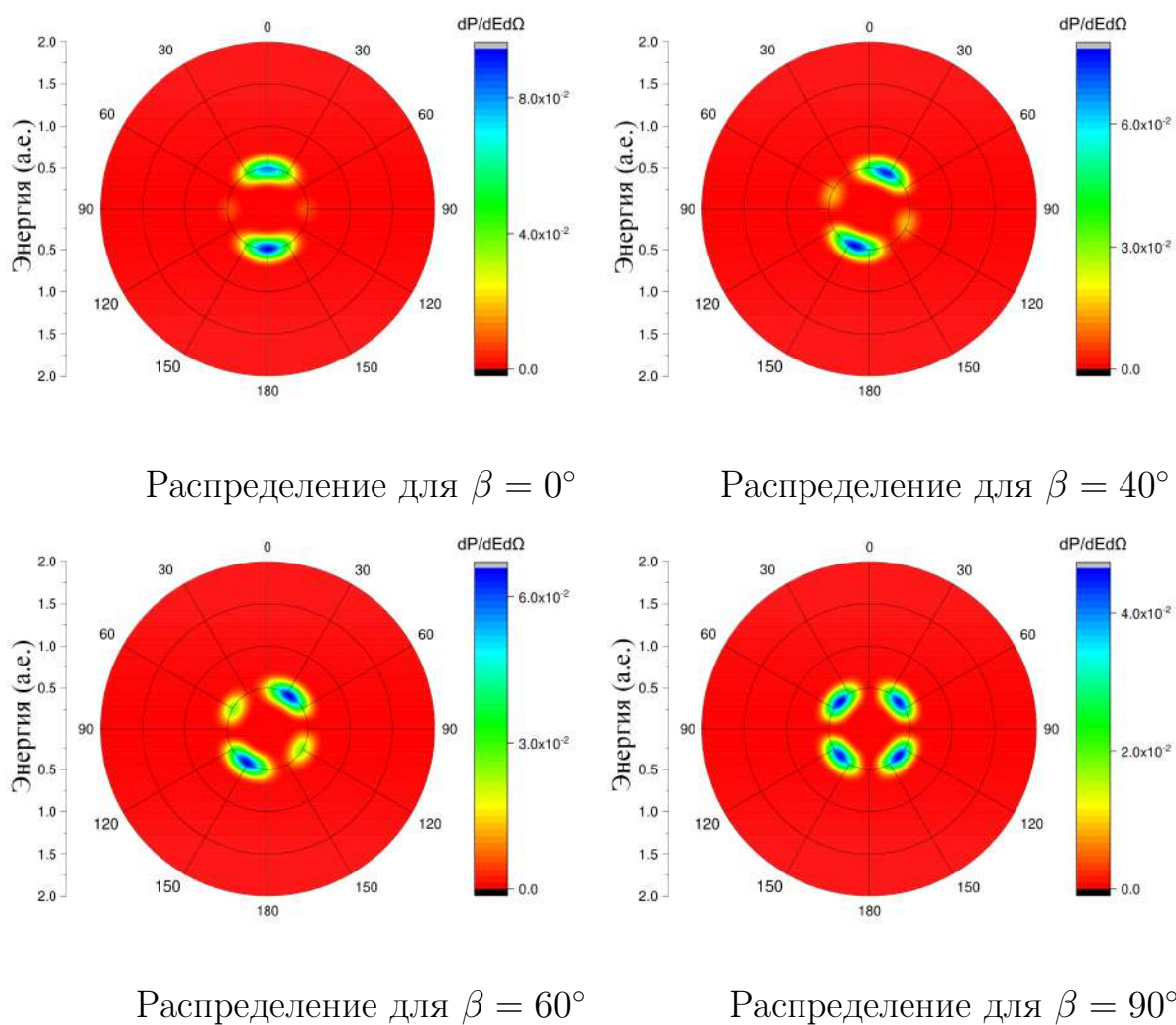


Рис. 1.5: Энергетическое и угловое распределения фотоэлектронов, для молекулы H_2^+ , подготовленной в состоянии $1\sigma_u$, линейно поляризованным импульсом с длиной волны 39 нм и пиковой интенсивностью 5×10^{14} Вт/см² для различных ориентаций молекулярной оси.

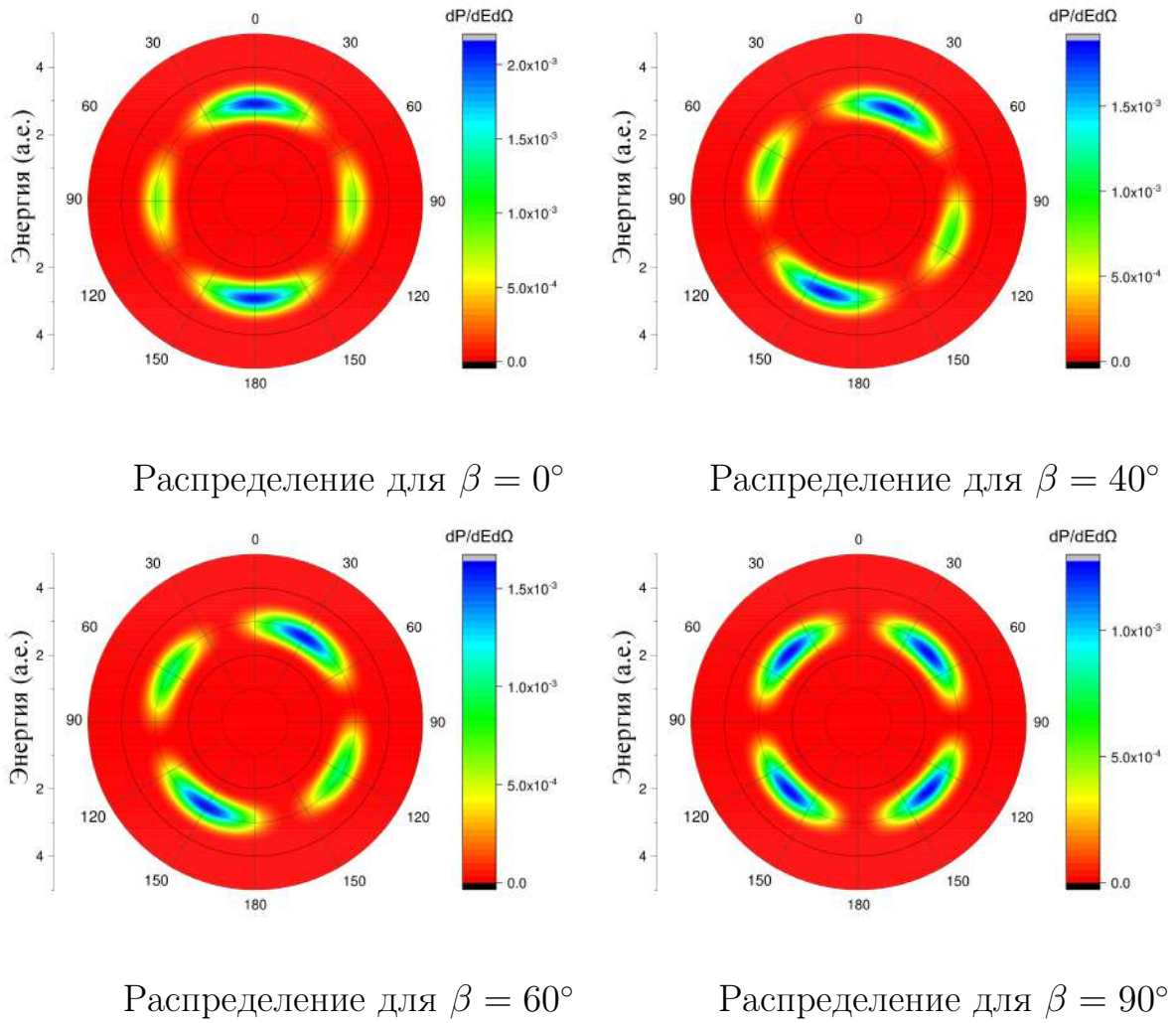


Рис. 1.6: Энергетические и угловые распределения фотоэлектронов при ионизации модельного атомарного иона с ядерным зарядом $Z = 2.31$ а.е., первоначально подготовленного в состоянии $2p_0$, линейно поляризованным импульсом с длиной волны 12.5 нм и пиковой интенсивностью 5×10^{16} Вт/см² для различных углов между вектором поляризации лазерного поля и осью z .

1.5 Итоги главы 1

В данной главе диссертации рассмотрено влияние двухцентрковой интерференции на процесс ионизации молекулы H_2^+ , приготовленной в возбужденном электронном состоянии $1\sigma_u$, линейно поляризованным лазерным импульсом с несущей длиной волны в далекой ультрафиолетовой области. Результатом такой интерференции, в интервале длин волн от 6 до 23 нм, является аномальная зависимость вероятности ионизации от ориентации оси молекулы, при которой максимум вероятности ионизации наблюдается при перпендикулярной ориентации молекулы относительно поляризации внешнего поля, а ионизация при параллельной ориентации, напротив, подавлена. Угловые распределения фотоэлектронов демонстрируют при этом минимум для угла вылета вдоль оси молекулы. Обычно эффект двухцентрковой интерференции связан с деструктивным характером интерференции, который приводит к появлению минимума в дифференциальной вероятности ионизации или спектре гармоник. В данном случае речь идет о конструктивной интерференции, которая усиливает поток вылетающих электронов под определенным углом в интервале от 0° до 90° относительно такого же потока вдоль оси молекулы. В результате максимум в угловом распределении фотоэлектронов смещается с молекулярной оси даже при параллельной ориентации этой оси. Как следствие, полная вероятность ионизации при параллельной ориентации также имеет минимум. Положение интерференционного максимума в угловом распределении фотоэлектронов хорошо описывается простой формулой для интерференции волн из двух точечных источников, расстояние между которыми равно межъядерному расстоянию в молекуле. Исходя из этой формулы, можно оценить верхнюю границу длин волн лазера, при которых наблюдается конструктивная интерференция электронов, вылетающих из окрестностей двух ядер под каким-либо углом из интервала $[0^\circ, 90^\circ]$. Для начального состояния $1\sigma_u$ и межъядерного расстояния $R = 2$ а.е. эта граница равна 24 нм. Для больших длин волн такой конструктивной интерференции нет, и максимум дифференциальной вероятности ионизации при параллельной ориентации находится при угле вылета $\theta = 0^\circ(180^\circ)$. Аномальная зависимость полной вероятности ионизации от ориентации при этом пропадает, что подтверждается расчетами для длины волны 39 нм.

Глава 2. Многофотонная ионизация релятивистской двухатомной квазимолекулы в сильном внешнем электромагнитном поле

Данная глава диссертации посвящена изучению релятивистских эффектов в одноэлектронных квазимолекулах, подверженных воздействию внешнего поля, и эффектам, возникающим за счет выхода за рамки дипольного приближения. Для этого решается уравнение Дирака в вытянутых сфероидальных координатах с помощью численных методов, изложенных в предыдущей главе. Уравнение Шредингера с кулоновским взаимодействием ядра и электрона допускает масштабирование по заряду ядра Z в дипольном приближении, в то время как уравнение Дирака не инвариантно относительно такого преобразования. Различие в результатах, предсказываемое уравнением Шредингера и уравнением Дирака, отождествляется с релятивистскими эффектами. Можно ожидать, что роль релятивистских эффектов возрастает с ростом заряда ядра Z из-за таких эффектов, как: углубление энергетического уровня основного состояния с ростом Z , релятивистского сдвига резонансной частоты.

Конец главы посвящен выходу за пределы дипольного приближения и изучению возникающих из-за этого эффектов, изменяющих динамику ионизации.

2.1 Нестационарное уравнение Дирака для одноэлектронной квазимолекулы в линейно поляризованном электромагнитном поле

Нестационарное уравнение Дирака для одноэлектронной квазимолекулы во внешнем поле записывается в виде:

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = [H_0 + V(\mathbf{r}, t)]\Psi(\mathbf{r}, t), \quad (2.1)$$

где $\Psi(\mathbf{r}, t)$ четырехкомпонентная волновая функция. Невозмущенный гамильтониан H_0 принимает вид:

$$H_0 = c(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}) + m_e c^2 \beta + U I_4. \quad (2.2)$$

где c — скорость света, \mathbf{p} — оператор импульса, m_e — масса электрона, U — оператор кулоновского взаимодействия электрона с ядрами квазимолекулы, I_4 — единичная диагональная матрица размера 4x4, а $\boldsymbol{\alpha}$ и β матрицы Дирака:

$$\beta = \begin{pmatrix} I & 0 \\ 0 & -I \end{pmatrix}, \quad \boldsymbol{\alpha} = (\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z), \quad (2.3)$$

$$\alpha_x = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \alpha_y = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & -i \\ 0 & 0 & i & 0 \\ 0 & -i & 0 & 0 \\ i & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \alpha_z = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.4)$$

Взаимодействие с внешним полем V записывается в виде:

$$V = (\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A}). \quad (2.5)$$

В формуле (2.5) $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ — векторный потенциал, который выбирается в кулоновской калибровке $(\nabla \cdot \mathbf{A}) = 0$. При выборе электромагнитного поля, линейно поляризованным вдоль оси z , в выражении (2.5) остается лишь одно слагаемое:

$$V = A(\mathbf{r}, t) \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.6)$$

Оказывается удобным сделать следующее преобразование волновой функции

$$\boldsymbol{\Psi} \equiv \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \\ \psi_3 \\ \psi_4 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{\psi}_1 \\ \tilde{\psi}_2 \exp(i\phi) \\ i\tilde{\psi}_3 \\ i\tilde{\psi}_4 \exp(i\phi) \end{pmatrix}. \quad (2.7)$$

ϕ — азимутальный угол, описывающий вращение вокруг оси z . При таком преобразовании невозмущенный гамильтониан принимает следующий вид:

$$\begin{aligned} \tilde{H}_0 = m_e c^2 & \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} + c \begin{vmatrix} 0 & B \\ B^\dagger & 0 \end{vmatrix} \\ & + c \begin{vmatrix} 0 & D \\ D^\dagger & 0 \end{vmatrix} + U \begin{vmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{vmatrix}. \end{aligned} \quad (2.8)$$

В уравнении (2.8) обозначения B и D соответствуют матрицам 2×2 , которые в вытянутых сфероидальных координатах имеют вид:

$$B = \begin{pmatrix} \frac{\eta(\xi^2-1)}{a(\xi^2-\eta^2)} \frac{\partial}{\partial \xi} + \frac{\xi(1-\eta^2)}{a(\xi^2-\eta^2)} \frac{\partial}{\partial \eta} & \frac{\sqrt{(\xi^2-1)(1-\eta^2)}}{a(\xi^2-\eta^2)} [\xi \frac{\partial}{\partial \xi} - \eta \frac{\partial}{\partial \eta}] \\ \frac{\sqrt{(\xi^2-1)(1-\eta^2)}}{a(\xi^2-\eta^2)} [\xi \frac{\partial}{\partial \xi} - \eta \frac{\partial}{\partial \eta}] & -\frac{\eta(\xi^2-1)}{a(\xi^2-\eta^2)} \frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{\xi(1-\eta^2)}{a(\xi^2-\eta^2)} \frac{\partial}{\partial \eta} \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

$$D = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{i}{a\sqrt{(\xi^2-1)(1-\eta^2)}} \frac{\partial}{\partial \phi} + \frac{1}{a\sqrt{(\xi^2-1)(1-\eta^2)}} \\ \frac{i}{a\sqrt{(\xi^2-1)(1-\eta^2)}} \frac{\partial}{\partial \phi} & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.10)$$

Оператор взаимодействия V после преобразования волновой функции принимает следующий вид:

$$\tilde{V} = A(\mathbf{r}, t) \begin{pmatrix} 0 & 0 & i & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i \\ i & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -i & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.11)$$

Теперь для четырехкомпонентной волновой функции $\tilde{\psi}$, представимой в виде:

$$\tilde{\Psi} \equiv \begin{pmatrix} \tilde{\psi}_1 \\ \tilde{\psi}_2 \\ \tilde{\psi}_3 \\ \tilde{\psi}_4 \end{pmatrix}. \quad (2.12)$$

уравнение Дирака принимает вид:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\Psi} = [\tilde{H}_0 + \tilde{V}] \tilde{\Psi}. \quad (2.13)$$

Волновая функция $\tilde{\Psi}$ может быть разложена в ряд Фурье, как функция азимутального угла ϕ :

$$\tilde{\Psi} = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp(im\phi) \tilde{\Psi}^{(m)}. \quad (2.14)$$

Каждое слагаемое в правой части соответствует значению проекции $M = m + 1/2$ полного углового момента на ось z . Гамильтониан $\tilde{H}_0^{(m)}$ полностью вещественен и представим в виде:

$$\begin{aligned} \tilde{H}_0^{(m)} = m_e c^2 & \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} + c \begin{vmatrix} 0 & B \\ B^\dagger & 0 \end{vmatrix} \\ & + c \begin{vmatrix} 0 & D_m \\ D_m^\dagger & 0 \end{vmatrix} + U \begin{vmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{vmatrix}. \end{aligned} \quad (2.15)$$

Матрица D_m представима в виде:

$$D_m = \begin{pmatrix} 0 & \frac{m+1}{a\sqrt{(\xi^2-1)(1-\eta^2)}} \\ -\frac{m}{a\sqrt{(\xi^2-1)(1-\eta^2)}} & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.16)$$

Если поле рассматривается в дипольном приближении и поле линейно поляризовано вдоль молекулярной оси, проекция углового момента на ось z сохраняется. Для начального состояния с определенной проекцией углового момента только один член с соответствующим значением m должен быть сохранен в уравнении

$$\tilde{H}_0^{(m)} \tilde{\Psi}_n^{(m)} = E_n^{(m)} \tilde{\Psi}_n^{(m)}. \quad (2.17)$$

2.2 Потенциал взаимодействия электрона с ядрами

Для молекулы H_2^+ под воздействием электромагнитного поля можно пренебречь конечным размером ядер и использовать кулоновский оператор взаимодействия:

$$U(\mathbf{r}) = -\frac{Z}{\mathbf{r} + \mathbf{a}} - \frac{Z}{\mathbf{r} - \mathbf{a}}, \quad (2.18)$$

где \mathbf{a} — вектор, направленный вдоль молекулярной оси и равный половине межъядерного расстояния:

$$\mathbf{a} = \frac{1}{2} R \mathbf{e}_z. \quad (2.19)$$

Вектор \mathbf{e}_z — единичный вектор вдоль молекулярной оси z . Заряд $Z = 1$ для молекулы H_2^+ . Для ядер с большими зарядами приближение точечного ядра уже неприменимо, так как такое приближение приводит ко все возрастающей ошибке в расчетах с ростом заряда ядра Z из-за сингулярности волновой функции на ядрах квазимолекулы. Потенциал взаимодействия определяется распределением ядерного заряда $\rho_n(\mathbf{r})$:

$$U(\mathbf{r}) = - \int d^3r' \frac{\rho_n(\mathbf{r}' + \mathbf{a})}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} - \int d^3r' \frac{\rho_n(\mathbf{r}' - \mathbf{a})}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}. \quad (2.20)$$

В данной работе используется сферически симметричное распределение Ферми для описания распределения плотности заряда ядра [83]:

$$\rho_n(r) = \rho_0 \frac{1 + \exp[-r_0/b]}{1 + \exp[(r - r_0)/b]}. \quad (2.21)$$

Параметр b выбран равным $2.3/(4 \ln 3)$ фм [83], а параметры ρ_0 и r_0 рассчитываются по полному заряду ядра Z и экспериментальным значениям среднеквадратичного радиуса ядра [84]. Важной особенностью потенциала (2.20), с гладким распределением заряда ядра (2.21), является отсутствие кулоновской особенности в центрах ядер $r = \pm a$, поэтому дираковская волновая функция регулярна в этих точках.

2.3 Вид векторного потенциала

При изучении многофотонной ионизации используется линейно поляризованное лазерное поле и полагается, что векторный потенциал \mathbf{A} направлен вдоль оси z , которая параллельна молекулярной оси. В дипольном приближении лазерный импульс имеет Гауссов вид:

$$A(t) = \frac{cF_0}{\omega} \exp\left(-2 \ln 2 \frac{t^2}{\tau^2}\right) \sin(\omega t). \quad (2.22)$$

В формуле (2.22) F_0 — пиковая сила электрического поля, τ имеет смысл полной ширины на половине максимума (FWHM). При всех расчетах τ выбиралось равным:

$$\tau = 7.5 \frac{\pi}{\omega}. \quad (2.23)$$

Поэтому величина FWHM была равна 3.75 оптическим циклам. За рамками дипольного приближения векторный потенциал зависит как от времени, так и

от пространственных координат и векторный потенциал (2.22) следует модифицировать, используя следующую замену:

$$t \rightarrow t - \frac{x}{c}. \quad (2.24)$$

При такой подстановке векторный потенциал удовлетворяет волновому уравнению для электромагнитных полей в вакууме и описывает лазерный импульс, линейно поляризованный в направлении оси z и распространяющийся в направлении оси x . Как было показано в [57], наиболее важно сохранить пространственную зависимость огибающей импульса, поскольку недипольные эффекты, вызываемые огибающей импульса, обеспечивают доминирующий вклад в физические процессы за рамками дипольного приближения.

2.4 Численное решение нестационарного уравнения Дирака

На первом шаге энергии и волновые функции связанных состояний находятся из численного решения стационарного уравнения Дирака. Для численного решения стационарного уравнения Дирака используются методы, описанные в главе 1. Эволюция волновой функции во времени может быть описана двумя различными методами. Первый — метод сплит-оператора в энергетическом представлении [77], который так же используется и для решения нестационарного уравнения Шредингера [85, 86]. Используется следующая схема для описания эволюции волновой функции:

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}(t + \Delta t) = & \exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta t\tilde{H}_0\right) \times \\ & \exp\left(-i\Delta t\tilde{V}\left(t + \frac{1}{2}\Delta t\right)\right) \exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta t\tilde{H}_0\right) \tilde{\Psi}(t), \end{aligned} \quad (2.25)$$

где $\exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta t\tilde{H}_0\right)$ является свободным пропагатором. Свободный пропагатор может быть выражен через пропагаторы, соответствующие конкретным проекциям углового момента:

$$\exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta t\tilde{H}_0\right) \tilde{\Psi}(t) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp(im\phi) \exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta t\tilde{H}_0^m\right) \Psi^m(t). \quad (2.26)$$

Пропагатор $\exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta t\tilde{H}_0^m\right)$ ищется в виде спектрального разложения:

$$\exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta t\tilde{H}_0^m\right) = \sum_n \exp\left(-i\frac{1}{2}\Delta tE_n^{(m)}\right) |\tilde{\Psi}_n^{(m)}\rangle \langle \tilde{\Psi}_n^{(m)}|, \quad (2.27)$$

где волновые функции $\tilde{\Psi}_n^{(m)}$ и энергии $E_n^{(m)}$ находятся как решение задачи на собственные значения уравнения (2.17). Уравнение (2.26) очень полезно для расчетов за пределами дипольного приближения, где проекция углового момента не сохраняется: в матрично-векторном произведении это позволяет использовать несколько матриц меньшей размерности (частичные пропагаторы), а не одну матрицу большой размерности (полный пропагатор).

Пропагатор внешнего поля $\exp\left(-i\Delta t\tilde{V}\right)$ может быть представлен аналитически в виде:

$$\exp\left(-i\Delta t\tilde{V}\right) = \left\| \begin{array}{cc} \cos(A\Delta t) & \sin(A\Delta t)\sigma_z \\ -\sin(A\Delta t)\sigma_z & \cos(A\Delta t) \end{array} \right\|. \quad (2.28)$$

В координатном представлении, где угол дискретизирован на равномерной сетке, матрица квазидиагональна в том смысле, что состоит из четырех квадратных блоков, каждый из которых представляет собой диагональную матрицу. Пропагатор поля зависит от времени и должен рассчитываться на каждом временном шаге. Однако эта операция не требует много времени, так как матрица пропагатора является квазидиагональной. Перед применением частичных свободных пропагаторов на каждом временном шаге волновая функция должна быть преобразована из полного координатного представления в представление проекции углового момента. Эта процедура осуществляется с помощью быстрого преобразования Фурье по координате ϕ . Эта операция выполняется аппаратно-оптимизированными процедурами БПФ (быстрое преобразование Фурье) и не занимает много времени.

Другой метод основан на применении алгоритма Кранка-Николсон, который был использован в первой главе диссертации при решении уравнения Шредингера. Для уравнения Дирака эволюция волновой функции описывается следующим образом:

$$\begin{aligned} & \left[1 + \frac{i}{2}\Delta t\tilde{H} \left(t + \frac{1}{2}\Delta t \right) \right] \tilde{\Psi}(t + \Delta t) \\ & = \left[1 - \frac{i}{2}\Delta t\tilde{H} \left(t + \frac{1}{2}\Delta t \right) \right] \tilde{\Psi}(t), \end{aligned} \quad (2.29)$$

где $\tilde{H}(t) = \tilde{H} + \tilde{V}(t) - m_e c^2$ — полный зависящий от времени Гамильтониан без энергии покоя электрона. Расчет волновой функции на каждом временном шаге в этом методе включает не только умножение матрицы на вектор, но и решение системы линейных уравнений, поэтому он требует больше времени, чем в методе сплит-оператора. С другой стороны, когда большая энергия $m_e c^2$ удалена из верхней половины диагонали гамильтониана и переходы в континуум отрицательных энергий пренебрежимо малы, шаг по времени может быть сильно увеличен без потери точности расчета.

В дипольном приближении, где размерность полной матрицы гамильтониана сводится к размерности частичного гамильтониана для конкретного значения m , оказывается, что пропагатор Кранка-Николсон работает лучше для средних размеров матрицы, в то время как пропагатор в методе сплит-оператора более эффективен для больших матриц. За рамками дипольного приближения, оказывается выгоднее использовать метод сплит-оператора, так как метод Кранка-Николсон использует матрицу с полным Гамильтонианом, имеющим размерность в несколько раз превышающую размерность частичных Гамильтонианов. Для предотвращения нефизического отражения волновой функции от границ рассматриваемой области пространства, волновая функция снова умножается на масочную функцию, плавно уменьшающуюся до нулевого значения к границам области:

$$F(\xi) = \cos\left(\frac{\pi(\xi - R_m)}{2(R_b - R_m)}\right)^{1/4} \quad (R_b - R_m) \leq \xi \quad (2.30)$$

$$F(\xi) = 1 \quad 1 \leq \xi < (R_b - R_m),$$

где R_m — параметр, определяющий значение ξ при котором масочная функция начинает убывать. Умножение происходит на каждом временном шаге.

2.5 Результаты задачи на собственные значения уравнения Дирака.

Решение нестационарного уравнения Дирака (2.17) проводится в пространственной области, линейный размер которой ограничен значением $50/Z$ а.е. для квазимолекулы с зарядом ядра Z . Численные расчеты демонстрируют, что такой размер пространственной области оказывается достаточен для правильного описания динамики ионизации в лазерном поле в дальнейших нестационарных

расчетах. Классическое расстояние пробега электрона в лазерном поле можно оценить выражением F_0/ω^2 , это число значительно меньше $50/Z$ а.е. для всех квазимолекул и используемых параметров лазерного поля в данной главе. В расчетах используется умеренное количество точек коллокации: 70 точек для координаты ξ и 32 точки для координаты η , чтобы сделать возможными последующие нестационарные вычисления с частичными пропагаторами. Линейная размерность частичной матрицы гамильтониана для любого m равна 8960. Собственные значения энергии нескольких первых связанных состояний оказываются достаточно точными. Например, погрешность расчета собственных значений H_2^+ с $m = 0$, приведенных в таблице 2.1, оценивается как 10^{-10} а.е. Для оценки сходимости собственных значений был проведен еще один расчет с большим количеством точек коллокации (96 точек для ξ и 48 точек для η). Полученные результаты сравниваются с результатами из литературы. Во всех расчетах используется скорость света $c = 137.035999139$ а.е. (2014 г. Рекомендуемая CODATA обратная константа тонкой структуры).

Хорошо известно, что численное решение стационарного уравнения Дирака с использованием разложений по базисным наборам приводит к появлению шпуриозных собственных состояний среди истинных связанных состояний в дискретной области спектра [87]. Для устранения таких нежелательных состояний были предложены различные методы, от наложения специальных граничных условий [88, 89] до использования кинетически сбалансированных базисных наборов. Однако шпуриозные состояния не появляются, когда используются обобщенные псевдоспектральные методы в вытянутых сфероидальных координатах для решения задачи Дирака на собственные значения с числовыми параметрами, используемыми в расчетах этой главы, по крайней мере, среди первых 35 связанных состояний (из-за конечного размера пространственной области, высоковозбужденные связанные состояния в любом случае не могут быть точными). Энергии, перечисленные в таблице 2.1, представляют собой фрагмент последовательных собственных значений, возвращаемых вычислительной программой без каких-либо действий по удалению ложных состояний. То же верно и для расчетов атомарного водорода в вытянутых сфероидальных координатах, в отличие от расчетов в сферических координатах, где некоторые собственные значения дублируются из-за наличия ложных состояний. Ранее об отсутствии

Таблица 2.1: Энергии основного и низколежащих возбужденных состояний H_2^+ (в а.е.) для проекции полного углового момента $M = 1/2$ при $R = 2$ а.е. А – расчет с сеткой 70×32 ; В – расчет с сеткой 96×48 ; С – другие расчеты. Все результаты получены для точечных ядер.

Состояние	А	В	С
$1\sigma_g$	-1.1026415810753	-1.1026415810315	-1.102641581032 [90]
			-1.1026415810336 [91]
$1\sigma_u$	-0.6675527720388	-0.6675527719950	-0.667552771996 [92]
			-0.6675527719955 [91]
$1\pi_u$	-0.4287811602120	-0.4287811602141	-0.428781160 [93]
			-0.4287811584 [94]
$2\sigma_g$	-0.3608710705821	-0.3608710705758	-0.3608710705784 [91]
			-0.3608710695 [94]
$2\sigma_u$	-0.2554197047559	-0.2554197047496	-0.255419705 [93]
			-0.2554197033 [94]
$3\sigma_g$	-0.23578126845559	-0.2357812684555	-0.2357812681 [94]

ложных состояний в двухцентровых кулоновских системах, обработанных кинетически сбалансированными базисными наборами В-сплайнов в вытянутых сфероидальных координатах, сообщалось в работе [94].

2.6 Нерелятивистское масштабирование и релятивистские эффекты в квазимолекулах

Нестационарное уравнение Шредингера допускает масштабирование по параметру заряда ядра Z таким образом, что результат численных расчетов взаимодействия вещества с внешним полем останется неизменным для любого заряда ядра Z [95]. Для квазимолекул такое масштабирование пространственных и временных переменных, а также параметров импульса в уравнении, преобразует уравнение для квазимолекулы с ядерными зарядами Z в уравнение для H_2^+ ($Z = 1$). Такое нерелятивистское масштабирование выполняется следующим преобразованием параметров системы:

$$\begin{aligned}
r &= \tilde{r}/Z, & R &= \tilde{R}/Z, \\
t &= \tilde{t}/Z^2, & \omega &= \tilde{\omega}Z^2, \\
F_0 &= \tilde{F}_0Z^3.
\end{aligned}
\tag{2.31}$$

Переменные и параметры с тильдой соответствуют квазимолекуле с зарядом ядер $Z = 1$, то есть молекуле H_2^+ . Точное масштабирование по заряду ядра не выполняется для релятивистских систем, описываемых уравнением Дирака, хотя были предложены некоторые приближенные соотношения [52]. Строго говоря, масштабирование (2.31) не выполняется точно даже для нестационарного уравнения Шредингера, если взаимодействие электрона с ядрами описывается в рамках модели конечного ядра, а не чисто кулоновским потенциалом. Однако, из-за большой разницы между масштабом ядра и расстоянием от электрона до ядра, влияние конечного размера ядра на электронное движение очень мало. Даже для самого тяжелого ядра, используемого в расчетах ($Z = 92$), относительный сдвиг энергетического уровня основного электронного состояния, из-за использования объемного распределения заряда ядра, не превышает 10^{-4} , поэтому отклонение результата в нерелятивистском случае, вызванное конечным размером ядра, незначительно.

Как правило, любое различие между предсказаниями нестационарного уравнения Дирака и соответствующими результатами нестационарного уравнения Шредингера для одной и той же системы можно объяснить релятивистскими эффектами. Как обсуждалось в [52], для многофотонной ионизации водородоподобных ионов основным эффектом является сдвиг потенциала ионизации, который становится больше в релятивистском случае. Для квазимолекул этот сдвиг зависит еще и от межъядерного расстояния. На рисунке 2.1 показана масштабированная разность релятивистских и нерелятивистских энергий основного состояния $1\sigma_g$ для нескольких квазимолекул, использованных в расчетах. Для квазимолекул с $Z \neq 1$ нерелятивистские энергии рассчитываются по данным для молекулы H_2^+ с помощью масштабирования (2.31), без учета конечного размера ядра. Поэтому разность энергий, показанная на рисунке 2.1, включает в себя как поправки, связанные с релятивистскими эффектами, так и с моделью конечного ядра. Однако, как было сказано ранее, последняя поправка мала и ею можно пренебречь для всех квазимолекул, используемых в

расчетах. Для H_2^+ релятивистская поправка также мала и разница энергий не видна на рисунке 2.1. Для более тяжелых квазимолекул разница между релятивистской и нерелятивистской энергиями основного состояния постепенно увеличивается с ростом заряда ядра Z . Эта разница становится больше на меньших межъядерных расстояниях, где релятивистский уровень энергии основного состояния приближается к отрицательной границе континуума, если заряд ядра Z достаточно велик. В пределе $R \rightarrow 0$, когда два ядра сливаются в одно ядро с зарядом $2Z$, заряд ядра может превышать значение ≈ 170 . При таком критическом значении заряда ядра уровень энергии основного состояния оказывается лежащем в отрицательном континууме. Вследствие чего, происходит спонтанное рождение электрон-позитронной пары [96].

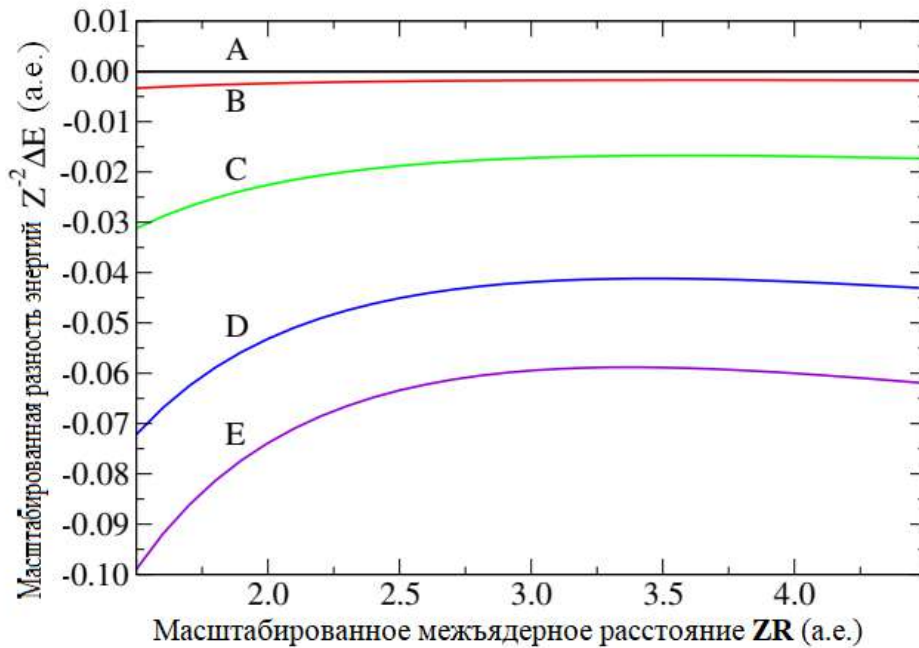


Рис. 2.1: Масштабированная разность между релятивистской и нерелятивистской энергиями основного состояния $1\sigma_g$ для нескольких одноэлектронных гомоядерных квазимолекул с ядерным зарядом Z : (A), $Z=1$; (B), $Z=18$; (C), $Z=54$; (D), $Z=80$; (E), $Z=92$.

2.7 Многофотонная ионизация квазимолекул в дипольном приближении

Для относительно низких несущих частот, когда длина волны значительно превышает размер молекулы, дипольное приближение вполне оправдано. В данном разделе представлены результаты расчетов многофотонной ионизации

для нескольких квазимолекул в зависимости от межъядерного расстояния (масштабированные межъядерные расстояния ZR варьируются в интервале от 2 до 4 а.е.). Во всех расчетах квазимолекулы изначально находятся в основном $1\sigma_g$ электронном состоянии, а электрическое поле лазера линейно поляризовано вдоль оси молекулы. Для H_2^+ длина волны несущей выбрана равной 248 нм ($\omega = 0.1837$ а.е.), а пиковая интенсивность составляет 5×10^{14} Вт/см². Для других квазимолекул используются масштабированные параметры поля, как обсуждалось выше. Лазерный импульс имеет вид, представленный уравнением (2.22). Общее время распространения составляет 15 оптических циклов (от -7.5 до 7.5 оптического цикла). Вероятность ионизации P_i может быть представлена в виде:

$$P_i = 1 - P_b, \quad (2.32)$$

где P_b — заселенность связанных состояний в конце процесса эволюции волновой функции во внешнем поле. В этом расчете используется пропагатор Кранка-Николсон с 512 шагами в одном оптическом цикле. Было обнаружено, что при используемой в расчетах размерности матрицы 8960 метод Кранка-Николсон более эффективен, чем метод сплит-оператора, где для получения результата с той же точностью необходимо использовать 65536 временных шагов за оптический цикл.

При изменении масштабированного межъядерного расстояния ZR от 2 до 4 а.е. вертикальный потенциал ионизации квазимолекулы постепенно уменьшается. При масштабированной лазерной частоте $Z^{-2}\omega=0.1837$ а.е. для ионизации требуется поглощение, по крайней мере, 7 фотонов для всех рассматриваемых квазимолекул при межъядерном расстоянии $ZR = 2$ а.е. При $ZR = 4$ а.е. для попадания в континуум ($E>0$) достаточно поглощения 5 фотонов, поэтому порог 6-фотонной и 5-фотонной ионизации оказывается пройден, когда масштабированное межъядерное расстояние ZR изменяется от 2 до 4 а.е. Положение 6-фотонного порога ионизации варьируется от $ZR = 2.01$ а.е. для $Z = 1$ до $ZR = 2.25$ а.е. для $Z = 92$, тогда как соответствующий интервал ZR для 5-фотонного порога равен 2.95 – 3.40 а.е. Можно ожидать, что вероятность ионизации возрастает по мере уменьшения потенциала ионизации и минимального числа фотонов, необходимого для ионизации. Расчеты, проведенные в данной главе диссертации, представленные на рисунке 2.2, в целом, подтверждают это

предположение: при $ZR = 2$ а.е. вероятности ионизации не превышают 0.02, а при $ZR = 4$ а.е. они в 20 – 35 раз больше. Оценить релятивистские эффекты при многофотонной ионизации можно по отклонению вероятности ионизации разных квазимолекул друг от друга при фиксированном значении ZR : в нерелятивистском случае они были бы одинаковыми благодаря точному масштабированию. Расчеты подтверждают предположение, что релятивистские эффекты менее важны для более легких ядер. Вероятности ионизации H_2^+ и Ar_2^{35+} очень близки друг к другу для ZR в интервале от 2 до 3.25 а.е. Разница становится несколько больше для ZR между 3.5 и 4 а.е. Для $Z = 54$ отклонение от вероятностей ионизации квазимолекулы H_2^+ более выражено. Из рисунка 2.3 видно, что результаты для $Z = 80$ и $Z = 92$ сильно отличаются друг от друга и от результатов, полученных для H_2^+ . При некоторых масштабированных межъядерных расстояниях ZR разница может превышать 100%, поэтому релятивистские эффекты очень важны для одноэлектронных квазимолекул с сильно заряженными ядрами. Одним из очевидных эффектов является релятивистское смещение уровня энергии основного состояния в сторону уменьшения энергии, которое тем больше, чем больше Z . Из-за этого эффекта потенциал ионизации увеличивается, и квазимолекулы с более высоким зарядом ядра демонстрируют более низкие вероятности ионизации, как можно видеть на рисунке 2.2. Релятивистский характер динамики электронов в квазимолекулах связан не только с воздействием кулоновского поля ядер, но и с воздействием внешнего поля. Пиковое значение классического импульса электрона в лазерном поле можно грубо оценить значением F_0/ω . Для H_2^+ эта величина примерно равна 0.65 а.е., что, в сравнении со скоростью света, очень мало. Однако значение скорости увеличивается с ростом заряда ядра Z (из уравнения (2.31) следует, что пиковое значение скорости пропорционально Z) и достигает значения 60 а.е. при $Z = 92$. Эта грубая оценка указывает на релятивистский характер движения электрона, индуцированного внешним электромагнитным полем, для квазимолекул с сильно заряженными ядрами.

Другой эффект, наблюдаемый на рисунке 2.2, связан со сдвигом резонансной частоты в релятивистском случае. Гомоядерные одноэлектронные квазимолекулы представляют собой квантовые системы, в которых основное $1\sigma_g$ и первое возбужденное $1\sigma_u$ состояния могут стать почти вырожденными при больших

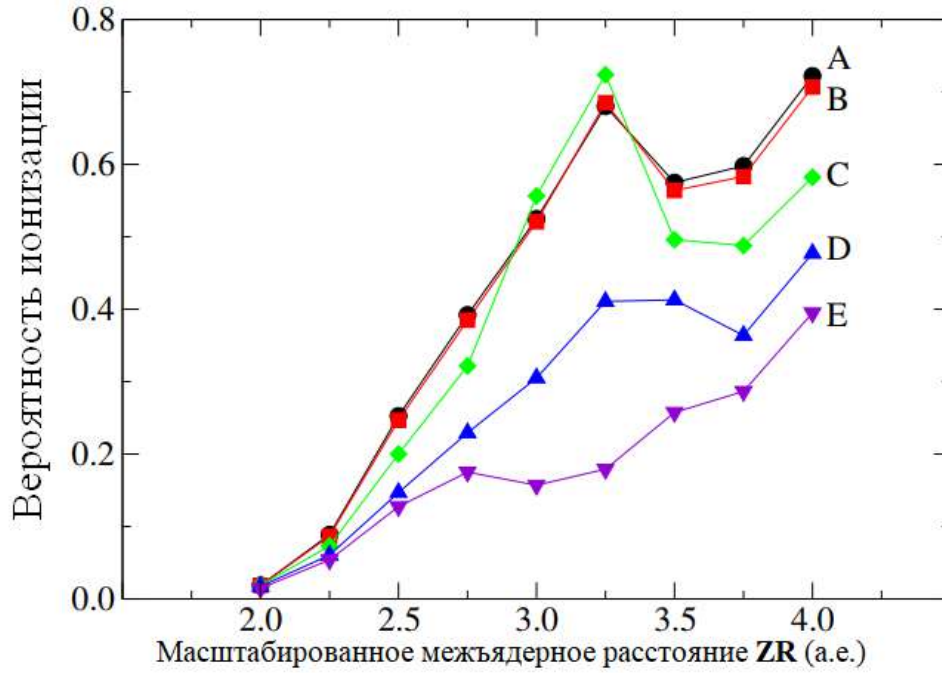


Рис. 2.2: Вероятности ионизации одноэлектронных гомоядерных квазимолекул с зарядом ядра Z в зависимости от масштабированного межъядерного расстояния ZR : (A), $Z = 1$; (B), $Z = 18$; (C), $Z = 54$; (D), $Z = 80$; (E), $Z = 92$. Для H_2^+ длина волны лазерного импульса 248 нм, пиковая интенсивность 5×10^{14} Вт/см²; для других молекул параметры масштабируются согласно (2.31).

межъядерных расстояниях с сильной дипольной связью между ними (эффект зарядового резонанса [97]). Этот эффект наблюдается на рисунке 2.2 в окрестности $ZR = 3.25$ а.е. для квазимолекул с $Z = 1, 18$ и 54 . Этот максимум (на графике) вероятности ионизации обусловлен однофотонным резонансом между состояниями $1\sigma_g$ и $1\sigma_u$. Этот максимум менее выражен при $Z = 80$ и отсутствует при $Z = 92$. Релятивистские эффекты могут быть ответственны за исчезновение резонанса в более тяжелых квазимолекулах, поскольку в нерелятивистском случае положение резонанса должно быть одинаковым для всех масштабированных систем. На рисунке 2.3 показана масштабированная разность энергий между состояниями $1\sigma_u$ и $1\sigma_g$ в зависимости от масштабированного межъядерного расстояния ZR . Для H_2^+ однофотонный резонанс соответствует $ZR = 3.18$ а.е., что хорошо согласуется с положением максимума на рисунке 2.2. Для $Z = 18$ сдвиг резонансной частоты незначителен, поэтому положение максимума не меняется. Несколько удивительным результатом является то, что максимум вероятности ионизации все же приходится на $ZR = 3.25$ а.е. для $Z = 54$, хотя резонансная частота соответствует расстоянию $ZR = 3.03$ а.е. Это может быть

объяснено следующим образом. При $ZR = 3.03$ а.е. для ионизации по-прежнему требуется поглощение 6 фотонов для $Z = 54$ (5-фотонный порог соответствует $ZR = 3.07$ а.е.), поэтому вероятность ионизации для $Z = 54$ (см. данные при $ZR = 3$ а.е. на рисунке 2.2) не достигает своего максимума, хотя и превышает вероятности для $Z = 1$ и $Z = 18$. Максимум наблюдается при $ZR = 3.25$ а.е. где резонанс еще близок, но ионизация происходит значительно выше пяти фотонного порога. Для $Z = 80$ положение резонанса находится на $ZR = 2.84$ а.е. а пяти фотонный порог расположен на $ZR = 3.25$ а.е. Резонанс лежит значительно ниже порога в области шести фотонной ионизации и не оказывает существенного влияния на динамику ионизации. Аналогичная ситуация имеет место для $Z = 92$, где резонанс и пяти фотонный порог расположены на $ZR = 2.71$ а.е. и $ZR = 3.40$ а.е. соответственно. Однако для этой квазимолекулы виден слабый резонансный максимум при $ZR = 2.75$ а.е.

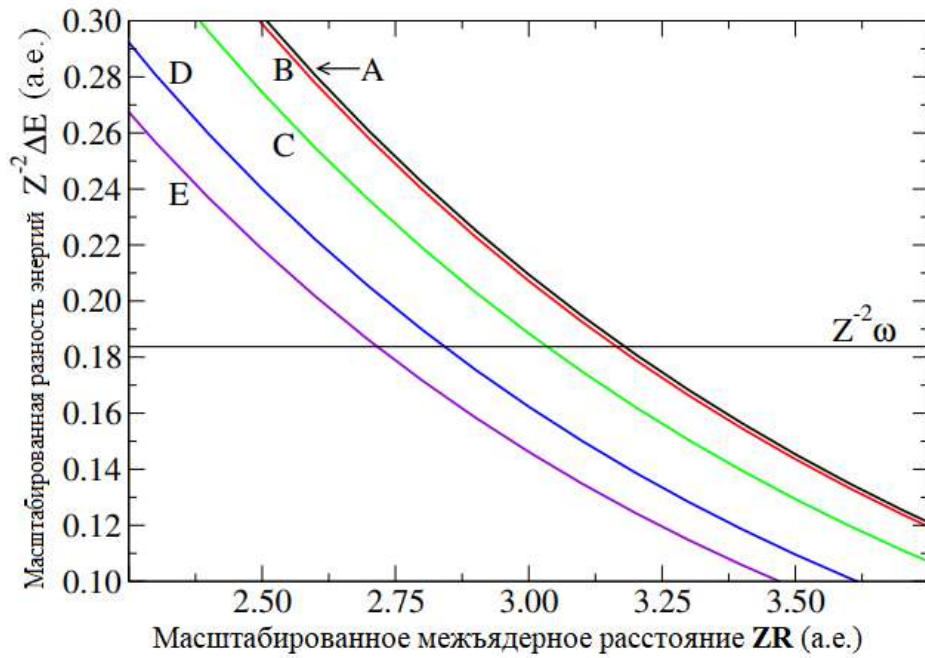


Рис. 2.3: Масштабированная разность между релятивистскими энергиями состояний $1\sigma_u$ и $1\sigma_g$ для нескольких одноэлектронных гомоядерных квазимолекул с ядерным зарядом Z : (A), $Z = 1$; (B), $Z = 18$; (C), $Z = 54$; (D), $Z = 80$; (E), $Z = 92$. Горизонтальная линия $Z^{-2}\omega$ соответствует масштабированной частоте лазера

2.8 Нелинейная ионизация за пределами дипольного приближения

В этом разделе кратко обсуждаются недипольные эффекты при ионизации квазимолекул сильными лазерными импульсами, которые могут стать существенными при относительно высоких несущих частотах. Используется та же гауссова форма лазерного импульса, как описано в уравнениях (2.22). Учет зависимости векторного потенциала от координат осуществляется с помощью следующей замены:

$$t \rightarrow \left(t - \frac{x}{c}\right) = \Phi/\omega, \quad (2.33)$$

где Φ — фаза поля. При масштабировании параметров, согласно (2.31), временная часть ωt выражения (2.22) остается инвариантной, а пространственная часть $\frac{\omega x}{c}$ умножается на Z . Следовательно, взаимодействие с электромагнитным полем за рамками дипольного приближения нарушает инвариантность относительно нерелятивистского масштабирования (2.31), даже если динамика системы существенно нерелятивистская, то есть описывается уравнением Шредингера, точно инвариантным относительно преобразования (2.31) в дипольном приближении. Для рассматриваемого набора масштабированных квазимолекул недипольные эффекты тем значительнее, чем больше заряд ядра Z . В предшествующих исследованиях [57, 68] для численной реализации требовалось разделение пространственной и временной зависимости в векторном потенциале с помощью разложения Фурье по Φ , либо разложения в ряд Тейлора по степеням x . Однако с увеличением напряженности поля такой подход может потребовать включения все большего количества членов разложения для достижения сходимости [54]. В методе, используемом в данной работе, этого не требуется для векторного потенциала, и он может быть использован без всяких разложений. Координата x , выраженная в вытянутых сфероидальных координатах, зависит от азимутального угла ϕ :

$$x = a\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)} \cos \phi \quad (2.34)$$

Этот угол дискретизируется на равномерной сетке в интервале $[0, 2\pi]$. Количество узлов сетки ϕ равно числу проекций углового момента, оставшихся в волновой функции (2.14). Таким образом, точность представления векторного потенциала контролируется количеством используемых проекций углового мо-

мента. Если недипольные поправки не очень велики, обычно для сходимости достаточно нескольких компонент волновой функции (2.14).

В качестве примера недипольных эффектов в квазимолекулах были проведены расчеты для H_2^+ и для Ar_2^{35+} при частоте лазерного поля $\omega = 3.5$ а.е., недавно использованной в релятивистских расчетах атома водорода [57, 68] и пиковым значением $F_0 = 40$ а.е. и межъядерным расстоянием $R = 2$ а.е. Для Ar_2^{35+} параметры соответствующим образом масштабировались. В этом расчете применялся метод сплит-оператора с 65536 шагами по времени в оптическом цикле с 15 оптическими циклами (от -7.5 до 7.5 оптического цикла). Рисунок 2.4 демонстрирует заселенность связанных состояний $P_b(t)$ в случае дипольного приближения и в случае, когда осуществляется выход за его рамки. Здесь интересно увидеть, как разница между результатами дипольного приближения (DA) и полного взаимодействия с включенными проекциями $|m| \leq 1$ (F1) или $|m| \leq 3$ (F3) нарастает во времени. Результаты расчетов в дипольном приближении для H_2^+ и Ar_2^{35+} отличаются друг от друга гораздо сильнее, чем в случае многофотонной ионизации, как видно из рисунка 2.4, и вероятность ионизации Ar_2^{35+} больше, чем вероятность ионизации H_2^+ в отличие от тенденции, наблюдаемой на рисунке 2.2. Все дело в том, что при выбранных параметрах поля релятивистские эффекты, вызываемые внешним полем, гораздо сильнее для Ar_2^{35+} . Для этой квазимолекулы пиковое значение скорости классического электрона, колеблющегося в поле, превышает скорость света, что указывает на ультрарелятивистский режим. Для H_2^+ эта скорость составляет около $v = 0.08c$.

Для H_2^+ недипольные эффекты довольно малы, как видно на рисунке 2.4. Разница между результатами для полного взаимодействия с включенными проекциями (F1) и (F3) не видна даже при увеличении, показанном на вставке. Можно заключить, что расчеты с полным взаимодействием в этом случае хорошо сходятся уже на уровне (F1). Однако для Ar_2^{35+} ситуация резко меняется. Если для первых трех оптических циклов расхождение между (DA) с одной стороны и (F1), (F3) с другой еще незначительно, то на более поздних временах оно быстро увеличивается, приводя к почти полной ионизации к середине лазерного импульса, если взаимодействие описывается за рамками дипольного приближения. Разница между (F1) и (F3) гораздо меньше и нарастает, когда

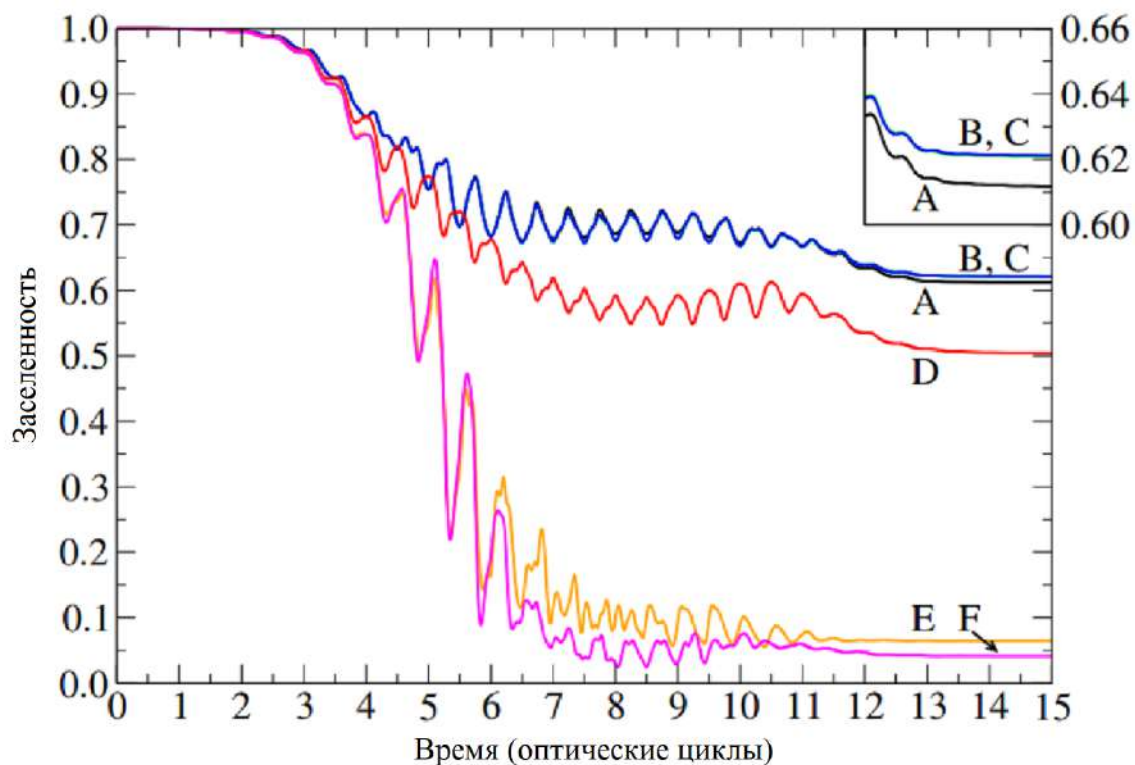


Рис. 2.4: Зависящая от времени заселенность связанных состояний для H_2^+ и Ar_2^{35+} . (A), (B), (C) — (DA), (F1), и данные (F3) для H_2^+ . (D), (E), (F) — данные (DA), (F1) и (F3) для Ar_2^{35+} соответственно. На вставке показаны данные H_2^+ , увеличенные по вертикали от значения заселенности 0.60 до 0.66 для последних 3 оптических циклов. Для H_2^+ несущая частота составляет 3.5 а.е. и пиковая напряженность поля составляет 40 а.е. Для Ar_2^{35+} используются масштабированные параметры поля.

поле становится еще сильнее, начиная с пятого оптического цикла. Во второй половине импульса картина качественно не меняется. Вероятность ионизации достигает 93,5 % (F1) или 96 % (F3) при использовании полного взаимодействия, а в дипольном приближении не превышает 50 %. Сильные недипольные эффекты в Ar_2^{35+} способствуют ионизации этой квазимолекулы: вероятность ионизации, рассчитанная за рамками дипольного приближения, значительно больше, чем в дипольном приближении. Напротив, для H_2^+ слабые недипольные эффекты приводят к относительной стабилизации. Вероятности ионизации (F1) и (F3) лишь немного меньше результата (DA) для молекулы H_2^+ . Контраст между результатами для масштабированного H_2^+ и Ar_2^{35+} легко объясним. В случае H_2^+ векторный потенциал лазерного поля из-за своей пространственной зависимости меняет знак на расстоянии около 120 а.е., что значительно превышает размер молекулы, оцениваемый по межъядерному расстоянию $R = 2$ а.е. Для Ar_2^{35+} , при таком же масштабированном межъядерном расстоянии $ZR = 2$ а.е., векторный потенциал меняет знак на масштабном расстоянии около 7 а.е., сравнимом с размером электронного волнового пакета. Огибающая импульса в пространстве, относительно масштабной координаты Zx , также в 18 раз уже, чем в случае H_2^+ . Это означает, что внешнее поле существенно неоднородно даже для электрона в начальном основном состоянии. Затем различные части электронного волнового пакета испытывают противоположные силы и смещаются в противофазе, способствуя необратимым переходам в связанные и континуальные состояния с более высокой энергией.

2.9 Итоги главы 2

В данной главе диссертации разработан метод расчета взаимодействия одноэлектронных гомоядерных квазимолекул для релятивистского уравнения Дирака во внешнем поле высокой интенсивности. Было обнаружено, что при решении задачи на поиск собственных значений нестационарного уравнения Дирака в сфероидальной системе координат не возникают шпурриозные состояния, по крайней мере, среди низколежащих связанных состояний, поэтому не требуется дополнительных усилий для их удаления. Проведен анализ релятивистских и недипольных эффектов для различных квазимолекул и параметров внешнего

поля, подвергающихся масштабированию по заряду ядра. Отклонение результатов для масштабированного релятивистского расчета от масштабированного нерелятивистского расчета указывает на роль релятивистской динамики и важность описания взаимодействия с внешним полем за пределами дипольного приближения. Один из хорошо известных релятивистских эффектов многофотонной ионизации, общий для атомарных и молекулярных ионов, заключается в уменьшении вероятности ионизации с увеличением заряда ядра из-за релятивистского углубления энергетического уровня основного состояния. Квазимолекулы обладают большим количеством степеней свободы по сравнению с атомами и атомарными ионами, что открывает новые возможности для исследований. Например, при изменении межъядерного расстояния можно настроить частоту перехода между двумя конкретными электронными состояниями в резонанс с несущей частотой лазерного импульса. При таких межъядерных расстояниях ионизация может быть значительно усилена.

В отличие от релятивистских эффектов, которые могут быть существенными даже при низких масштабированных частотах и умеренных пиковых интенсивностях, недипольные эффекты становятся более заметными на высоких масштабированных частотах. Для квазимолекул наблюдается рост недипольных поправок к вероятности ионизации с увеличением заряда ядра. Расчеты при несущей частоте 3.5 а.е. и пиковой напряженности поля 40 а.е. показывают, что разница между дипольным приближением и результатами полного взаимодействия для H_2^+ еще незначительна, в то время как для Ar_2^{35+} дипольное приближение приводит к неверным результатам. Можно ожидать, что для квазимолекул с более высокими ядерными зарядами дипольное приближение так же нарушается.

Глава 3. Влияние фазы электромагнитного поля на процессы ионизации и переноса заряда при столкновениях протона с атомом водорода во внешнем поле

В данной главе диссертации исследуется влияние фазы и интенсивности лазерного поля, линейно поляризованного в плоскости столкновения, на процесс ионизации и переноса заряда симметричной сталкивающейся системы $\text{H}-\text{H}^+$. Динамика столкновения исследуется с помощью нестационарного уравнения Шредингера, которое изначально записывается в системе центра масс. Затем осуществляется переход в неинерциальную вращающуюся систему отсчета, что приводит к появлению дополнительных слагаемых в гамильтониане, учитывающих вращение. Скорость налетающего протона выбрана достаточно низкой ($v_0 = 0.1$ а.е., что соответствует энергии 0.25 кэВ). Основной целью было получение зависимости вероятности переноса заряда $P_{ct}(b)$ (b — прицельный параметр), вероятности ионизации $P_i(b)$, вычисление сечений захвата электрона σ_{ct} для различных параметров поля. Расчеты проводились при напряженностях поля 1×10^{12} Вт/см² и 1×10^{13} Вт/см² для частоты 0.01 а.е. и 5×10^{14} Вт/см² для частоты 2 а.е. При интенсивности 1×10^{12} Вт/см² вероятность ионизации невелика (не превышает нескольких процентов), а при интенсивности 1×10^{13} Вт/см² ожидается значительная ионизация для малых прицельных параметров на низкой частоте 0.01 а.е. Относительно фазы внешнего поля можно ожидать, что динамика переноса заряда существенно зависит от фазы в низкочастотном случае и, наоборот, при высоких частотах фаза поля не играет существенной роли. Полученные результаты сравниваются со случаем столкновения в отсутствии поля.

3.1 Учет движения налетающего протона в уравнении Шредингера при столкновении

Для корректного описания физических процессов центр неподвижной системы координат располагается в точке, совпадающей с центром масс системы двух ядер. В этой системе координат нестационарное уравнение Шредингера для электрона, взаимодействующего с ядрами и внешним полем, имеет вид:

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = [H_0 + V(\mathbf{r}, t)]\Psi(\mathbf{r}, t), \quad (3.1)$$

где H_0 — невозмущенный гамильтониан квазимолекулы, включающий оператор кинетической энергии и потенциал взаимодействия $U(\mathbf{r})$ электрона с ядрами:

$$H_0 = -\frac{1}{2}\nabla^2 + U(\mathbf{r}), \quad (3.2)$$

$$U(\mathbf{r}) = -\frac{Z_A}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_A|} - \frac{Z_B}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_B|}, \quad (3.3)$$

где Z_A , Z_B и \mathbf{R}_A , \mathbf{R}_B — заряды и радиус-векторы ядер соответственно. Операторы $U(\mathbf{r})$ и H_0 зависят от времени через радиус-векторы движущихся ядер. Оператор $V(\mathbf{r}, t)$ описывает взаимодействие электрона с внешним электромагнитным полем. В задаче о перезарядке рассматривается электромагнитное поле в дипольном приближении в калибровке скорости, поэтому оператор взаимодействия принимает вид:

$$V(\mathbf{r}, t) = -i(\mathbf{A} \cdot \nabla) + \frac{1}{2}A^2, \quad (3.4)$$

где векторный потенциал $\mathbf{A}(t)$ зависит от времени, но не зависит от координат.

Движение ядер описывается в рамках классической механики. При рассмотрении электрона в кулоновском поле ядер, траектории налетающей частицы и мишени гиперболические. Однако в случае столкновения $\text{H} - \text{H}^+$ мишень изначально нейтральна. В этом случае можно использовать приближение, когда налетающая частица и цель движутся с постоянными скоростями $-\frac{1}{2}\mathbf{v}_0$ и $\frac{1}{2}\mathbf{v}_0$ соответственно по прямолинейным траекториям. Плоскость столкновения перпендикулярна вектору момента импульса налетающей частицы и образована осями z_0 и x_0 (рисунке 3.1). При движении ядер (мишень А и налетающая частица В на рисунке 3.1) молекулярная ось (обозначенная как z) вращается в плоскости $z_0 - x_0$. В данной главе движение ядер рассматривалось на симметричном интервале времени $[-t_0, t_0]$, от начального межъядерного расстояния

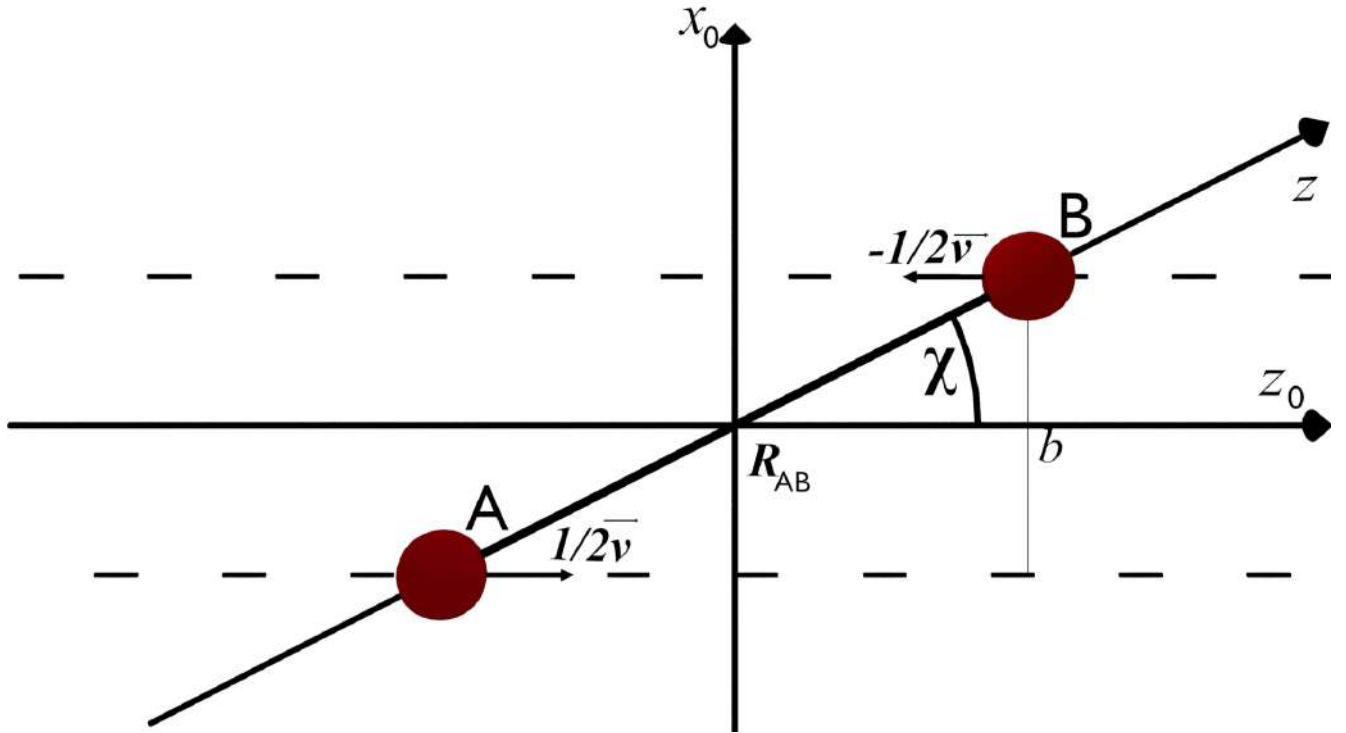


Рис. 3.1: Столкновение налетающей частицы В (протон) с мишенью А (атом водорода) в системе центра масс. Показаны неподвижные оси z_0 и x_0 и вращающаяся молекулярная ось z . Другие обозначения: b — прицельный параметр, R_{AB} — межъядерное расстояние, χ — угол между z и z_0 .

$R_{AB}(t_0) = 40$ а.е. до момента, когда межъядерное расстояние вновь станет равным 40 а.е. Начальное межъядерное расстояние 40 а.е. достаточно велико, поэтому взаимодействие электрона, локализованного на мишени, с налетающей частицей пренебрежимо мало. Как было проверено в расчетах, увеличение начального межъядерного расстояния не приводит к изменению картины переноса заряда, а лишь увеличивает вероятность ионизации за счет увеличения времени взаимодействия системы с внешним электромагнитным полем. Положение налетающего протона определяется параметрами системы такими, как межъядерное расстояние R_{AB} и углом $\chi(t)$ между осями z и z_0 . Угловая скорость $\omega(t) = \dot{\chi}(t)$ может быть вычислена следующим образом:

$$\omega(t) = \frac{v_0 b}{b^2 + v_0^2 t^2}, \quad (3.5)$$

где b — прицельный параметр столкновения. Начальное значение межъядерного расстояния $R_{AB}(t_0)$, прицельный параметр b , скорость протона v_0 и время t_0

связаны между собой следующим соотношением:

$$R_{AB}^2(t_0) = (v_0 t_0)^2 + b^2, \quad (3.6)$$

Нестационарное уравнение Шредингера удобно решать для двухатомной квази-молекулы в молекулярной системе отсчета, где в качестве оси z выбрана межъядерная ось, а ось x лежит в плоскости столкновения, ось y перпендикулярна плоскости столкновения. Однако молекулярная система отсчета вращается вокруг оси y , поэтому она не инерциальна. Это обстоятельство приводит к появлению дополнительного члена в гамильтониане для зависящего от времени уравнения Шредингера (3.1) в молекулярной системе отсчета [98]. В молекулярной системе координат преобразованный нестационарный гамильтониан H_{mcs} задается следующим соотношением:

$$H_{\text{mcs}} = H_0 - \omega(t)L_y + V(\mathbf{r}, t), \quad (3.7)$$

где L_y - оператор проекции углового момента на ось y (эта ось зафиксирована как в молекулярной, так и в инерциальной системах отсчета). В молекулярной системе снова используются вытянутые сфероидальные координаты, поскольку эти координаты полностью учитывают двухцентровую природу двухатомной квази-молекулярной системы. Параметр вытянутой сфероидальной системы координат $a(t)$ задает величину половины межъядерного расстояния: $R_{AB}(t) = 2a(t)$. Перед столкновением электрон локализован на мишени, поэтому волновая функция начального состояния электрона строится как линейная комбинация двух низших по энергии молекулярных орбиталей гамильтониана H_0 при $t = -t_0$, которыми являются состояния $1\sigma_g$ и $1\sigma_u$. Волновые функции этих состояний ищутся как решения стационарного уравнения Шредингера:

$$H_0(-t_0)\Psi_i(\mathbf{r}) = E_i\Psi_i(\mathbf{r}). \quad (3.8)$$

Так как начальное межъядерное расстояние (40 а.е.) для системы $\text{H}-\text{H}^+$ очень велико, то низшие состояния $1\sigma_g$ и $1\sigma_u$ почти вырождены. Суперпозиция этих состояний дает распределение электронной плотности, локализованное вокруг одного из ядер, что соответствует начальным условиям задачи. Уравнения (3.1) и (3.8) решаются с помощью численных методов, описанных в главе

1. Поскольку параметр $a(t)$ зависит от времени, оказывается возможным либо использовать подвижную сетку при дискретизации координат в обобщенном псевдоспектральном методе, либо выполнить масштабное преобразование волновой функции перед решением уравнения (3.1), поэтому расстояние между центрами сфероидальной системы координат становится фиксированным. В настоящей работе применяется второй подход. Волновая функция $\Psi(\mathbf{r}, t)$ представляется следующим образом:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = [a(t)]^{-3/2} \tilde{\Psi}(\tilde{\mathbf{r}}, t), \quad (3.9)$$

$$\mathbf{r} = a(t) \tilde{\mathbf{r}}. \quad (3.10)$$

Масштабное преобразование (3.9) сохраняет норму волновой функции:

$$\int d^3r |\Psi(\mathbf{r}, t)|^2 = \int d^3\tilde{r} |\tilde{\Psi}(\tilde{\mathbf{r}}, t)|^2. \quad (3.11)$$

Согласно определению (3.10), расстояние между центрами сфероидальной системы координат для масштабированных координат $\tilde{\mathbf{r}}$ будет фиксировано в любой момент времени. В данной работе оно было выбрано равным 2 а.е. При подстановке волновой функции в форме (3.9) в уравнение (3.1), к гамильтониану добавляется еще одно слагаемое. Новый гамильтониан \tilde{H}_{mcs} и нестационарное уравнение для волновой функции $\tilde{\Psi}(\tilde{\mathbf{r}}, t)$ могут быть записаны в следующей форме:

$$\begin{aligned} \tilde{H}_{\text{mcs}} = & -\frac{1}{2a^2(t)} \nabla_{\tilde{\mathbf{r}}}^2 - \frac{Z_A}{a(t)|\tilde{\mathbf{r}} + \mathbf{e}_z|} \\ & - \frac{Z_B}{a(t)|\tilde{\mathbf{r}} - \mathbf{e}_z|} - \omega(t)L_y + V(a(t)\tilde{\mathbf{r}}, t) \\ & + i \frac{\dot{a}(t)}{a(t)} \left(\frac{3}{2} + \tilde{\mathbf{r}} \cdot \frac{\partial}{\partial \tilde{\mathbf{r}}} \right), \end{aligned} \quad (3.12)$$

$$i \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\Psi}(\tilde{\mathbf{r}}, t) = \tilde{H}_{\text{mcs}}(\tilde{\mathbf{r}}, t) \tilde{\Psi}(\tilde{\mathbf{r}}, t). \quad (3.13)$$

Первые три члена в правой части (3.12) представляют оператор кинетической энергии и потенциал взаимодействия U электрона с ядрами. Последнее слагаемое в (3.12) возникает из-за масштабирования по параметру $a(t)$, где:

$$\tilde{\mathbf{r}} \cdot \frac{\partial}{\partial \tilde{\mathbf{r}}} = \frac{1}{\xi^2 - \eta^2} \left(\xi(\xi^2 - 1) \frac{\partial}{\partial \xi} + \eta(1 - \eta^2) \frac{\partial}{\partial \eta} \right). \quad (3.14)$$

И наконец, оператор проекции углового момента L_y имеет следующий вид в сфероидальных координатах:

$$L_y = -i \frac{\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)} \cos \varphi}{\xi^2 - \eta^2} \left(\eta \frac{\partial}{\partial \xi} - \xi \frac{\partial}{\partial \eta} \right) + i \frac{\xi \eta \sin \varphi}{\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)}} \frac{\partial}{\partial \varphi}. \quad (3.15)$$

Уравнение решается внутри пространственной области с линейным размером R_b . Значение R_b выбирается из тех же соображений, что и в главе 1. Расчеты проводились при $R_b = 80$ а.е. для исходных, не масштабированных, координат \mathbf{r} . Это допустимо для используемых параметров внешнего поля. Для масштабированных координат $\tilde{\mathbf{r}}$ значения \tilde{R}_b можно найти по формуле преобразования (3.10), для наименьшего значения $a(t)$ во время столкновения. В данной главе диссертации считается, что внешнее электромагнитное поле линейно поляризовано вдоль фиксированной оси z_0 . В произвольный момент времени t , вектор поляризации направлен под углом $\chi(t)$ к оси молекулы z , как показано на рисунке 3.1. Векторный потенциал $\mathbf{A}(t)$ задается следующим соотношением:

$$\mathbf{A}(t) = -\frac{F_0}{\omega_0} \cos(\omega_0 t + \phi) W(t) \mathbf{e}_{z_0}, \quad (3.16)$$

где F_0 — пиковая напряженность поля, ω_0 — несущая частота электромагнитной волны, ϕ — фаза поля при $t = 0$, то есть значение при максимальном сближении налетающей частицы и мишени. Множитель $W(t)$ представляет собой огибающую поля, которая используется для обеспечения плавного включения поля в момент времени $-t_0$ и выключения в момент времени t_0 . Функция $W(t)$ имеет вид:

$$\begin{aligned} W(t) &= \cos^2\left[4\pi\left(\frac{t}{t_0} + 0.875\right)\right] \quad (-t_0 \leq t < -0.875t_0), \\ W(t) &= 1 \quad (-0.875t_0 \leq t \leq 0.875t_0), \\ W(t) &= \cos^2\left[4\pi\left(\frac{t}{t_0} - 0.875\right)\right] \quad (0.875t_0 < t \leq t_0). \end{aligned} \quad (3.17)$$

Численные методы решения (3.13) были изложены в Главе 1. Здесь используется метод Кранка-Николсон для описания эволюции волновой функции во времени. В данной главе количество шагов по времени в используемом методе было равно $N = 2000$ для расчетов с прицельным параметром $b > 1.5$ а.е. и количество

шагов по времени $N = 3000$ для расчетов с прицельным параметром $b \leq 1.5$ а.е. Для предотвращения нефизических отражений электронного волнового пакета от границ пространственной области волновая функция на каждом временном шаге умножается на функцию маски $f(\xi)$, плавно стремящуюся к нулю внутри слоя между R_a и R_b на границе рассматриваемой области пространства:

$$\begin{aligned} f(\xi) &= \cos \left[\frac{\pi(a\xi - R_a)}{2(R_b - R_a)} \right]^{1/4} \quad (R_a \leq a\xi \leq R_b), \\ f(\xi) &= 1 \quad (a \leq a\xi \leq R_a). \end{aligned} \quad (3.18)$$

В данной главе расчеты проводились при параметре пограничного слоя $R_a=65$ а.е. В расчетах использовались следующие размеры сетки: количество точек коллокации по координате $\xi = 80$, по координате $\eta = 12$, по координате $\varphi = 7$ для прицельного параметра $b > 1.5$ а.е. Для меньших прицельных параметров использовались значения 120 точек по ξ , 16 по координате η и 7 по координате φ . Увеличение количества точек до 180 по координате ξ , до 24 точек по координате η и 9 точек по координате φ приводит к отклонению результата менее чем на 1%.

3.2 Вероятность переноса заряда

Электрон в момент времени t_0 , когда поле уже выключено, может оставаться в связанном состоянии на мишени, находиться в связанном состоянии на налетающей частице, а также переходить в несвязанное состояние с $E > 0$. В последнем случае части волнового пакета, достигающие при распространении пограничного слоя, будут поглощаться, что приводит к уменьшению нормы волновой функции. Квадрат нормы волновой функции в момент времени t_0 можно представить следующим образом:

$$\int \Psi^*(\tilde{\mathbf{r}}, t_0) \Psi(\tilde{\mathbf{r}}, t_0) d^3\tilde{r} = P_c + P_b, \quad (3.19)$$

где P_c — заселенность несвязанных состояний с положительными энергиями, волновой пакет которых к моменту времени t_0 еще не достиг поглощающего слоя и P_b — заселенность связанных состояний. Величина P_c оценивается путем проецирования волновой функции в момент времени t_0 на волновые функции

непрерывных состояний. Как показывают расчеты, эта величина всегда пренебрежимо мала. Это означает, что почти все свободные электроны достигают поглощающего слоя к моменту времени t_0 , поскольку время распространения достаточно велико из-за медленного движения ядер. Таким образом, ионизация системы с хорошей точностью определяется следующим выражением:

$$P_i = 1 - \int \Psi^*(\tilde{\mathbf{r}}, t_0) \Psi(\tilde{\mathbf{r}}, t_0) d^3\tilde{r}. \quad (3.20)$$

Вероятность захвата электрона налетающей частицей может быть представлена как интеграл от квадрата модуля волновой функции по полупространству, содержащему ядро налетающей частицы. В вытянутых сфероидальных координатах этот интеграл записывается следующим образом:

$$P_{ct} = \int_1^{\infty} d\xi \int_0^1 d\eta \int_0^{2\pi} d\varphi (\xi^2 - \eta^2) |\Psi(\tilde{\mathbf{r}}, t_0)|^2. \quad (3.21)$$

Если интегрирование по координате η в формуле (3.21) провести в диапазоне от -1 до 0 , то будет получена вероятность нахождения электрона на мишени. В случае значительной популяции P_c несвязанных состояний внутри ящика необходимо спроецировать волновую функцию $\Psi(\tilde{\mathbf{r}}, t_0)$ на подпространство связанных состояний ($E < 0$) гамильтониана в момент времени t_0 перед вычислением вероятности переноса заряда.

3.3 Основные результаты главы 3

Вероятность переноса заряда при столкновении $\text{H}-\text{H}^+$ определяется такими параметрами, как скорость налетающей частицы, прицельный параметр, частота и интенсивность лазерного поля, а также фаза поля в момент наибольшего сближения сталкивающихся частиц. Во расчетах этой главы энергия столкновения равна 0.25 кэВ, то есть скорость налетающей частицы v_0 равна 0.1 а.е. Прицельный параметр b пробегает диапазон значений от 0.125 а.е. до 8.5 а.е. с шагом $\Delta b = 0.125$ а.е., фаза ϕ принимает значения 0° , 90° , 180° и 270° градусов. Проведены расчеты для трех различных комбинаций частоты и интенсивности лазерного поля. В первой серии расчетов изучалось влияние низкоинтенсивного (1×10^{12} Вт/см²) и низкочастотного ($\omega = 0.01$ а.е.) поля на вероятность переноса заряда для различных фаз поля в момент наименьшего расстояния между

сталкивающимися частицами. Поскольку внешнее поле слабое, ионизация оказывается относительно небольшой. Во второй серии расчетов напряженность поля значительно выше (1×10^{13} Вт/см²), что позволяет исследовать процесс переноса заряда при той же низкой частоте $\omega = 0.01$ а.е. в условиях значительной ионизации системы Н–Н⁺. Для частоты $\omega = 0.01$ а.е. время полета налетающей частицы между начальным и конечным положениями на межъядерном расстоянии 40 а.е. сравнимо со временем одного оптического цикла поля, так что фаза внешнего поля незначительно меняется, когда налетающая частица и цель находятся в непосредственной близости. В третьей серии расчетов высокочастотное ($\omega = 2$ а.е.) внешнее поле используется для изучения влияния фазы на перенос заряда в условиях быстро осциллирующего поля. Напряженность поля в этой серии расчетов также высока (5×10^{14} Вт/см²), хотя ионизация оказывается небольшой.

На рисунке 3.3 представлена зависимость вероятности переноса заряда P_{ct} от прицельного параметра для лазерного поля с пиковой интенсивностью 1×10^{12} Вт/см² и частотой $\omega = 0.01$ а.е. Приведены результаты для различных фаз ϕ и вероятности переноса заряда при отсутствии внешнего поля. Из рисунка видно, что фаза ϕ существенно влияет на вероятность захвата электрона налетающей частицей в области малых прицельных параметров b . Как видно из рисунка 3.3, при больших прицельных параметрах ($b > 1.75$ а.е.) вероятность переноса заряда практически не меняется, если поле меняет знак, то есть фаза поля меняется на π . Разница между результатами для $\phi = 0^\circ$ и $\phi = 180^\circ$ меньше 1% то же верно и для пары фаз $\phi = 90^\circ$ и $\phi = 270^\circ$. В области малых прицельных параметров $b \leq 1.75$ становится заметным расхождение вероятностей переноса заряда в пределах одной и той же пары фаз. Результаты существенно различаются между разными парами фаз. Эта разница может достигать $\approx 30\%$ (например, при прицельном параметре $b = 0.5$ а.е. вероятность переноса заряда для поля с фазой $\phi = 180^\circ$ составляет примерно 90%, а для поля с фазой $\phi = 90^\circ$ только 63%).

На рисунке 3.2а представлена зависимость вероятности ионизации P_i от прицельного параметра b для различных фаз ϕ . Параметры поля и скорость налетающей частицы такие же, как и для данных на рисунке 3.3. На рисунке 3.2 отсутствует вероятность ионизации для случая без поля, так как в этом случае

для всех прицельных параметров вероятность ионизации $P_i(b)$ намного меньше 1%. Оказывается, что при всех прицельных параметрах вероятность ионизации для фазы $\phi = 180^\circ$ наибольшая, а вероятность ионизации для фазы $\phi = 270^\circ$ наименьшая. Как видно из рисунка 3.2, ионизация существенно усиливается в области малых прицельных параметров. Это может быть объяснено следующим образом. При близких столкновениях возбужденные связанные состояния оказываются значительно заселены. Затем такие состояния легко ионизируются низкочастотным внешним полем по туннельному или надбарьерному механизму.

Перейдем к анализу зависимости вероятностей переноса заряда и ионизации P_{ct} и P_i от фазы ϕ . Рассмотрим заселенность полупространства, содержащего налетающую частицу и рассчитанную по формуле (3.21), но в произвольный момент времени. В случае слабой ионизации под этой величиной можно понимать мгновенную вероятность переноса заряда в данный момент времени или на данном межъядерном расстоянии. На рисунке 3.4 представлена зависимость такой заселенности от межъядерного расстояния R_{AB} для прицельного параметра $b = 0.625$ а.е., при котором наблюдается наибольшая вероятность ионизации для всех значений фазы ϕ на рисунке 3.2. На следующем рисунке 3.5 представлена сила F_{z_0} , действующая на электрон со стороны внешнего поля при напряженности 1×10^{12} Вт/см². Показана зависимость этой силы от межъядерного расстояния для различных фаз ϕ при этом прицельном параметре. Как видно на рисунке 3.4, быстрые колебания вероятности мгновенного переноса заряда происходят, когда налетающая частица и мишень находятся в непосредственной близости друг от друга. Эти колебания начинаются при подлете частицы к мишени на межъядерном расстоянии $R_{AB} \approx 5$ а.е. и заканчиваются примерно на том же межъядерном расстоянии, когда налетающая частица удаляется от мишени. Непосредственно перед попаданием налетающей частицы в эту область вокруг цели вероятность мгновенного переноса заряда близка к нулю, независимо от наличия поля и его фазы. Следовательно, влияние кулоновского поля ядра и сила со стороны внешнего поля в области межъядерных расстояний $R_{AB} \lesssim 5$ а.е. определяют результирующую вероятность переноса заряда.

При подлете налетающей частицы к цели, сила, действующая на электрон со

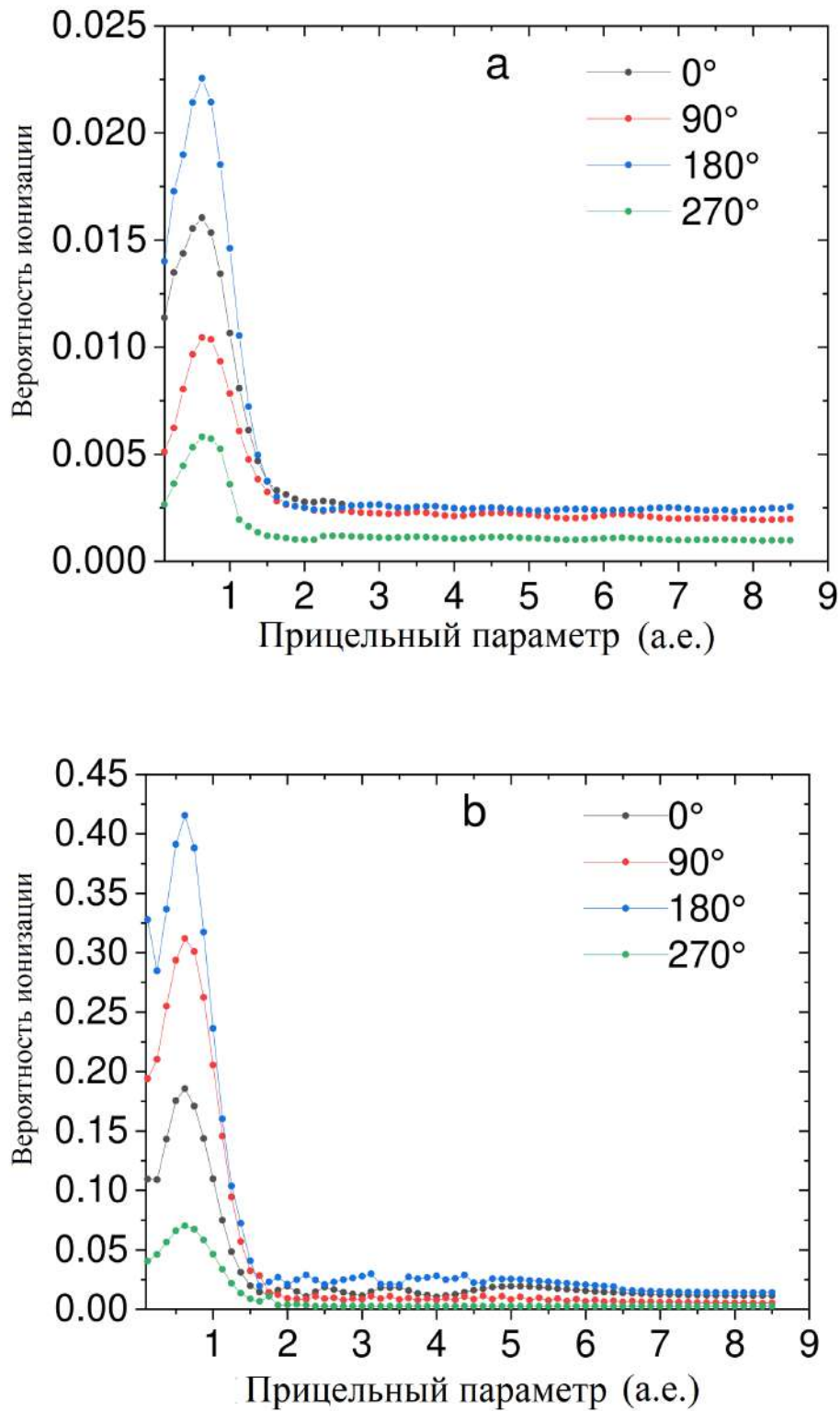


Рис. 3.2: Вероятность ионизации P_i системы $\text{H}-\text{H}^+$ в зависимости от прицельного параметра для различных фаз ϕ при скорости столкновения $v_0=0.1$ а.е. и частоте $\omega=0.01$ а.е. для двух пиковых интенсивностей поля: (а), интенсивность 1×10^{12} ВТ/см²; (б), интенсивность 1×10^{13} ВТ/см².

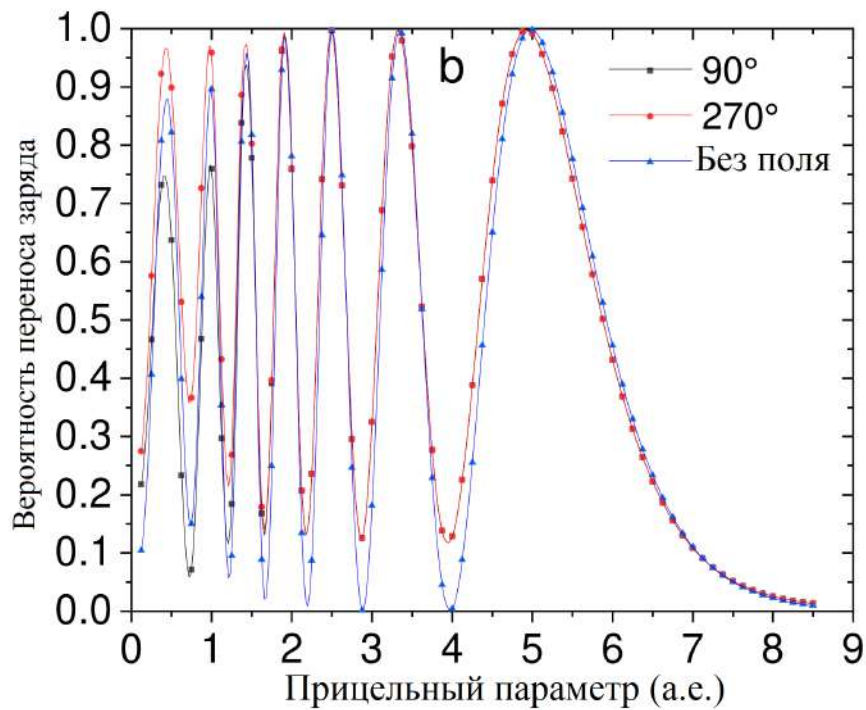
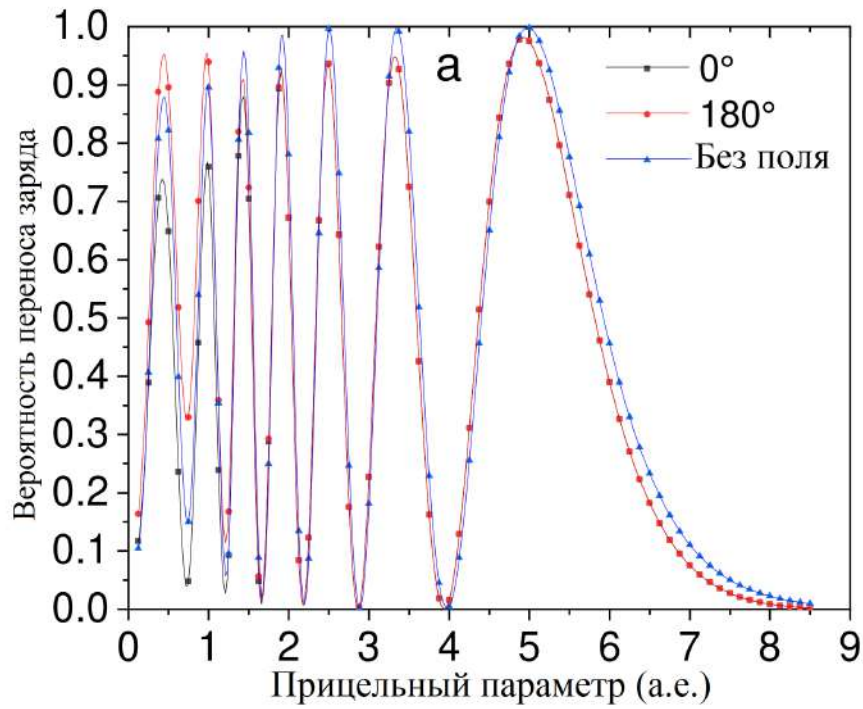


Рис. 3.3: Вероятность переноса заряда P_{ct} в зависимости от прицельного параметра при столкновении протона с атомом водорода в линейно поляризованном внешнем поле с частотой $\omega_0 = 0.01$ а.е. и интенсивностью 1×10^{12} Вт/см² для разных фаз поля: (а), $\phi = 0^\circ$ (черная линия) и $\phi = 180^\circ$ (красная линия); (б), $\phi = 90^\circ$ (черная линия) и $\phi = 270^\circ$ (красная линия). Синие линии на рисунках показывают P_{ct} в отсутствии внешнего поля.

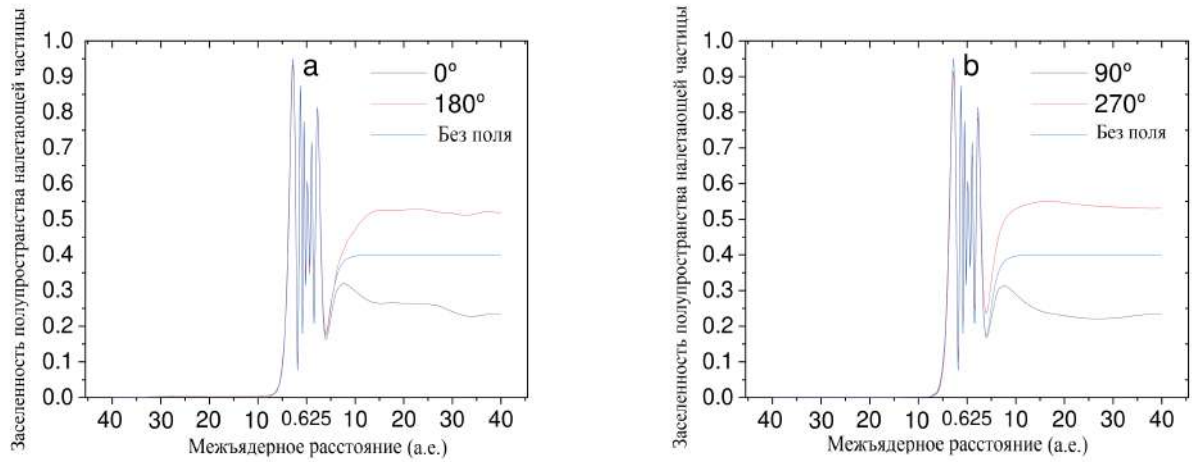


Рис. 3.4: Заселенность налетающей частицы в столкновении $\text{H}-\text{H}^+$ в зависимости от межъядерного расстояния R_{AB} при пиковой интенсивности лазерного поля 1×10^{12} Вт/см², скорости столкновения $v_0=0.1$ а.е. и частоте поля $\omega_0 = 0.01$ а.е. и прицельном параметре $b = 0.625$ а.е.: (а), для фаз $\phi = 0^\circ, 180^\circ$ и случай без поля; (б), для фаз $\phi = 90^\circ, 270^\circ$ и случай без поля. При сближении межъядерное расстояние уменьшается от 40 а.е. до 0.625 а.е. (левая сторона оси межъядерного расстояния). По мере удаления ядер друг от друга межъядерное расстояние увеличивается от 0.625 а.е. до 40 а.е. (правая часть оси межъядерного расстояния).

стороны лазерного поля имеет то же направление, что и кулоновская сила ядра налетающей частицы, если фаза поля равна 90° или 180° (см. рисунок 3.5) и направлены эти силы вдоль положительного направления оси z_0 . В этом случае суммарная сила со стороны налетающей частицы и внешнего поля, стремящиеся удалить электрон от мишени, больше, чем сила в отсутствии внешнего поля. Это приводит к усилению ионизации. Для фаз 0° и 270° , наоборот, внешнее поле ослабляет влияние налетающей частицы на электрон, приводя к подавлению ионизации на этом участке движения ядра.

Картина иная, когда налетающая частица начинает удаляться от цели. При этом внешнее поле направлено в сторону удаляющейся частицы, что способствует переходу электрона от мишени к удаляющейся частице, если фаза поля равна 180° или 270° . Фактически эта часть движения ядер оказывает доминирующее влияние на процесс ионизации и переноса заряда при столкновении. Это связано с тем, что при близких столкновениях возбужденные электронные состояния квазимолекулы оказываются существенно заселенными. Когда налетающая частица еще приближается к мишени, перенос заряда хорошо описывается интер-

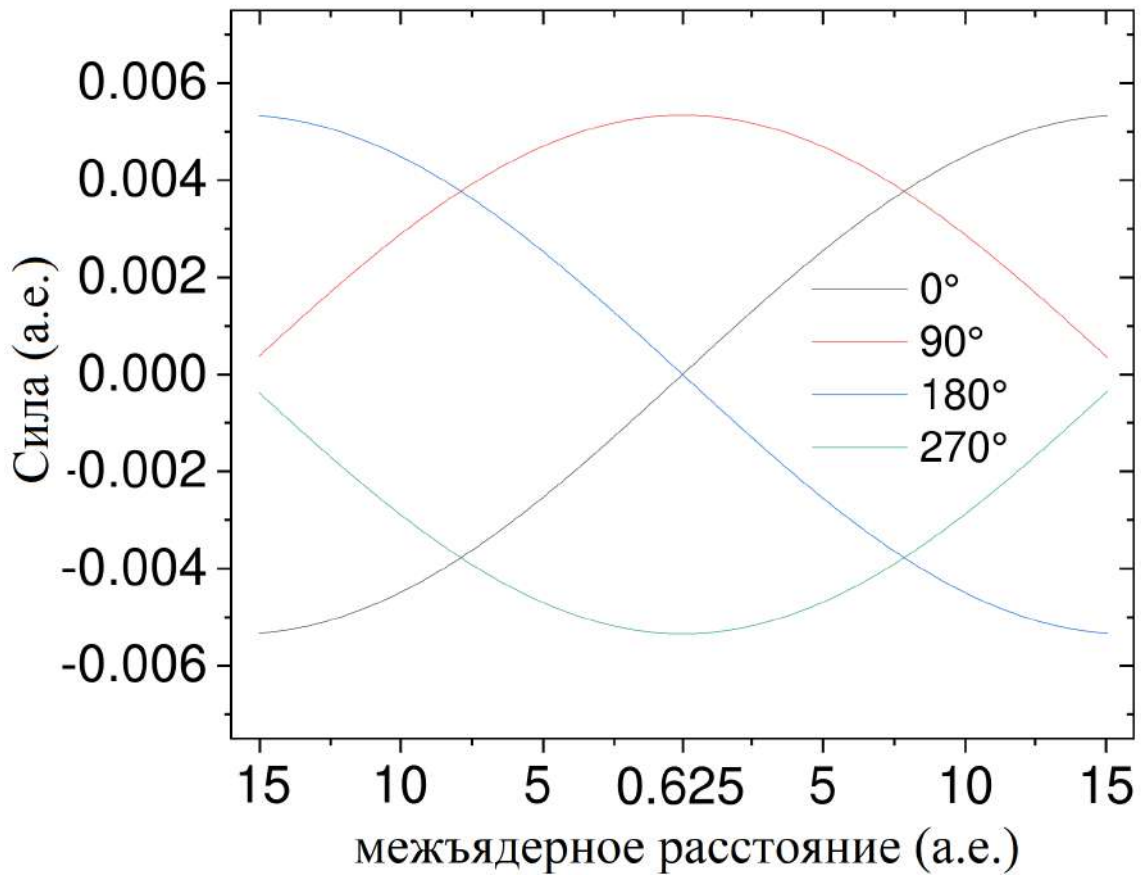


Рис. 3.5: Сила F_{z0} , действующая на электрон со стороны внешнего поля при столкновении $\text{H}-\text{H}^+$ с прицельным параметром $b = 0.625$ а.е., для частоты $\omega_0 = 0.01$ а.е., пиковая интенсивность 1×10^{12} Вт/см² при различных фазах. Левая и правая части оси межъядерного расстояния соответствуют налетающей частице, движущейся к цели и от цели соответственно.

ференцией только молекулярных орбиталей $1\sigma_g$ и $1\sigma_u$. Однако при удалении частицы от мишени заселенность остальных возбужденных связанных состояний уже значительна. Расчеты в данной главе диссертации для фазы поля $\phi = 270^\circ$ показывают, что в момент, когда мгновенная вероятность переноса заряда достигает своего последнего локального минимума ($R_{AB} \approx 4.1$ а.е.), вероятность нахождения электрона в основном состоянии составляет 44%, в первом возбужденном состоянии – 12%, а 43.5% приходится остальные возбужденные связанные состояния. Слабосвязанные электроны более подвержены влиянию внешнего поля, что способствует переносу заряда между мишенью и налетающим протоном и ионизации системы. Эти соображения объясняют, почему заселенность полупространства налетающей частицы для фаз поля 180° и 270° оказывается больше, чем в случае отсутствия внешнего поля (см. рисунок 3.4). Если фаза поля равна 0° или 90° , то сила со стороны внешнего поля во время удаления налетающей частицы направлена к мишени, подавляя процесс переноса заряда. В этом случае заселенность полупространства налетающей частицы оказывается меньше, чем в случае отсутствия внешнего поля. Эти соображения объясняют результат, показанный на рисунке 3.4.

На рисунке 3.6 приведены результаты для вероятности переноса заряда в случае внешнего поля с той же частотой $\omega = 0.01$ а.е., но для более высокой интенсивности 1×10^{13} Вт/см². В области прицельных параметров $b > 2$ а.е. вероятности P_{ct} для фаз 0° и 180° отличаются друг от друга на значение, намного меньшее 1%. К такому же выводу можно прийти при сравнении результатов для фаз 90° и 270° . Вероятности переноса заряда для пары фаз 0° и 180° , с одной стороны, и пары фаз 90° и 270° , с другой стороны, существенно отличаются друг от друга. Аналогичные результаты наблюдались для поля интенсивностью 1×10^{12} Вт/см² на рисунке 3.3. Однако в поле с напряженностью 1×10^{13} Вт/см² эта разница становится еще более заметной. При прицельных параметрах $b < 2$ а.е. значение P_{ct} для фазы 180° оказывается больше, чем для фазы 0° , а для фазы 270° больше, чем для фазы 90° . Полученные результаты демонстрируют, что в более сильном поле фаза также существенно влияет на вероятность переноса заряда P_{ct} .

Вероятность ионизации P_i в поле напряженностью 1×10^{13} Вт/см² значительно больше, чем в более слабом поле напряженностью 1×10^{12} Вт/см². На

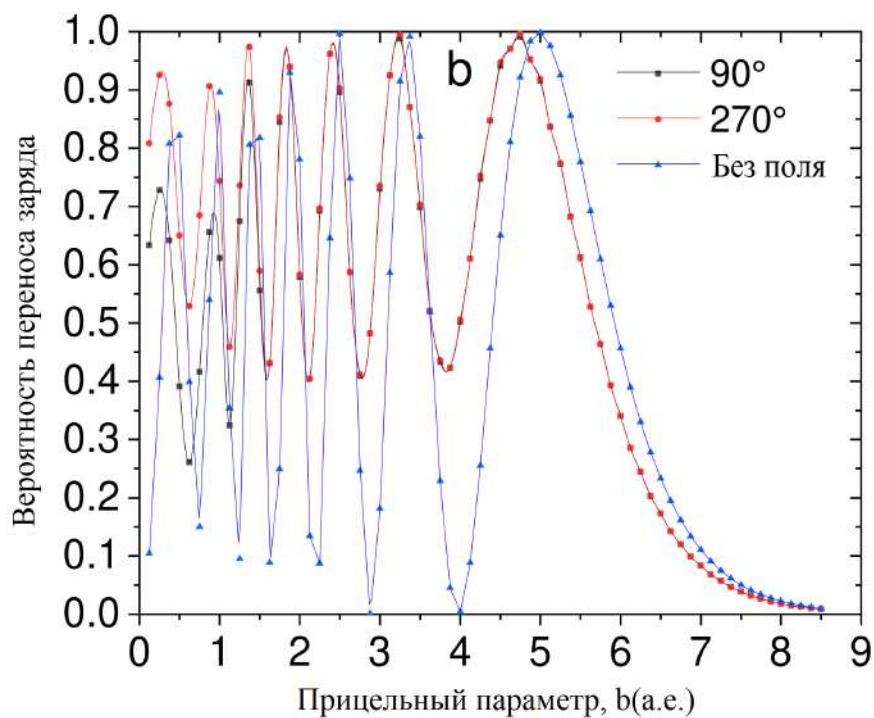
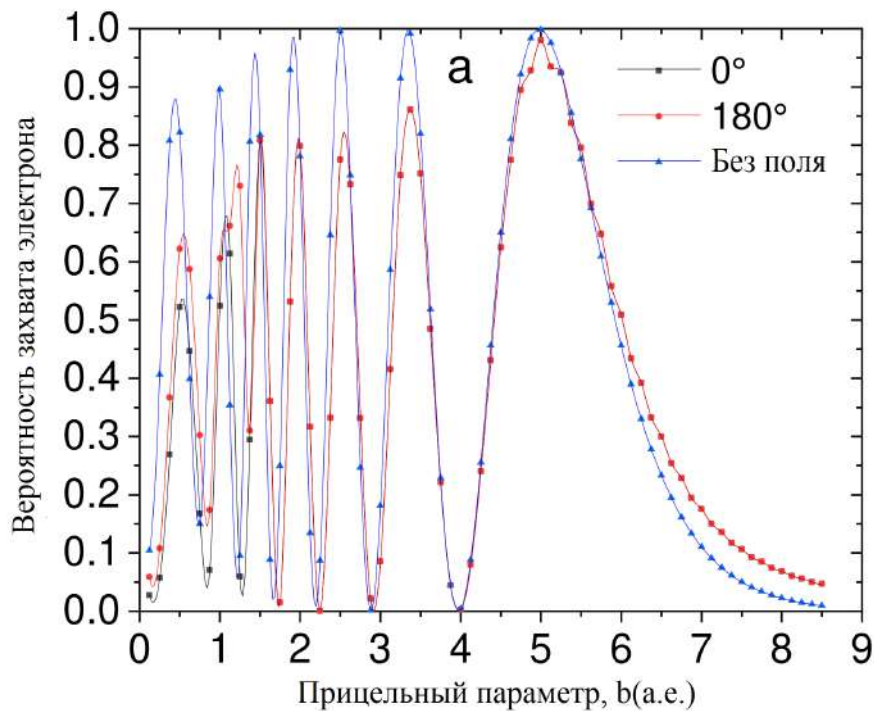


Рис. 3.6: Вероятность переноса заряда P_{ct} в зависимости от прицельного параметра при столкновении протона с атомом водорода в линейно поляризованном внешнем поле с частотой $\omega_0 = 0.01$ а.е. и интенсивностью 1×10^{13} Вт/см², для разных фаз поля: (а), $\phi = 0^\circ$ (черная линия) и $\phi = 180^\circ$ (красная линия); (б), $\phi = 90^\circ$ (черная линия) и $\phi = 270^\circ$ (красная линия). Синие линии на рисунках показывают P_{ct} без внешнего поля.

рисунке 3.2b показана зависимость ионизации P_i от прицельного параметра b . Видно, что для фазы поля 180° вероятность ионизации наибольшая, а для фазы 270° наименьшая при всех прицельных параметрах b . Результаты, полученные для интенсивностей 1×10^{13} Вт/см² и 1×10^{12} Вт/см², имеют общие закономерности. Однако при интенсивности 1×10^{13} Вт/см² ионизация, вызванная полем с фазой $\phi = 90^\circ$, больше, чем для случая с фазой поля $\phi = 0^\circ$. Это контрастирует со случаем интенсивности 1×10^{12} Вт/см², где ионизация, вызванная полем с фазой $\phi = 90^\circ$, была меньше.

В третьей серии расчетов используется внешнее поле с частотой $\omega = 2$ а.е. и пиковой напряженностью поля $I_0 = 5 \times 10^{14}$ Вт/см². Вероятность переноса заряда в зависимости от прицельного параметра показана на рисунке 3.7. Результаты подтверждают исходное предположение: фаза быстро осциллирующего электромагнитного поля не влияет на динамику переноса заряда при медленных столкновениях. При частоте электромагнитного поля $\omega = 2$ а.е. время пролета налетающей частицы составляет порядка нескольких сотен оптических циклов. Например, при прицельном параметре $b = 0.625$ а.е. время пролета налетающей частицы составляет примерно 600 оптических циклов электромагнитного поля. За одно колебание электронной плотности между мишенью и налетающей частицей происходит примерно 90 колебаний электромагнитного поля. В таком случае конкретное значение фазы при $t = 0$ не играет существенной роли в процессе переноса заряда. Вероятность ионизации в третьей серии расчетов составляет около 11-12% для всех прицельных параметров и фаз электромагнитного поля. Такое поведение $P_i(b)$, в третьей серии расчетов, указывает на то, что столкновение частиц в данном случае не оказывает существенного влияния на динамику ионизации, которая в основном обусловлена внешним полем. Этот вывод подтверждается расчетами для одиночного атома водорода во внешнем поле с теми же параметрами. Полученная вероятность ионизации одиночного атома водорода близка к вероятности, полученной для столкновения при наличии лазера. Это контрастирует со случаем низкочастотного лазерного поля, где ионизация может быть существенно усилена при малых прицельных параметрах (см. рисунок 3.2). В то время как возбужденные связанные состояния все еще заселяются в столкновениях при малых прицельных параметрах, туннельный и надбарьерный механизмы ионизации не работают в высокочастотном

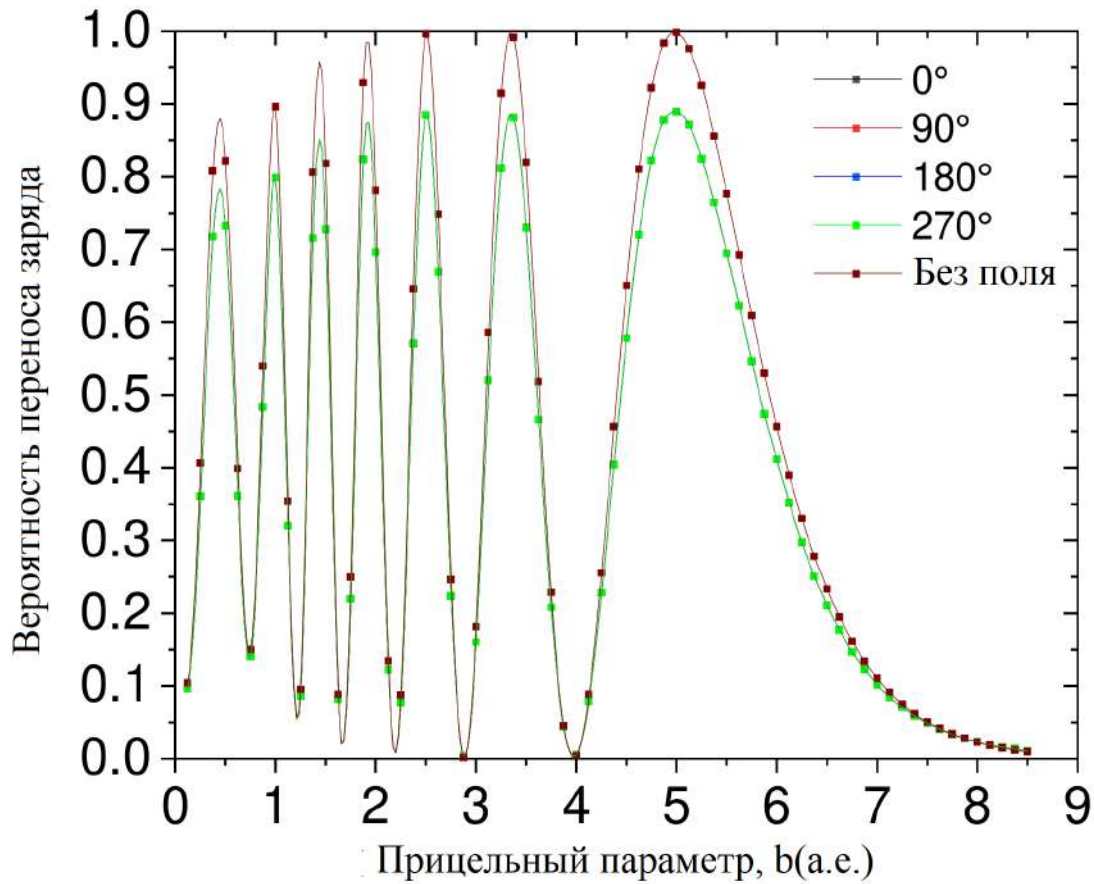


Рис. 3.7: Вероятность переноса заряда P_{ct} в зависимости от прицельного параметра при столкновении протона с атомом водорода в линейно поляризованном внешнем поле с частотой $\omega_0 = 2$ а.е. и интенсивностью 5×10^{14} Вт/см², для фаз поля $\phi = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ$. Также показана вероятность переноса заряда без внешнего поля. Скорость столкновения $v_0 = 0.1$ а.е.

поле.

Сечение захвата, зависящее от фазы, $\sigma_{ct}(\phi)$ может быть рассчитано следующим образом:

$$\sigma_{ct}(\phi) = 2\pi \int_0^{\infty} db b P_{ct}(b, \phi), \quad (3.22)$$

где вероятность переноса заряда $P_{ct}(b, \phi)$ зависит от прицельного параметра b и фазы ϕ . Результаты для частоты $\omega = 0.01$ а.е. представлены в таблице 3.1, где хорошо выражена фазовая зависимость. Как видно из таблицы 3.1, при интегрировании вероятности переноса заряда по прицельному параметру ре-

Таблица 3.1: Сечения переноса заряда в зависимости от фазы (10^{-16} см²) для частоты лазерного поля $\omega = 0.01$ а.е.

Фаза	$I_0=1 \times 10^{12}$ Вт/см ²	$I_0=1 \times 10^{13}$ Вт/см ²
0°	20.62	22.94
90°	23.37	24.48
180°	20.91	23.24
270°	23.69	24.83

Таблица 3.2: Сечения переноса заряда в зависимости от фазы (10^{-16} см²) для частоты лазерного поля $\omega = 0.01$ а.е.

Частота	Интенсивность	Результат данной работы	Результат работы [99]
	Без поля	22.33	21.9
0.01 а.е.	1×10^{12} Вт/см ²	22.15	
0.01 а.е.	1×10^{13} Вт/см ²	23.87	
2 а.е.	5×10^{14} Вт/см ²	20.19	

зультат все еще демонстрирует отчетливую фазовую зависимость. Аналогично, усредненное по фазе сечение захвата $\bar{\sigma}_{\text{ct}}$ определяется следующей формулой:

$$\bar{\sigma}_{\text{ct}} = 2\pi \int_0^{\infty} db b \bar{P}_{\text{ct}}(b), \quad (3.23)$$

где $\bar{P}_{\text{ct}}(b)$ — усредненная по всем фазам вероятность переноса заряда:

$$\bar{P}_{\text{ct}}(b) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\phi P_{\text{ct}}(b, \phi). \quad (3.24)$$

Результаты для усредненного по фазе сечения переноса заряда представлены в таблице 3.2. В отсутствие лазерного поля результат, полученный в данной диссертации, хорошо согласуется с экспериментальными данными [99].

3.4 Итоги главы 3

В данной главе диссертации исследованы процессы ионизации и переноса заряда при столкновениях протона с атомом водорода в присутствии линейно поляризованного электромагнитного поля. Численное моделирование выполнено для двух частот (в инфракрасном и крайнем ультрафиолетовом диапазоне), трех пиковых интенсивностей и четырех значений фазы электромагнитного поля в момент наименьшего расстояния между налетающей частицей и мишенью. Результаты для частоты $\omega = 0.01$ а.е. демонстрируют значительное влияние фазы на ионизацию и перенос заряда со стороны фазы электромагнитного поля. Динамика ионизации и переноса заряда определяется суперпозицией кулоновского поля ядер и электромагнитного поля в области малых межъядерных расстояний. Сила со стороны электромагнитного поля в этой области определяется фазой поля в момент наименьшего расстояния между налетающей частицей и мишенью. Если прицельный параметр достаточно мал ($b < 2$ а.е.), возбужденные состояния квазимолекулы H_2^+ оказываются существенно заселенными, в момент наибольшего сближения частиц. При этом участки движения ядра при подлете налетающей частицы к мишени и при ее отлете существенно различаются по своей роли в процессах ионизации и переноса заряда. Когда налетающая частица еще приближается к мишени, динамика электронов обусловлена в основном интерференцией первоначально заселенных $1\sigma_g$ и $1\sigma_u$ молекулярных орбиталей. Однако к моменту отлета частицы вышележащие электронные состояния оказываются существенно заселенными, что сказывается на динамике ионизации и переноса заряда во внешнем поле. Наименьшая ионизация как при интенсивности 1×10^{12} Вт/см², так и при интенсивности 1×10^{13} Вт/см² наблюдается, если фаза поля равна 270° , а наибольшая при фазе поля 180° .

При больших прицельных параметрах ($b > 2$ а.е.) вероятность перехода электрона в вышележащие электронные состояния квазимолекулы мала, и динамика переноса заряда в основном определяется интерференцией первоначально занятых $1\sigma_g$ и $1\sigma_u$. Вблизи точки наибольшего сближения налетающей частицы и мишени ось молекулы почти перпендикулярна направлению действия силы внешнего поля. В этой ситуации исчезает зависимость от знака поля. Тогда вероятность переноса заряда одинакова для обеих фаз поля в парах 0° ,

180° и 90° , 270° , но отличается от вероятности для другой пары. Для частоты электромагнитного поля $\omega = 2$ а.е. и интенсивности $I_0 = 5 \times 10^{14}$ Вт/см² не наблюдается влияния фазы электромагнитного поля на вероятности ионизации и переноса заряда. Основная причина такого поведения вероятности ионизации и переноса заряда заключается в гораздо более быстрых колебаниях электромагнитного поля по сравнению с колебаниями электронной плотности между мишенью и налетающей частицей.

Заключение

В настоящей диссертации были исследованы различные эффекты в квази-молекулах, возникающие при облучении линейно поляризованным лазерным полем, которое рассматривалось как в дипольном приближении, так и за его пределами.

Был изучен процесс однофотонной ионизации для квазимолекулы H_2^+ в антисимметричном начальном состоянии $1\sigma_u$ в нерелятивистском случае. Для этого были построены энергетические и угловые распределения фотоэлектронов, а также зависимость полной вероятности ионизации от угла β между вектором поляризации и молекулярной осью. Полученные результаты демонстрируют, что при определенных параметрах лазерного поля: 1) вероятность ионизации монотонно увеличивается с ростом угла β , что противоречит интуитивным ожиданиям, 2) Максимумы в угловых распределениях практически не изменяют своего положения с ростом угла β . Такое поведение вероятности ионизации и угловых распределений объясняется двухцентрковой интерференцией, из-за которой наиболее вероятное направление вылета фотоэлектрона определяется двумя факторами: внешнее поле стремится выбить электрон в направлении вектора поляризации и усилением сигнала, при определенном угле вылета фотоэлектрона, от окрестностей двух ядер за счет интерференции волновой функции.

Был развит релятивистский метод расчета одноэлектронных квазимолекул во внешнем поле. Оценка релятивистских эффектов проведена с помощью масштабирования параметров системы по заряду ядра Z . Полученные результаты демонстрируют все возрастающую роль, с ростом заряда ядра Z , релятивистских эффектов, таких как сдвиг резонансной частоты и увеличение потенциала ионизации квазимолекулы. Исследовав многофотонную ионизацию квазимолекул на нескольких межъядерных расстояниях было обнаружено, что реляти-

вистские эффекты могут изменять их электронную структуру, сдвигая резонанс на межъядерные расстояния разного масштаба для разных квазимолекул. Осуществлен выход за рамки дипольного приближения для трехмерного уравнения Дирака. Полученные результаты демонстрируют, что дипольное приближение для молекул с высоким зарядом ядра нарушается, приводя к неправильным результатам расчета динамики ионизации.

Проведен анализ влияния фазы линейно поляризованного электромагнитного поля в столкновениях протона с атомом водорода в низкоэнергетических столкновениях. Результаты расчетов для H_2^+ демонстрируют существенное влияние медленно осциллирующего поля на процесс захвата электрона налетающей частицей. Причем этап подлета налетающей частицы и её удаления по-разному влияют на динамику ионизации. В то же время, быстро осциллирующее поле не влияет на процесс захвата электрона налетающей частицей.

Список литературы

- [1] *Krausz F., Ivanov M.* Attosecond physics // *Reviews of Modern Physics*. — 2011. — Vol. 81, no. 1. — P. 163.
- [2] Extremely high-intensity laser interactions with fundamental quantum systems / A. Di Piazza and C. Müller Z. Hatsagortsyan [и др.] // *Reviews of Modern Physics*. — 2012. — Vol. 84, no. 3. — P. 1177.
- [3] *Vrakking M. J. J.* Attosecond imaging // *The Journal of Physical Chemistry B*. — 2014. — Vol. 16, no. 7. — P. 2775.
- [4] *Villeneuve D. M.* Attosecond science // *Contemporary Physics*. — 2018. — Vol. 59, no. 1. — P. 47.
- [5] Dynamics of resonant x-ray and Auger scattering / F. Gel'mukhanov, M. Odelius S. Polyutov [и др.] // *Reviews of Modern Physics*. — 2021. — Vol. 93, no. 3. — P. 035001.
- [6] *Patanen M., Svensson S., Martensson N.* Electron spectroscopy using ultra brilliant synchrotron X-ray sources // *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*. — 2015. — Vol. 200. — Pp. 78–93.
- [7] Roadmap of ultrafast x-ray atomic and molecular physics / L. Young, K. Ueda, M. Gühr [и др.] // *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. — 2018. — Vol. 51. — P. 032003.
- [8] *Posthumu J. H.* The dynamics of small molecules in intense laser fields // *Reports on Progress in Physics*. — 2004. — Vol. 67, no. 5. — P. 623.
- [9] High Harmonic Generation from Multiple Orbitals in N₂ / B. K. McFarland, J. P. Farrell, P. H. Bucksbaum [и др.] // *Science*. — 2008. — Vol. 322, no. 5905. — Pp. 1232–1235.
- [10] Direct Measurement of the Angular Dependence of Ionization for N₂, O₂ and

- CO₂ in Intense Laser Fields / D. Pavičić, K. F. Lee, D. M. Rayner, P. B. Corkum [и др.] // *Physical Review Letters*. — 2007. — Vol. 98, no. 24. — P. 243001.
- [11] Direct Measurement of the Angular Dependence of the Single-Photon Ionization of Aligned N₂ and CO₂ / I. Thomann, R. Lock, V. Sharma, E. Gagnon [и др.] // *The Journal of Physical Chemistry A*. — 2008. — Vol. 112. — P. 9382.
- [12] Laser-induced electron tunneling and diffraction / M. Meckel, D. Comtois, D. Zeidler [и др.] // *Science*. — 2008. — Vol. 320, no. 5882. — P. 1478.
- [13] Imaging ultrafast molecular dynamics with laser-induced electron diffraction / C. I. Blaga, J. Xu, A. D. DiChiara, E. Sistrunk [и др.] // *Nature*. — 2012. — Vol. 483. — Pp. 194–197.
- [14] Tomographic imaging of molecular orbitals / J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler [и др.] // *Nature*. — 2004. — Vol. 432. — Pp. 867–871.
- [15] Laser-induced electron diffraction: A tool for molecular orbital imaging / M. Peters, T. T. Nguyen-Dang, E. Charron, A. Keller [и др.] // *Physical Review A*. — 2012. — Vol. 85, no 5. — P. 053417.
- [16] *Henkel J., Lein M., Engel V.* Interference in above-threshold-ionization electron distributions from molecules // *Physical Review A*. — 2011. — Vol. 83, no. 5. — P. 051401(R).
- [17] Two-Source Double-Slit Interference in Angle-Resolved High-Energy Above-Threshold Ionization Spectra of Diatoms / M. Okunishi, R. Itaya, K. Shimada [и др.] // *Physical Review Letters*. — 2009. — Vol. 103, no. 4. — P. 043001.
- [18] Two-center interferences in photoionization of a dissociating H₂⁺ molecule / A. Picón, A. Bahabad, H.C., Kapteyn [и др.] // *Physical Review A*. — 2011. — Vol. — 83, no. 1. — P. 013414.
- [19] *Yuan K.-J., Bandrauk A. D.* Angle-dependent molecular above-threshold ionization with ultrashort intense linearly and circularly polarized laser pulses// *Physical Review A*. — 2011. — Vol. 84, no. 1. — P. 013426.
- [20] Role of the Intramolecular Phase in High-Harmonic Generation / M. Lein, N. Hay, R. Velotta [и др.] // *Physical Review Letters*. — 2002. — Vol. 88, no. 18.— P. 183903.
- [21] Interference effects in high-order harmonic generation with molecules / M. Lein,

- N. Hay, R. Velotta, J [и др.] // *Physical Review A*. — 2002. — Vol. 66, no. 2. — P. 023805.
- [22] Orientation dependence of high-order harmonic generation in molecules / M. Lein, P. P. Corso, J. P. Marangos [и др.] // *Physical Review A*. — 2003. — Vol. 67, no. 2. — P. 023819.
- [23] *Etches A., Gaarde M. B., Madsen L. B.* Theory of tunneling ionization of molecules: Weak-field asymptotics including dipole effects // *Physical Review A*. — 2011. — Vol. 84, no. 5. — P. 023418.
- [24] Following a chemical reaction using high-harmonic interferometry / H. J. Wörner, J. B. Bertrand, D. V. Kartashov [и др.] // *Nature*. — 2010. — Vol. 466. — P. 604.
- [25] Signatures of the continuum electron phase in molecular strong-field photoelectron holography / M. Meckel, A. Staudte, S. Patchkovskii [и др.] // *Nature Physics*. — 2014. — Vol. 10. — Pp. 594–600.
- [26] Probing Molecular Dynamics by Laser-Induced Backscattering Holography / M. Haertelt, X.-B. Bian, M. Spanner [и др.] // *Physical Review Letters*. — 2016. — Vol. 116, no. 13. — P. 133001.
- [27] *Bian X. B., Bandrauk A. D.* Probing Molecular Dynamics by Laser-Induced Backscattering Holography // *Physical Review Letters*. — 2012. — Vol. 108, no. 26. — P. 263003.
- [28] *Lefebvre R., Atabek O.* Progress toward full optical control of ultracold-molecule formation: Role of scattering Feshbach resonances // *Physical Review A*. — 2019. — Vol. 101, no. 6. — P. 063406.
- [29] Laser-assisted binary-encounter emission in relativistic ion-atom collision / Z. Wang, B. Najjari, S. F. Zhang [и др.] // *Physical Review A*. — 2019. — Vol. 100, no. 5. — P. 052710.
- [30] *Fabrikant I. I., Ambalampitiya H. B., Schneider I. F.* Semiclassical theory of laser-assisted dissociative recombination // *Physical Review A*. — 2021. — Vol. 103, no. 5. — P. 053115.
- [31] Dynamics of two atoms undergoing light-assisted collisions in an optical microtrap / P. Sompet, A. V. Carpentier, Y. H. Fung [и др.] // *Physical Review A*. — 2013. — Vol. 88, no. 5. — P. 051401(R).

- [32] Ab initio study of charge exchange in collisions of B^{2+} ions with Ne and Ar targets / A. Moussa, A. Zaidi, S. Lahmar [и др.] // Physical Review A. — 2012. — Vol. 85, no. 2. — P. 022715.
- [33] *Zuo T., Bandrauk A. D.* Charge-resonance-enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers // Physical Review A. — 1995. — Vol. 52, no. 4. — P. R2511(R).
- [34] Strong Orientation Effects in Ionization of H_2^+ by Short, Intense, High-Frequency Light Pulses / S. Selstø, M. Førre, J. P. Hansen [и др.] // Physical Review Letters. — 2005. — Vol. 95, no. 9. — P. 093002.
- [35] *Telnov D. A., Chu S. I.* Ab initio study of the orientation effects in multiphoton ionization and high-order harmonic generation from the ground and excited electronic states of H_2^+ // Physical Review A. — 2007. — Vol. 76, no. 4. — P. 043412.
- [36] *Kamta G. L., Bandrauk A. D.* Orbital symmetry and interference effects in molecular high-order harmonic generation // Physical Review A. — 2009. — Vol. 80, no. 4. — P. 041403(R).
- [37] *Yuan K.-J., Bian X.-B., Bandrauk A. D.* Two-center interference in molecular photoelectron energy spectra with intense attosecond circularly polarized XUV laser pulses // Physical Review A. — 2014. — Vol. 90, no. 2. — P. 023407.
- [38] *Yuan K.-J., Lu H. Z., Bandrauk A. D.* Linear- and circular-polarization photoionization angular distributions in H_2 and H_2^+ by attosecond xuv laser pulses // Physical Review A. — 2011. — Vol. 83, no. 4. — P. 043418.
- [39] *Guan X., DuToit R. C., Bartschat K.* Photoionization of the H_2^+ ion by ultrashort elliptically polarized laser pulses // Physical Review A. — 2013. — Vol. 87, no. 5. — P. 053410.
- [40] *Fetić B., Milošević D. B.* Numerical solution of the time-dependent Schrödinger equation for H_2^+ ion with application to high-harmonic generation and above-threshold ionization // Physical Review E. — 2017. — Vol. 95, no. 5. — P. 053309.
- [41] *Gudzenko L. I., Yakovlenko S. I.* Radiative Collisions // Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics. — 1972. — Vol. 35, no. 5. — Pp. 887–881.

- [42] Carrier-Envelope-Phase Stabilized Terawatt Class Laser at 1 KHz with a Wavelength Tunable Option / B. Langdon, J. Garlick, X. Ren [и др.] // Optics Express. — 2015. — Vol. 23, no. 4. — P. 4563.
- [43] CEP-Stabilized, Sub-18 Fs, 10 KHz and TW-Class 1 KHz Dual Output Ti:Sa Laser with Wavelength Tunability Option / A. Golinelli, X. Chen, B. Bussièrre [и др.] // Optics Express. — 2019. — Vol. 27, no. 10. — Pp. 13624–13636.
- [44] Goulielmakis E. Direct Measurement of Light Waves / E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger [и др.] // Science. — 2004. — Vol. 305, no. 4. — P. 1267.
- [45] Paasch-Colberg T. Solid-State Light-Phase Detector / T. Paasch-Colberg, A. Schiffrin, N. Karpowicz [и др.] // Nature Photonics. — 2014. — Vol. 8, no. 3. — P. 214.
- [46] *Domínguez-Gutiérrez F. J., Cabrera-Trujillo R.* Pulse duration effects on laser-assisted electron transfer cross section for He^{2+} ions colliding with atomic hydrogen // The European Physical Journal D. — 2014. — Vol. 68. — P. 226.
- [47] *Kirchner T.* Manipulating ion-atom collisions with coherent electromagnetic radiation // Physical Review Letters. — 2002. — Vol. 89, no. 9. — P. 093203.
- [48] *Domínguez-Gutiérrez F. J., Cabrera-Trujillo R.* Comparison of laser-assisted charge transfer of symmetric and asymmetric colliding systems // Journal of Physics: Conference Series. — 2014. — Vol. 512. — P. 012033.
- [49] *Niederhausen T., Thumm U.* Capture and ionization in laser-assisted proton–hydrogen collisions // Physical Review A. — 2006. — Vol. 73, no. 4. — P. 041404(R).
- [50] Laser-assisted charge transfer in $\text{He}^{2+} +$ collisions / Fatima Anis, V. Roudnev, R. Cabrera-Trujillo [и др.] // Physical Review A. — 2006. — Vol. 73, no. 4. — P. 043414.
- [51] Optimal control of charge transfer for slow $\text{H}^+ + \text{D}$ collisions with shaped laser pulses / W. Zhang, C.-C. Shu, T.-S. Ho [и др.] // The Journal of Chemical Physics. — 2014. — Vol. 140, no. 9. — P. 094304.
- [52] *Vanne Y. V., Saenz A.* Solution of the time-dependent Dirac equation for multiphoton ionization of highly charged hydrogenlike ions // Physical Review A. — 2012. — Vol. 85, no. 3. — P. 033411.

- [53] I. Relativistic ionization probabilities of hydrogenlike ions exposed to intense laser pulses / V. Ivanova, A. Saenz, A. I. Bondarev [и др.] // Journal of Physics: Conference Series. — 2017. — Vol. 875, no. 2. — P. 022031.
- [54] Alternative gauge for the description of the light-matter interaction in a relativistic framework / Kjellsson T., Førre M., Simonsen A. S. [и др.] // Physical Review A. — 2017. — Vol. 96, no. 2. — P. 023426.
- [55] Dual-kinetic-balance approach to the Dirac equation for axially symmetric systems: Application to static and time-dependent fields / E. B. Rozenbaum, D. A. Glazov, V. M. Shabaev [и др.] // Physical Review A. — 2014. — Vol. 89, no. 1. — P. 012514.
- [56] *Chu S.-I., Telnov D. A.* Beyond the Floquet theorem: generalized Floquet formalisms and quasienergy methods for atomic and molecular multiphoton processes in intense laser fields // Physics Reports. — 2004. — Vol. 390, no. 1-2. — Pp. 1–131.
- [57] Ionization dynamics beyond the dipole approximation induced by the pulse envelope / A. S. Simonsen, T. Kjellsson, M. Førre [и др.] // Physical Review A. — 2016. — Vol. 93, no. 5. — P. 053411.
- [58] *Pindzola, M. S., Ludlow, J. A., Colgan, J.* Photoionization of highly charged atomic ions // Physical Review A. — 2010. — Vol. 81, no. 6. — P. 063431.
- [59] Photoionization of highly charged atomic ions / M. S. Pindzola, S. A. Abdel-Naby, F. Robicheaux [и др.] // Physical Review A. — 2012. — Vol. 85, no. 3. — P. 032701.
- [60] *Ivanov I. A.* Relativistic calculation of the electron-momentum shift in tunneling ionization // Physical Review A. — 2015. — Vol. 91, no. 4. — P. 043410.
- [61] Relativistic ionization characteristics of laser-driven hydrogenlike ions / H. Bauke, H. G. Hetzheim, G. R. Mocken [и др.] // Physical Review A. — 2011. — Vol. 83, no. 6. — P. 063414.
- [62] Spin dynamics in relativistic ionization with highly charged ions in super-strong laser fields / M. Klaiber, E. Yakaboylu, C. Müller [и др.] // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2014. — Vol. 47, no. 6. — P. 065603.

- [63] *Klaiber M., Hatsagortsyan K. Z.* Spin-asymmetric laser-driven relativistic tunneling from \mathbf{p} states // *Physical Review A*. — 2014. — Vol. 90, no. 6. — P. 063416.
- [64] Nondipole Ionization Dynamics of Atoms in Superintense High-Frequency Attosecond Pulses / M. Førre, J. P. Hansen, L. Kocbach [и др.] // *Physical Review Letters*. — 2006. — Vol. 97, no. 4. — P. 043601.
- [65] Molecules in intense xuv pulses: Beyond the dipole approximation in linearly and circularly polarized fields / M. Førre, S. Selstø, J. P. Hansen [и др.] // *Physical Review A*. — 2007. — Vol. 76, no. 3. — P. 033415.
- [66] *Zhou Z., Chu S.-I.* Multiphoton above-threshold ionization in superintense free-electron x-ray laser fields: Beyond the dipole approximation // *Physical Review A*. — 2013. — Vol. 87, no. 2. — P. 023407.
- [67] *Moe T. E., Førre M.* Ionization of atomic hydrogen by an intense x-ray laser pulse: An ab initio study of the breakdown of the dipole approximation // *Physical Review A*. — 2018. — Vol. 97, no. 1. — P. 013415.
- [68] *Kjellsson T., Selstø S., Lindroth E.* Relativistic ionization dynamics for a hydrogen atom exposed to superintense XUV laser pulses // *Physical Review A*. — 2017. — Vol. 95, no. 4. — P. 043403.
- [69] Multiphoton Ionization of One-Electron Relativistic Diatomic Quasimolecules in Strong Laser Fields / D. A. Telnov, D. A. Krapivin, J. Heslar [и др.] // *The Journal of Physical Chemistry A*. — 2018. — Vol. 122, no. 11. — Pp. 8026–8036.
- [70] *Krapivin D. A., Telnov D. A.* Anomalous dependence of ionization probability and electron angular distributions on orientation of molecular axis in photoionization of H_2^+ : effect of two-center interference // *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. — 2021. — Vol. 54, no. 20. — P. 205601.
- [71] *Krapivin D. A., Telnov D. A.* Influence of the phase of the electromagnetic field on the processes of charge transfer and ionization in laser-assisted collisions of protons with hydrogen atoms // *The European Physical Journal D*. — 2023. — Vol. 77, no. 99.
- [72] *Handbook of Mathematical Functions*, edited by M. Abramowitz and I. Stegun (Dover, New York, 1965).

- [73] Attosecond Strobings of Two-Surface Population Dynamics in Dissociating H_2^+ / A. Staudte, D. Pavičić, S. Chelkowski [и др.] // Physical Review Letters. — 2007. — Vol. 98, no. 7. — P. 073003.
- [74] *Telnov D. A., Chu S. I.* Ab initio study of high-order harmonic generation H_2^+ of in intense laser fields: Time-dependent non-Hermitian Floquet approach // Physical Review A. — 2005. — Vol. 71, no. 1. — P. 013408.
- [75] *Chu X., Shih-I Chu* Self-interaction-free time-dependent density-functional theory for molecular processes in strong fields: High-order harmonic generation of H_2^+ in intense laser fields // Physical Review A. — 2001. — Vol. 63, no. 2. — P. 023411.
- [76] *Marston C.C., and Gabriel G. Balint-Kurti* The Fourier grid Hamiltonian method for bound state eigenvalues and eigenfunctions // Physical Review A. — 2001. — Vol. 63, no. 2. — P. 023411.
- [77] *Tong X.-M., Chu S.-I.* Dynamics of Driven Quantum Systems // Chemical Physics. — 1997. — Vol. 217, no. 2-3. — Pp. 119–130.
- [78] *Crank J., Nicolson P.* A Practical Method for Numerical Evaluation of Solutions of Partial Differential Equations of the Heat-Conduction Type // Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society. — 1947. — Vol. 43, no. 6. — Pp. 50–67.
- [79] *Ponomarev L.I., Somov L.N.* The wave functions of continuum for the two-center problem in quantum mechanics // Journal of Computational Physics. — 1976. — Vol. 20, no. 2. — P. 183.
- [80] *Howard D. C., Fano U.* Interference in the Photo-Ionization of Molecules // Physics review journals archive. — 1966. — Vol. 150, no. 1. — P. 30.
- [81] Interferences in the photoelectron spectrum of H_2^+ molecules at high energy / O.A. Fojón, A. Palacios, J. Fernández [и др.] // Physics Letters A. — 2006. — Vol. 350, no. 5-6. — Pp. 371–374.
- [82] Photon-momentum transfer in diatomic molecules: An ab initio study / H. Liang, M.-X. Wang, X.-R. Xiao [и др.] // Physics Letters A. — 2018. — Vol. 98, no. 6. — P. 063413.
- [83] *Parpia F. A., Mohanty A. K.* Relativistic basis-set calculations for atoms with Fermi nuclei // Physical Review A. — 1992. — Vol. 46, no. 7. — Pp. 3735–3745.

- [84] *Angeli I., Marinova K. P.* Table of experimental nuclear ground state charge radii: An update // *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. — 2013. — Vol. 99, no. 1. — Pp. 69–95.
- [85] *Telnov D. A., Chu S.-I.* Ab initio study of the orientation effects in multiphoton ionization and high-order harmonic generation from the ground and excited electronic states H_2^+ // *Physical Review A*. — 2007. — Vol. 76, no. 4. — P. 043412.
- [86] *Telnov D. A., Chu S.-I.* Time-dependent generalized pseudospectral method for accurate treatment of multiphoton processes of diatomic molecules in intense laser fields // *Computer Physics Communications*. — 2011. — Vol. 182, no. 1. — Pp. 18–20.
- [87] *Grant I. P.* B-spline methods for radial Dirac equations // *J. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. — 2009. — Vol. 42, no. 5. — P. 055002.
- [88] *Johnson W. R., Blundell S. A., Sapirstein J.* Finite basis sets for the Dirac equation constructed from B splines // *Physical Review A*. — 1988. — Vol. 37, no. 2. — Pp. 307–315.
- [89] *Layton E., Chu S.-I.* Generalized Fourier-grid Hamiltonian approach to the Dirac equation: variational solution without basis set // *Physics Letters*. — 1988. — Vol. 186, no. 1. — Pp. 100–106.
- [90] Relativistic calculations of the ground state energies and the critical distances for one-electron homonuclear quasi-molecules / D. V. Mironova, I. I. Tupitsyn, V. M. Shabaev [и др.] // *Physics Letters*. — 2015. — Vol. 449. — Pp. 10–13.
- [91] *Ishikawa A., Nakashima H., Nakatsuji H.* Solving the Schrödinger and Dirac equations of hydrogen molecular ion accurately by the free iterative complement interaction method // *The Journal of Chemical Physics*. — 2008. — Vol. 128, no. 12. — P 124103.
- [92] *Yang L., Heinemann D., Kolb D.* An accurate solution of the two-centre Dirac equation for H_2^+ by the finite-element method // *Chemical Physics Letters*. — 1991. — Vol. 178, no. 2-3. — Pp. 213–215.
- [93] *Franke R., Kutzelnigg W.* Perturbative relativistic calculations for one-electron

- systems in a Gaussian basis // *Chemical Physics Letters*. — 1992. — Vol. 199, no. 6. — Pp. 561–566.
- [94] *Fillion-Gourdeau F., Lorin E., Bandrauk A.* Numerical solution of the time-independent Dirac equation for diatomic molecules: **B** splines without spurious states // *Physical Review A*. — 2012. — Vol. 85, no. 2. — P. 022506.
- [95] *Madsen L. B., Lambropoulos P.* Scaling of hydrogenic atoms and ions interacting with laser fields: Positronium in a laser field // *Physical Review A*. — 1999. — Vol. 59, no. 6. — Pp. 4574–4579.
- [96] *Zeldovich Y. B., Popov V. S.* Electronic structure of superheavy atoms // *Soviet Physics Uspekhi*. — 1972. — Vol. 1, no. 6. — Pp. 673–694.
- [97] *Mulliken R. S.* Intensities of Electronic Transitions in Molecular Spectra II. Charge-Transfer Spectra // *The Journal of Chemical Physics*. — 1939. — Vol. 7, no. 1. — Pp. 20–34.
- [98] *Müller B., Greiner W.* The two center Dirac equation // *Zeitschrift für Naturforschung A*. — 1976. — Vol. 31, no. 1. — Pp. 1–30.
- [99] *Jealy M. W., Zyl B. V.* Cross sections for electron capture and loss. II. H impact on H and H_2^+ // *Physical Review A*. — 1987. — Vol. 36, no. 7. — P. 3100.