



UNIVERSITATEA BABEŞ-BOLYAI, CLUJ-NAPOCA  
FACULTATEA DE FIZICĂ

BORBÉLY SÁNDOR

---

REZUMATUL TEZEI DE DOCTORAT

STUDIUL TEORETIC AL INTERACȚIEI SISTEMELOR ATOMICE  
ȘI MOLECULARE CU PULSURI LASER ULTRASCURTE

CONDUCĂTOR ȘTIINȚIFIC: PROF. DR. LADISLAU NAGY

IANUARIE 2010



# Conținutul tezei

<b>Lista lucrărilor publicate</b>	<b>4</b>
<b>1 Introducere</b>	<b>6</b>
1.1 Motivarea . . . . .	6
1.2 Ionizare în câmpuri laser externe . . . . .	9
1.2.1 Mecanisme de ionizare și proprietățile lor . . . . .	9
1.2.1.1 Ionizarea cu un singur foton . . . . .	9
1.2.1.2 Ionizarea cu mai mulți fotoni, Ionizarea deasupra pragului . . . . .	9
1.2.1.3 Ionizarea prin tunelare și peste barieră . . . . .	10
1.2.2 Modele teoretice . . . . .	11
1.2.2.1 Teoria perturbațiilor . . . . .	12
1.2.2.2 Modele “Essential states” . . . . .	12
1.2.2.3 Modele Floquet . . . . .	13
1.2.2.4 Modele Keldysh, Reiss and Faisal (KRF) . . . . .	15
1.2.2.5 Modele Ammosov, Delano and Krainov(ADK) . . . . .	18
1.2.2.6 Modele Coulomb-Volkov . . . . .	19
1.2.2.7 Soluția numerică TDSE . . . . .	21
<b>2 TDSE în spațiul impulsurilor</b>	<b>26</b>
2.1 Considerații generale . . . . .	26
2.1.1 Descrierea teoretică ale pulsurilor laser . . . . .	26
2.1.2 Hamiltonianul . . . . .	27
2.2 TDSE . . . . .	27
2.3 Soluția Volkov . . . . .	29
2.4 Soluția MSSFA . . . . .	29
2.5 Stări legate în spațiul impulsurilor . . . . .	30

2.5.1	Coeficienți de expansiune pentru stările legate ale sistemelor hidrogenoide . . . . .	31
2.6	Densitatea de probabilitate a ionizării . . . . .	32
<b>3</b>	<b>Aplicații a modelului MSSFA</b>	<b>35</b>
3.1	Ionizarea atomului de hidrogen . . . . .	35
3.1.1	Teorie . . . . .	36
3.1.2	Rezultate și discuții . . . . .	37
3.1.2.1	Densități de probabilitate a ionizării dublu diferențiale . . . . .	38
3.1.2.2	Densități de probabilitate a ionizării simplu diferențiale . . . . .	39
3.1.3	Concluzii și perspective . . . . .	41
3.2	Disocierea pozitroniului . . . . .	42
3.2.1	Teorie . . . . .	43
3.2.2	Rezultate și discuții . . . . .	45
3.2.3	Concluzii . . . . .	47
<b>4</b>	<b>Soluția numerică TDSE</b>	<b>49</b>
4.1	Grilă numerică . . . . .	49
4.1.1	DVR . . . . .	49
4.1.2	DVR polinomială . . . . .	51
4.1.3	Metoda FE . . . . .	51
4.1.4	FEDVR . . . . .	52
4.2	Metode explicite pentru propagarea în timp . . . . .	53
4.2.1	Metode de tip Runge – Kutta . . . . .	53
4.2.1.1	Metoda Runge –Kutta de ordinul patru cu pași de timp fixate . . . . .	54
4.2.1.2	Metoda Kutta – Merson . . . . .	54
4.3	Singularități în TDSE . . . . .	55
4.4	Metoda noastră TDSE . . . . .	56
4.4.1	Paralelizarea programului numeric . . . . .	57
4.5	Convergența rezultatelor TDSE . . . . .	58
4.5.1	Toleranță de erori . . . . .	59
4.5.2	Dimensiunea spațiului de simulare . . . . .	59
4.5.3	Densitatea grilei numerice . . . . .	59
4.5.4	Ortogonalizarea funcției de undă . . . . .	60

<b>5</b>	<b>Sisteme hidrogenoide studiate cu ajutorul modelului TDSE</b>	<b>61</b>
5.1	Excitarea și ionizarea atomului de hidrogen . . . . .	61
5.1.1	Teorie . . . . .	61
5.1.2	Rezultate și discuții . . . . .	63
5.1.3	Concluzii . . . . .	65
5.2	Ionizarea moleculei de apă . . . . .	66
5.2.1	Teorie . . . . .	68
5.2.2	Rezultate și discuții . . . . .	69
5.2.3	Concluzii și perspective . . . . .	72
<b>6</b>	<b>Ionizarea moleculelor</b>	<b>74</b>
6.1	Teorie . . . . .	74
6.1.1	Transformata Fourier a potențialului Coulombian . . . . .	74
6.1.2	Funcția de undă a stării inițiale . . . . .	75
6.1.2.1	Funcții de undă de tip LCAO-MO . . . . .	75
6.1.2.2	Funcții de undă exacte . . . . .	76
6.2	Ionizarea moleculei $H_2^+$ prin pulsuri laser ultrascurte . . . . .	77
6.2.1	Rezultate și discuții . . . . .	78
6.2.2	Concluzii și perspective . . . . .	79
6.3	Ionizarea moleculei de hidrogen prin impact cu particule încărcate . . . . .	80
6.3.1	Teorie . . . . .	80
6.3.1.1	Analogia cu pulsuri laser . . . . .	80
6.3.1.2	Soluția TDSE și calcularea densităților de probabilitate de ionizare . . . . .	82
6.3.2	Rezultate și discuții . . . . .	83
6.3.3	Concluzii . . . . .	84
<b>7</b>	<b>Concluzii finale</b>	<b>86</b>
<b>A</b>	<b>Hamiltonianul pentru o particulă încărcată aflată într-un câmp electromagnetic extern</b>	<b>91</b>
<b>B</b>	<b>Transformata Fourier a potențialului Coulombian</b>	<b>94</b>
<b>C</b>	<b>Potențialul Coulombian modificat</b>	<b>96</b>

### **Cuvinte-cheie**

- pulsuri laser intense și ultracurte
- ionizare prin tunelare / peste barieră
- MSSFA
- soluția numerică a ecuației Schrödinger dependentă de timp
- atomul de hidrogen
- pozitroniul
- moleculă de apă
- moleculă de hidrogen/ ionul molecular de hidrogen
- efecte de interferență

## Lista lucrărilor publicate

- Reviste cotate ISI

1. L. Nagy, S. Borbély and K. Póra, *Interference effects in the photoionization of molecular hydrogen*, Phys. Lett. A **327** (2004) 481–489. (impact factor: 1.454)
2. L. Nagy, S. Borbély and K. Póra, *Interference Effects in the Ionization of Diatomic Molecules*, Braz. J. Phys **36** (2006) 511-514. (impact factor: 0.494)
3. S. Borbély and L. Nagy, *Study of the interference effects in the ionization of  $H_2$  by the use of two-center wavefunctions*, Rad. Phys. Chem. **76** (2007) 516–520. (impact factor: 0.934)
4. S. Borbély, L. Nagy, K. Tőkési, *Ionization of the hydrogen atom by intense ultrashort laser pulses*, Phys. Rev. A **77** (2008) 033412. (impact factor: 2.893)
5. S. Borbély, L. Nagy, K. Tőkési, *Interaction of intense short laser pulses with positronium*, Nucl. Instr. and Meth. B **267** (2009) 386. (impact factor: 0.997)
6. S. Borbély, G. Zs. Kiss and L. Nagy, *The excitation and ionization of the hydrogen atom in strong laser fields*, Cent. Eur. J. Phys. (in press) doi:10.2478/s11534-009-0150-5. (impact factor: 0.448)
7. S. Borbély, L. Nagy, K. Tőkési, *Ionization of the water by intense ultrashort half-cycle electric pulses*, Eur. J. Phys. D (submitted in 2009).

- Alte reviste

1. S. Borbély and L. Nagy, *Resonance effects in quantum transitions induced by ultrashort laser pulses with high repetition rate*, Studia UBB Physica, **1** (2007) 53-65.
2. S. Borbély and L. Nagy, *Resonance effects in the photoionization of atoms (molecules)*, MŰSZAKI SZEMLE **41** (2008) 35-39.
3. S. Borbély, L. Nagy, D. G. Arbó, K. Tőkési, *Over-the-barrier ionization of  $H_2O$  by intense ultrashort laser pulses*, AIP Conf. Proc. **1080** (2008) 145.
4. S. Borbély, K. Póra, L. Nagy, *Non-perturbative investigation of the interference effects in the ionization of the  $H_2$  by charge particle impact*, J. Phys. Conf. Ser. **163** (2009) 012067.

# Introducere

Laboratoarele produc în mod curent pulsuri laser cu intensitățile de ordinul de  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> și cu durate de ordinul de 10 fs [1–3]. În ultimii ani, activitățile de cercetare s-au orientat către investigații ale interacțiunilor între astfel de pulsuri scurte și puternice cu materia. În timpul interacțiunii atomilor și moleculelor cu astfel de câmpuri laser apar procese noi și doar parțial înțelese. Într-o imagine foarte simplificată, interacțiunea între atomi și pulsuri laser intense și ultrascurte poate fi înțeleasă cu ajutorul modelului de trei pași numit în literatură ca “simple man’s three step model” [4]. În primul pas atomul este ionizat prin ionizare cu mai mulți fotoni (multiphoton ionization (MPI)), ionizare prin tunelare (tunneling ionization (TI)), sau prin ionizare peste barieră (over-the-barrier ionization (OBI)). Mecanismul dominant de ionizare depinde de parametrii pulsului laser. În al doilea pas pachetul de undă a electronilor liberi se deplasează sub influența câmpului laser, în timp ce, în al treilea pas pachetul de undă se poate reîntoarce în vecinătatea ionului părinte, unde interacționează cu ionul. În acest pas, pachetul de undă a electronilor liberi poate excita sau ioniza ionul părinte, sau poate fi reabsorbit, urmat de emisia a unui foton energetic (high harmonics generation (HHG)).

Subiectul tezei de doctorat este studiul teoretic al procesului de ionizare directă, care este primul pas a modelului de trei pași. Propagarea pachetului de undă al electronilor și eventuala coliziune a pachetului de undă cu ionul părinte nu este subiectul acestei lucrări. Toate modele teoretice ce investighează procesele de ionizare sunt bazate pe soluția ecuației Schrödinger dependente de timp (time dependent Schrödinger equation (TDSE)). Deoarece TDSE nu are soluție analitică nici pentru cel mai simplu sistem (atomul hidrogen în câmp electromagnetic extern) există două posibilități pentru rezolvarea TDSE. Prima posibilitate este rezolvarea numerică, directă TDSE folosind diferite metode numerice. Aceste metode numerice sunt “exacte” și produc rezultate precise, dar ele necesită calcule numerice extensive cu un cost computațional (memorie și timp de procesor) ridicat. A doua posibilitate este rezolvarea TDSE folosind aproximări, care au avantajul că necesită mai puține computații dar produc rezultate mai puțin exacte.



În prima parte a tezei de doctorat am prezentat un model aproximativ, care poate fi considerat ca o alternativă viabilă a modelelor Coulomb-Volkov (CV). Modelul nostru teoretic se bazează pe soluția iterativă de ordinul întâi a TDSE în spațiul impulsurilor. Acest model este asemănător cu modelul strong-field approximation (SFA) [5]. Cea mai importantă diferență dintre acestea este, că calculele noastre sunt efectuate în spațiul impulsurilor. Prin urmare, pentru a distinge modelul nostru de SFA tradițional, noi numim abordarea noastră momentum-space strong-field approximation (MSSFA). Avantajul modelului MSSFA constă în simplitatea lui și în faptul că în procesul de ionizare stările legate sunt implicit incluse. Deficiența principală a modelului este că se consideră potențialul Coulombian între electronul activ și nucleu ca o perturbație de ordinul întâi, ceea ce limitează aplicabilitatea modelului la intensități mici ale pulsului laser. Bazele teoretice ale modelului sunt prezentate în capitolul 2, în timp ce în capitolul 3, viabilitatea modelului este testată prin aplicarea lui de a studia ionizarea sistemelor hidrogenoide prin pulsuri laser intense și ultrascurte.

În a doua parte a tezei un model numeric este prezentat pentru rezolvarea TDSE. În acest model funcțiile de undă dependente de timp sunt date ca combinații lineare ale funcțiilor de undă Volkov. Bazată pe TDSE, a fost stabilită o ecuație integro-diferențială pentru coeficienți de expansiune. Acești coeficienți de expansiune au fost discretizate pe o grilă numerică de tip ‘finite element discrete variable representation’(FEDVR) și au fost propagate în timp folosind metoda Kutta-Merson. Avantajul modelului prezentat este că coeficienții de expansiune sunt cuplate numai prin interacția Coulombiană. Însă această simplificare vine cu prețul pierderii simplității cuplărilor, care complică calculele numerice. Cel mai mare avantaj al modelului iese în evidență când este aplicat pentru a studia ionizarea moleculelor, unde potențialul Coulombian este multicentral. Aceste potențiale multicentrale au mai multe singularități (câte una pentru fiecare centru) și tratarea acestor singularități în spațiul coordonatelor este grea pentru că ele nu sunt localizate în centrul sistemului de coordonate. În modelul nostru numeric aceste singularități pot fi eliminate foarte ușor pentru că ele sunt implicit reduse la numai o singularitate.

# TDSE în spațiul impulsurilor

În acest capitol este analizată TDSE dată pentru un sistem atomic aflat în câmpul electromagnetic extern, și sunt prezentate soluțiile iterative de ordinul zero și întâi.

## Considerații generale

Este investigată evoluția unui sistem atomic în prezența unui puls laser intens și ultrascort . Sistemul atomic studiat este format dintr-un electron activ care se mișcă într-un potențial Coulombian,  $V(\vec{r})$ , care descrie interacțiunea între electronul activ și restul sistemului atomic. În literatura de specialitate există două metode alternative [5] pentru descrierea teoretică a pulsurilor laser. Prima specifică câmpul electric, în timp ce al doilea specifică potențialul vectorial al câmpului electromagnetic. În calculele noastre pulsul laser linear polarizat este definit prin câmpul lui electric:

$$\vec{E}(t) = \begin{cases} \hat{\varepsilon} E_0 \sin \left[ \omega \left( t - \frac{\tau}{2} \right) - \frac{\pi}{2} \right] \sin^2 \left( \frac{\pi t}{\tau} \right) & \text{dacă } t \in [0, \tau] \\ 0 & \text{altundeva} \end{cases}, \quad (1)$$

unde  $\hat{\varepsilon}$  este vectorul de polarizare,  $\omega$  este frecvența unei purtătoare,  $\tau$  este durata pulsului, și  $E_0$  este amplitudinea câmpului electric. Forma unui puls laser, tipic în calculele noastre, este prezentată în figura 1.

Hamiltonianul sistemului atomic studiat poate fi exprimat ca

$$\hat{H} = \frac{\hat{p}^2}{2} + \vec{r} \cdot \vec{E}(t) + V(\vec{r}), \quad (2)$$

unde  $\vec{r} \cdot \vec{E}(t)$  este potențialul de interacțiune între electronul activ și pulsul laser exprimat în etalonul de lungime.

Folosind expresia (2) pentru Hamiltonian, TDSE care descrie evoluția în timp a electronului activ poate fi scrisă ca

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, t) = \left[ \frac{\hat{p}^2}{2} + \vec{r} \cdot \vec{E}(t) + V(\vec{r}) \right] \Psi(\vec{r}, t), \quad (3)$$

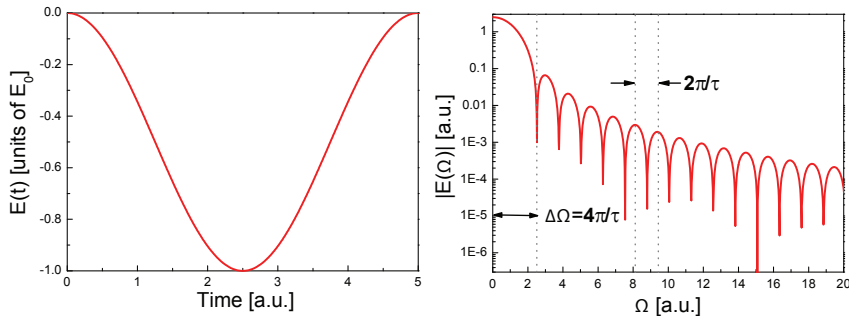


Figura 1: Forma pulsului în funcție de timp (a) și în funcție de frecvență (b). Parametrii pulsului sunt:  $\omega = 0.05$  u.a.,  $E_0 = 1$  u.a., și  $\tau = 5$  u.a.

unde  $\Psi(\vec{r}, t)$  este funcția de undă dependentă de timp. În abordarea noastră această funcția de undă este căutată sub forma

$$\Psi(\vec{r}, t) = \int d\vec{k} c(\vec{k}, t) \Psi_V(\vec{k}, \vec{r}, t), \quad (4)$$

unde  $\Psi_V(\vec{k}, \vec{r}, t)$  sunt funcții de undă Volkov. Substituind funcția de undă dată de ecuația (4) în TDSE exprimată de ecuația (3), obținem următoarea ecuație integro-diferențială pentru coeficienții de expansiune  $c(\vec{k}, t)$ :

$$\frac{\partial}{\partial t} c(\vec{k}, t) = -\frac{i}{(2\pi)^3} e^{\frac{i}{2}[k^2 t + 2\vec{k} \cdot \vec{F}(t)]} \int d\vec{p} c(\vec{p}, t) e^{-\frac{i}{2}[p^2 t + 2\vec{p} \cdot \vec{F}(t)]} I(\vec{p} - \vec{k}), \quad (5)$$

unde

$$I(\vec{s}) = \int d\vec{r} V(\vec{r}) e^{i\vec{s} \cdot \vec{r}} \quad (6)$$

este transformata Fourier a potențialului Coulombian.

Indiferent de metoda folosită pentru rezolvarea ecuației (5), condiția inițială este necesară

$$c(\vec{k}, t = 0) \equiv c^{(0)}(\vec{k}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \left\langle e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \mid \psi_i(\vec{r}) \right\rangle, \quad (7)$$

unde  $\psi_i(\vec{r})$  este funcția de undă ce descrie starea inițială.

## Soluția Volkov

Ecuția (5) poate fi rezolvată cel mai simplu prin neglijarea completă a potențialului Coulombian ( $V(\vec{r}) = 0$ ), care poate fi considerată ca soluția iterativă de ordinul zero a ecuației (5):

$$c(\vec{k}, t) = c(\vec{k}, t = 0) \equiv c^{(0)}(\vec{k}). \quad (8)$$

Această soluție este cunoscută în literatura de specialitate ca modelul Volkov sau sudden SFA [6].

## Soluția MSSFA

În mai multe situații modelul Volkov (vezi ecuația (8)) nu produce rezultate suficient de precise și sunt necesare aproximații de ordin superior. Aproximația iterativă de ordinul întâi a ecuației (5) poate fi dată ca

$$\frac{\partial}{\partial t} c^{(1)}(\vec{k}, t) = -\frac{i}{(2\pi)^3} e^{\frac{i}{2}[k^2 t + 2\vec{k} \cdot \vec{F}(t)]} \int d\vec{p} c^{(0)}(\vec{p}) e^{-\frac{i}{2}[p^2 t + 2\vec{p} \cdot \vec{F}(t)]} I(\vec{p} - \vec{k}). \quad (9)$$

Avantajul acestei aproximații este că elimină cuplarea directă a coeficienților de expansiune  $c(\vec{k}, t)$ , ceea ce face rezolvarea ecuației (5) mult mai ușoară și rapidă. Aproximația noastră este similară cu aproximația SFA folosită de Milošević *et al* [5]. Prin urmare, pentru a distinge modelul nostru de SFA tradițional, noi numim abordarea noastră momentum-space strong-field approximation (MSSFA).

## Densitatea de probabilitate a ionizării

Folosind unde plane pentru descrierea electronilor liberi cu impuls  $\vec{k}$ , densitatea de probabilitate a ionizării poate fi calculată ca

$$\frac{dP}{d\vec{k}} = (2\pi)^3 \left| c(\vec{k} - \vec{A}(\tau), \tau) \right|^2. \quad (10)$$

Funcțiile de undă plane nu sunt ortogonale cu funcțiile de undă ale stărilor legate, de aceea densitatea de probabilitate a ionizării calculată bazându-se pe ecuația (10) este contaminată cu contribuția acestor stări legate. Rezultatele pot fi îmbunătățite prin eliminarea stărilor legate din funcția de undă dependentă de timp  $\Psi(\vec{r}, t)$  prin algoritmul Gram-Schmidt.

# Aplicații ale modelului MSSFA

În prima parte a capitolului precizia modelului MSSFA este verificată prin aplicarea lui pentru a studia ionizarea atomului de hidrogen prin pulsuri laser ultracurte. În a doua parte a capitolului modelele MSSFA și VOLKOV sunt extinse în scopul studierii a ionizării sistemelor hidrogenoide. A fost observată o lege de scalare valabilă pentru densitatea de probabilitate a ionizării.

## Ionizarea atomului de hidrogen

Modelele MSSFA și VOLKOV au fost folosite pentru a studia ionizarea atomului de hidrogen prin mecanismul de ionizare peste barieră [7]. Procesul de ionizare în acest regim poate fi considerat ca un proces clasic și poate fi descris cu ajutorul modelelor clasice cum ar fi modelul classical trajectory Monte Carlo method (CTMC). Unde rezultate “exacte” publicate [8] nu sunt disponibile, rezultate CTMC vor fi folosite ca referință. Lângă testarea preciziei modelului MSSFA am mai studiat efectul potențialului Coulombian asupra procesului de ionizare prin analizare densităților de probabilitate a ionizării.

## Rezultate

Calcululele au fost efectuate folosind pulsuri laser cu durată  $\tau$  de 3 u.a., 5 u.a., 10 u.a. la două intensități ( $E_0 = 1$  u.a., și  $E_0 = 10$  u.a.). Frecvența unei purtătoare este fixată la valoarea de  $\omega = 0.05$  u.a. Aceste valori ale parametrilor pulsurilor limitează valoarea parametrului Keldysh sub 0.05, care sunt valori tipice pentru ionizarea peste barieră.

Au fost calculate densități de probabilitate de ionizare dublu diferențiale folosind modelele Volkov model (VOLKOV), MSSFA, și CTMC [7] și ele sunt prezentate pe figura 2 în funcție de impulsul și unghiul de emisie a electronilor emiși. La o primă vedere se poate observa, că pe scară largă toate cele trei modele prezic aceeași densități de probabilitate. În fiecare abordare electronii sunt expulzați cu probabilitate maximă de de-a lungul vectorului de polarizare  $\hat{\epsilon}$  cu energia  $\vec{A}(\tau)^2/2$ , care este dobândită

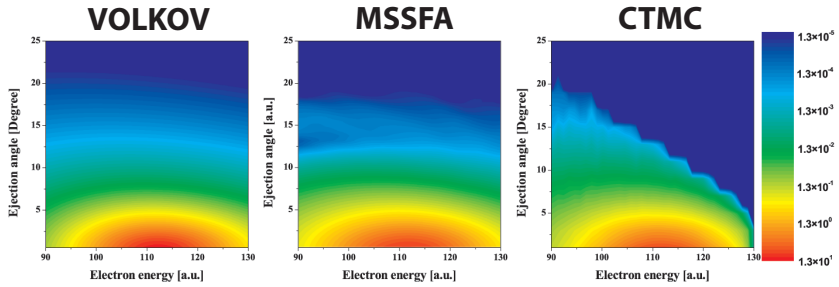


Figura 2: Densitatea de probabilitate a ionizării în funcție de impulsul și unghiul de emisie a electronilor emiși. Parametrii pulsului laser sunt fixate:  $\omega = 0.05$  u.a.,  $\tau = 5$  u.a. și  $E_0 = 1$  u.a.

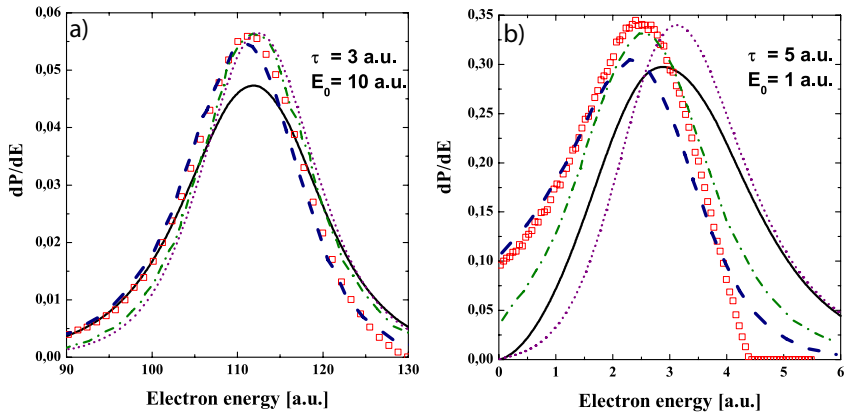


Figura 3: Densitatea de probabilitate a ionizării în funcție de energia electronilor emiși. Linie continuă: MSSFA. Linie punctată: VOLKOV. Pătrate: CTMC. Linie întreruptă: TDSE [6]. Linie mixtă: CV [6].

prin transferul de impuls  $\vec{A}(\tau)$  de la câmpul laser. După o analiză detaliată diferențe importante poate fi observate. În cazul modelelor MSSFA și CTMC maximele densităților de probabilitate sunt deplasate către energii mai mici. Această deplasare este cauzată de atracția Coulombiană între electronul activ și restul sistemului, care este neglijată în cazul modelului VOLKOV.

Spectrele de ionizare sunt calculate din densitățile de probabilitate ale

ionizării dublu diferențiale prin integrarea după unghiul de emisie. În figura 3 aceste densități de probabilitate integrate  $dP/dE$  sunt prezentate în cazul modelelor MSSFA, VOLKOV și CTMC, împreună cu rezultatele obținute de Duchateau et. al. [6] folosind modelele TDSE și CV. Precizia rezultatelor MSSFA și CV este măsurată prin compararea lor cu rezultate TDSE, care sunt considerate cele mai precise.

Un acord foarte bun a fost găsit între rezultatele MSSFA și TDSE la intensități mari ale pulsului laser (vezi figura 3 (a)), unde impulsul transferat de pulsul laser către electronul activ a fost mare, în timp ce, la intensități mai mici, acordul între rezultatele MSSFA și TDSE a fost acceptabilă (vezi figura 3 (b)), comparabilă cu acordul între rezultate CV și TDSE. În cadrul tezei a fost dovedit că modelul MSSFA produce rezultate mai precise decât modelul CV, cu excepția cazului în care transferul de impuls este mic. Principala deficiență a modelului MSSFA este că folosește unde plane pentru descrierea electronilor liberi, care sunt imprecise pentru electroni cu energie mică.

## Disocierea pozitroniului

Dezvoltarea recentă a fizicii pozitroniului [9, 10] a făcut posibilă investigarea experimentală a interacțiunii dintre pozitroniu și pulsuri laser scurte [9]. Disocierea pozitroniului a fost studiată de mai multe grupuri [11, 12], dar aceste studii au focusat pe ionizare prin mai mulți fotoni [12]. Investigarea spectrelor de ionizare în regimul de ionizare peste barieră este un subiect de interes, deoarece în acest regim mecanismul de ionizare este complet diferit față de regimul cu mai mulți fotoni. Noi am studiat teoretic disocierea pozitroniului folosind modelele VOLKOV, MSSFA, și CTMC [13]. În cadrul modelului VOLKOV densitatea de probabilitate a ionizării poate fi obținută analitic

$$\frac{dP}{dk} = (2\pi)^3 \left(\frac{q}{\pi}\right)^5 \frac{1}{\left[q^2 + \left(\vec{k} + \vec{A}(\tau)\right)^2\right]^4}, \quad (11)$$

unde  $q = \mu Z_{eff}$  cu  $\mu$  fiind masa redusă a pozitroniului și  $Z_{eff}$  fiind sarcina efectivă a nucleului. Folosind relația (11), două legi de scalare pentru densitatea de probabilitate pot fi obținute:

- Electronii sunt emiși cu probabilitatea maximă având impulsul  $\vec{k} = \vec{A}(\tau)$ .

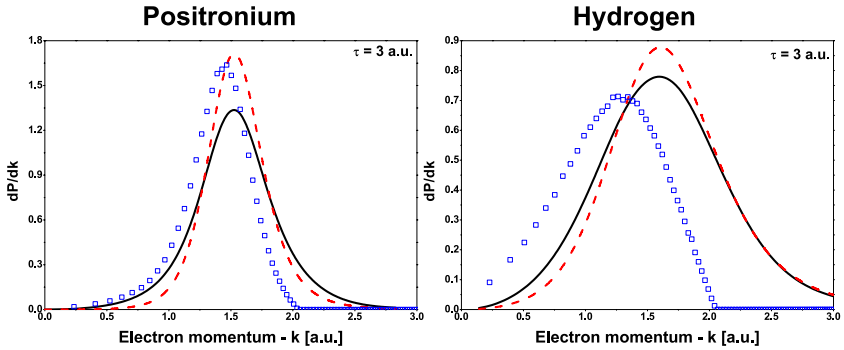


Figura 4: Densitatea de probabilitate a ionizării în funcție de impulsul electronilor emiși. Linie continuă: MSSFA. Linie întreruptă: VOLKOV. Pătrate: CTMC

- Lățimea distribuției a fotoelectronilor este direct proporțională cu  $\mu$  și  $Z_{eff}$ .

Valabilitatea acestor legi de scalare a fost verificată folosind densități de probabilitate calculate cu ajutorul modelelor MSSFA și CTMC. Pe figura 4 poate fi observată că prima lege de scalare nu mai este valabilă în cazul modelelor MSSFA și CTMC pentru că poziția maximumului probabilității de ionizare este influențată și de potențialul Coulombian, care a fost neglijată în cazul modelului VOLKOV. În tabelul 3.1 este trecută lățimea distribuției fotoelectronilor obținute în cadrul modelelor MSSFA, VOLKOV, și CTMC și se poate observa că a doua lege de scalare este valabilă și în cazul modelelor MSSFA și CTMC.

Tabela 3.1: Lățimea distribuției fotoelectronilor obținute în cadrul modelelor MSSFA, VOLKOV, și CTMC

	MSSFA			H	Volkov		CTMC		
	H	H/2	Ps		H/2	Ps	H	H/2	Ps
$\tau = 3$	1.164	0.582	0.632	0.998	0.449	0.507	1.039	0.519	0.515
$\tau = 5$	1.230	0.615	0.668	1.011	0.505	0.508	1.038	0.519	0.506
$\tau = 10$	1.229	0.614	0.692	1.017	0.508	0.509	1.090	0.545	0.512



# Soluția numerică a TDSE

În prima parte a capitolului sunt prezentate metodele numerice, care au fost folosite la rezolvare TDSE. Aici este introdusă grila numerică FEDVR pe care coeficienții de expansiune  $c(\vec{k}, t)$  au fost discretizate. Pe lângă grilă este prezentată și metoda care a fost folosită la propagarea coeficienților de expansiune în timp. În a doua parte a capitolului este analizată eficiența programului paralelizat și convergența sa.

## Grilă numerică

Una din cea mai importantă parte a unei abordări numerice “exacte” este grila numerică pe care TDSE este discretizată. În modelul nostru o grilă numerică ‘finite element discrete variable representation’ (FEDVR) este folosită. Abordarea FEDVR este bazată pe metoda elementelor finite (FE), care implică divizarea spațiului configurațiilor în elemente finite. În fiecare element finit funcția de undă (în cazul nostru coeficienții de expansiune) este reprezentată folosind o bază locală ‘discrete variable representation’ (DVR) (vezi figura 5). În acest mod flexibilitatea metodei FE este combinată cu precizia metodei DVR. Pentru a asigura continuitatea funcției de undă, punctele limitrofe ale subgrilelor vecine trebuie să se suprapună.

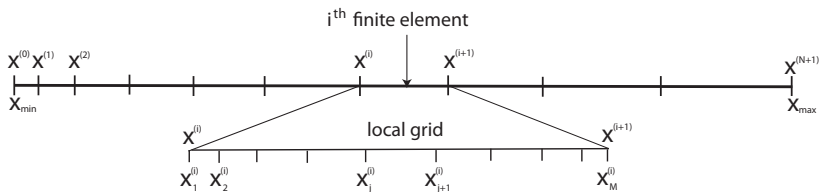


Figura 5: Grilă numerică FEDVR.

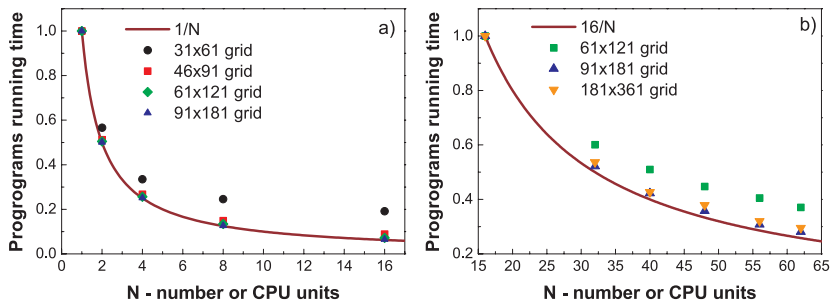


Figura 6: Timpul de rulare a programului pentru diferite grile numerice în funcție de numărul procesoarelor folosite. Măsurătorile au fost făcute pe (a) un server cu 16 procesoare și pe (b) un cluster computațional cu 88 procesoare, unde serverele individuale sunt conectate cu fibră optică (cu plăci de rețea Myrinet).

## Propagare în timp

Alt element important al soluției “exacte” numerice este propagarea în timp a funcției de undă pe grila numerică aleasă. În calculele noastre coeficienții de expansiune sunt propagate în timp folosind metoda Kutta-Merson. În fiecare pas de timp eroarea relativă estimată este calculată în fiecare punct al grilei numerice și maximul acestor erori ( $\epsilon_m$ ) este considerată ca eroarea globală a pasului de timp. Lungimea fiecărui pas de timp a fost aleasă în așa fel, încât eroarea estimată ( $\epsilon_m$ ) să fie mai mică decât toleranța de eroare ( $\epsilon_{tol}$ ) fixată prealabil.

## Paralelizarea programului numeric

În timpul rezolvării numerice a ecuației (5), în fiecare pas cel mai mult timp de procesor este necesar pentru evaluarea integralului care cuplează coeficienții de expansiune. În fiecare punct al grilei numerice o integrală trebuie calculată. Aceste integrale pot fi calculate independent una de cealaltă, care oferă posibilitatea paralelizării. În practică aceste integrale sunt calculate în paralel pe diferite nuclee de procesor, după ce valorile obținute sunt împărțite între nuclee. Comunicarea între procesoare a fost realizată folosind OpenMPI, care este o implementare a standardului MPI-2. Eficiența programului paralelizat a fost testată folosind până la 62 nuclee de procesor (vezi figura 6).

## Convergența rezultatelor TDSE

Fiabilitatea unei metode numerice este asigurată în cazul în care rezultatele obținute sunt convergente, adică nu se schimbă prin modificarea parametrilor numerici. Cel mai important rezultat dintr-o soluție numerică a TDSE este funcția de undă dependentă de timp, care mai târziu este folosit pentru a calcula observabile fizice. Dacă convergența funcției de undă este asigurată, în cazul nostru a coeficienților de expansiune, atunci convergența cantităților fizice calculate este asigurată în mod automat. Precizia și convergența coeficienților de expansiune la sfârșitul simulărilor este influențată în principal de următorii trei parametri:

- i)  $\epsilon_{tol}$  - valoarea toleranței de eroare folosită la propagarea în timp.
- ii)  $k_{max}$  - dimensiunea a spațiului de simulare.
- iii)  $N_{fun}/dk$  - densitatea grilei numerice, unde  $N_{fun}$  este numărul funcțiilor de bază DVR și  $dk$  este lărgimea elementelor finite.

Convergența rezultatelor numerice este, de asemenea influențată și de parametrii pulsului laser. Un puls mai lung presupune mai mulți pași de propagare în timp și se pot acumula mai multe erori numerice. Un puls mai intens presupune un transfer de impuls mai mare către electronul activ, indicând un spațiu de simulare mai mare într-o abordare numerică. Deci, dacă convergența rezultatelor este verificată pentru cel mai lung și mai intens puls laser utilizat în calculele noastre, atunci convergența pentru un puls mai scurt și/sau mai puțin intens este asigurată în mod automat.

# TDSE aplicată la sisteme hidrogenice

În prima parte a capitolului modelul TDSE este testat prin studierea excitării și ionizării atomului de hidrogen, în timp ce în a doua parte a capitolului ionizarea moleculei de apă este investigată în cadrul aproximației hidrogenice.

## Ionizarea și excitarea a atomului de hidrogen

În scopul testării abordării noastre numerice, am investigat comportamentul atomului de hidrogen în timpul interacțiunii sale cu pulsuri laser scurte [14]. În modelul nostru TDSE, funcția de undă dependentă de timp este discretizată pe o grilă numerică FEDVR, în timp ce aceasta este propagată în timp folosind metoda Kutta–Merson. Studiind probabilitatea de ocupare a orbitalilor atomici  $2s$  și  $2p$ , am observat că tranziția  $1s \rightarrow 2p$  are loc mult mai devreme decât tranziția  $1s \rightarrow 2s$ . Acest lucru poate fi explicat prin faptul, că pentru tranziția  $1s \rightarrow 2s$  electronul trebuie să absoarbă doi fotoni, în timp ce pentru tranziția  $1s \rightarrow 2p$  electronul trebuie să absoarbă numai un foton. Prin analizarea probabilităților de ocupare a nivelelor atomice legate am constatat că ele joacă un rol important în procesul de ionizare, cea ce a mai fost confirmată și de alte lucrări [15].

A fost calculată densitatea de probabilitate a ionizării și a fost identificat mecanismul de ionizare dominant. În cazul intensităților mari, mecanismul dominant era ionizarea prin tunelare și ionizarea peste barieră. Cu toate acestea, și ionizarea prin absorbirea unui singur foton a fost observată. Am comparat densități de probabilitate a ionizării calculate de noi cu calcule “exacte” [6], și a fost găsită un acord bun. Unele discrepanțe apar pentru electronii emiși cu energii mici, dar acestea pot fi corectate prin utilizarea funcțiilor de undă Coulomb exacte pentru descrierea stării finale.

## Ionizarea moleculei de apă

Având în vedere dezvoltarea recentă a tehnologiei, pulsuri laser ultrascurte sunt utilizate pe scară largă în cercetarea medicală [16] și în aplicații [17]. În cele mai multe dintre aceste aplicații pulsul laser interacționează cu țesuturi biologice care conțin ca componentă principală apă. Prin urmare, majoritatea proceselor induse de pulsuri laser în țesuturile biologice pot fi explicate în baza investigației interacțiunii între molecula  $\text{H}_2\text{O}$  și câmpul laser extern. A fost recent demonstrat experimental că, în regimul pulsurilor ultrascurte ( $< 10$  fs) disocierea moleculară este neglijabilă [18], iar procesul dominant este de ionizare cu recoliziune. Mai mult, a fost verificat [18], că în acest regim procesul principal este de ionizare simplă. Lipsa investigațiilor experimentale și teoretice a ionizării apei în acest regim ultrascurt solicită studii suplimentare.

În această lucrare ionizarea moleculei de apă prin pulsuri electrice “half-cycle” este studiată [19]. Calculele au fost făcute în cadrul aproximației hidrogenice folosind modele clasice și cuantice, considerând numai un singur electron activ. În cadrul aproximației hidrogenice electronul  $1b_1$  este inițializat pe un orbital hidrogenic  $2p_z$ . Sarcina efectivă a nucleului ( $Z_{eff}$ ) este calculată folosind valoarea experimentală a potențialului de ionizare ( $E_i = 0.463$  u.a.). Calculele au fost făcute pentru pulsuri cu durata  $\tau$  de 1 u.a., 3 u.a., 5 u.a. la două intensități ( $E_0 = 0.44$  u.a., și  $E_0 = 1$  u.a.). Densitatea de probabilitate a ionizării este calculată bazată pe relația (10) și folosind coeficienții de expansiune obținuți în cadrul modelelor TDSE și VOLKOV  $c(\vec{k}, t)$ , împreună cu coeficienții de expansiune ortogonalizați TDSE (modelul TDSE-O) și Volkov (modelul VOLKOV-O). Densitatea de probabilitate a ionizării în cadrul modelului CTMC este calculată folosind traiectorii clasice simulate. Densitățile de probabilitate a ionizării prezise de modelele cuantice și clasice sunt în concordanță calitativă (vezi figura 7). În fiecare abordare electronii sunt expulzați cu o probabilitate maximă de-a lungul vectorului de polarizare cu impulsul în jurul  $\vec{A}(\tau)$ , care este impulsul transferat de pulsul electric către electronul activ. O structură cu două vârfuri a densităților de probabilitate se poate observa în cazul modelelor TDSE și VOLKOV. Aceasta este amprenta structurii funcției de undă a stării inițiale. În cazul modelelor TDSE-O și VOLKOV-O o structură cu “creste” paralele se poate observa în densitatea de probabilitate a ionizării, care au fost identificate ca vârfuri de ionizare cu un singur foton. Ele apar datorită formei speciale a pulsului electric și sunt artefacte numerice. Spectrele de ionizare au fost obținute integrând den-

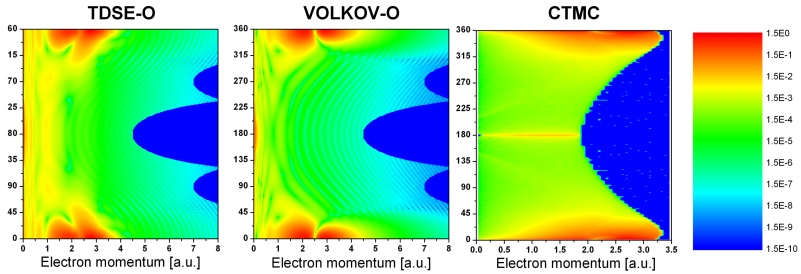


Figura 7: Densitatea de probabilitate a ionizării în planul  $yOz$  în funcție de impulsul și unghiul de emisie (unghiul de emisie este măsurat față de vectorul de polarizare  $\hat{\epsilon}$ , care coincide cu axa  $Oz$ ) a electronilor emiși. Parametrii pulsului electric sunt  $E_0 = 1$  u.a. și  $\tau = 5$  u.a.

sitatea de probabilitate a ionizării după unghiul de emisie a electronilor.

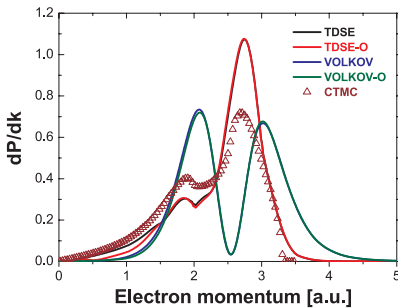


Figura 8: Densitate de probabilitate a ionizării în funcție de impulsul electronilor emiși pentru un puls electric cu parametrii  $E_0 = 1$  u.a. și  $\tau = 5$  u.a.

Modelele TDSE and VOLKOV furnizează calitativ aceleași rezultate. În ambele cazuri, curba  $dP/dk$  are două maxime în jurul aceluiași impuls al electronului emis. Pe lângă aceste similitudini, există discrepanțe semnificative. În cazul modelului VOLKOV ambele maxime au aceeași înălțime, în timp ce în cazul modelului TDSE al doilea maxim este considerabil mai înalt față de prima. Această diferență de înălțime a maximelor pot fi observate, de asemenea, și în cazul modelului CTMC și poate fi explicat ca urmare a interacțiunii Coulombiene între nucleu și electronul activ, care este absentă din modelul VOLKOV. Am observat un acord bun între rezultatele TDSE și CTMC (vezi figura 8) numai în cazul pulsurilor electrice pentru care transferul de impuls către electronul activ a fost mare.

# Ionizarea moleculelor

În acest capitol a fost studiată ionizarea moleculei și a ionului molecular de hidrogen prin impact cu fotoni și particule încărcate în cadrul modelelor VOLKOV și TDSE considerând un singur electron activ. Datorită caracterului bicentric al acestor sisteme atomice efectele de interferență apar în spectrul lor de ionizare. Într-o imagine simplificată cele două nuclee pot fi considerate ca surse de electroni, și electronii emiși de cele două surse pot interfera producând oscilații în densitatea de probabilitate a ionizării. Aceste efecte de interferență au fost prezise în 1966 de Cohen și Fano [20]. Mult mai târziu, aceste efecte au fost observate

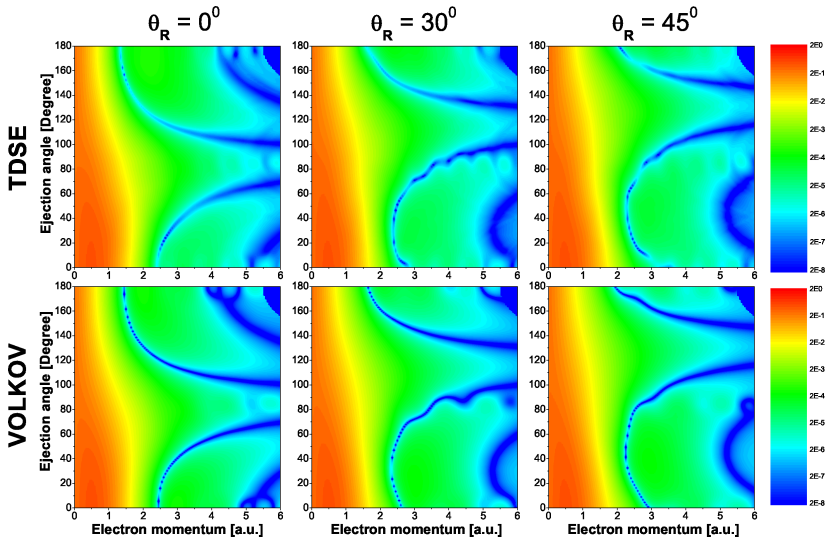


Figura 9: Densitatea de probabilitate a ionizării în funcție de impulsul și unghiul de emisie a electronilor liberi calculate pentru ionizare moleculei  $H_2^+$  prin pulsuri laser ultrascurte. Unghiul de emisie a electronilor și orientarea axei moleculară ( $\theta_R$ ) este măsurat față de vectorul de polarizare a pulsului laser.

experimental de Stolterfoht et. al. [21] la ionizarea moleculei de hidro-

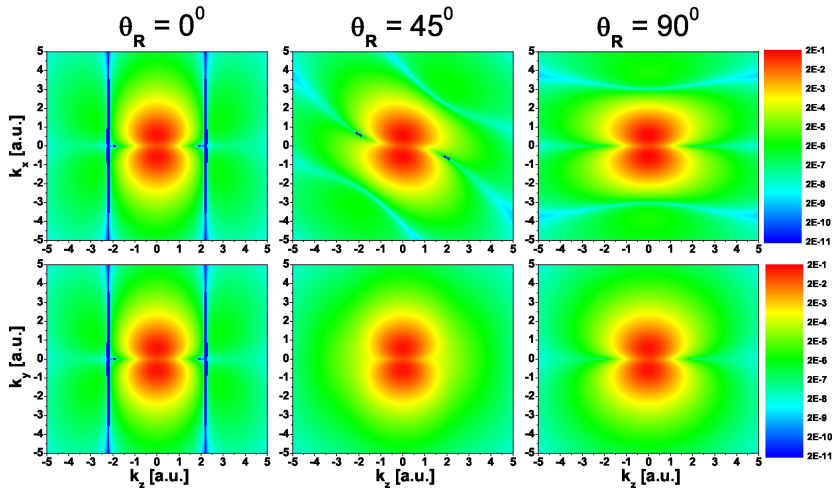


Figura 10: Secțiunea eficace de ionizare în planurile  $xOz$  și  $yOz$  în funcție de impulsul electronilor emiși pentru diferite orientări  $\theta_R$  ale axei moleculare.

gen prin impact cu particule încărcate. Această descoperire a declanșat investigații extinse experimentale și teoretice a acestor efecte interferență în cazul ionizării a moleculelor biatomice prin impact cu fotoni [22, 23] și cu particule încărcate [21, 24, 25]. În lucrările noastre anterioare am studiat aceste efecte de interferență în regimul perturbativ folosind diferite etaloane, incluzând și o analiză a undelor parțiale.

În această lucrare am studiat aceste efecte de interferență cu ajutorul modelelor neperturbative TDSE și VOLKOV, care au fost folosite pentru investigarea ionizării moleculelor biatomice prin impact cu fotoni și cu particule încărcate. În densitatea de probabilitate a ionizării moleculei de hidrogen calculate cu ajutorul modelelor TDSE și VOLKOV se observă minime adânci (vezi figura 9), care sunt o evidență directă a interferenței destructive. Un acord foarte bun se observă între modelele TDSE și VOLKOV în ceea ce privește descrierea acestor minime de interferență. Poziția acestor minime este definită de soluția ecuației  $\cos \left[ \vec{R}_0 \cdot (\vec{k} - \Delta \vec{p}) \right] = 0$ , ceea ce este în acord cu o formulă empirică obținută de Stolterfoht et. al. [21]. În cazul ionizării prin impact cu par-



ticile încărcate pentru fiecare valoare a parametrului de impact poate fi asociat un puls electric [28,29]. Folosind acest puls electric, densitatea de probabilitate a ionizării poate fi calculat în cadrul modelelor VOLKOV și TDSE. Pentru a putea compara rezultatele noastre cu date experimentale, trebuie să calculăm secțiunea eficace de ionizare, care este obținută integrând densitatea de probabilitate a ionizării după toate valorile posibile ale parametrului de impact. Așa cum se poate observa în figura 10, această integrare după parametrul de impact “distruge” minime de interferență cu excepția planului  $xOz$ , care este definită de axa moleculară și de direcția de impact a particulei încărcate. Acest rezultat poate fi util în proiectarea de noi experimente pentru investigarea ionizării a moleculei  $H_2$  cu axa moleculară fixată pentru că prezice exact unde trebuie căutată evidența directă a efectelor de interferență. Toate experimentele care investighează ionizarea moleculei de hidrogen prin impact cu particule încărcate au fost efectuate folosind molecule cu axa moleculară orientată aleator, care distruge minimele de interferență observabile în secțiunile de eficace prezentate în figura 10. În secțiunea eficace calculată pentru molecule cu orientare aleatoare minimele de interferență nu mai sunt observabile direct, dar urma lor există, și indirect ele pot fi evidențiate prin împărțirea secțiunii eficace moleculare cu cea atomică. Secțiunea eficace atomică a fost calculată pentru un atom de hidrogen model cu sarcină efectivă egală cu sarcina efectivă a nucleului molecular.

# Concluzii

În această teză de doctorat am studiat ionizarea directă a atomilor și a moleculelor prin pulsuri laser intense și ultrascurte. Proprietățile principale ale procesului de ionizare împreună cu cele mai frecvent folosite modele teoretice sunt prezentate în capitolul 1. În investigațiile noastre am folosit două modele teoretice care sunt bazate pe rezolvarea ecuației Schrödinger dependente de timp (TDSE).

Primul model, modelul MSSFA, este soluția iterativă de ordinul întâi a TDSE. Modelul MSSFA este prezentată în capitolul 2, în timp ce în capitolul 2 modelul este folosit pentru a studia ionizarea sistemelor hidrogenice prin pulsuri laser. În literatura de specialitate modelele CV sunt considerate ca fiind cele mai eficiente folosite pentru descrierea ionizării directe în câmpuri laser intense. În cadrul acestei lucrări am arătat că modelul MSSFA produce rezultate mai precise decât modelul CV în cazul în care intensitatea câmpului laser și impulsul electronilor emiși a fost mare. Am mai arătat, că în cazul sistemelor hidrogenoide lărgimea densității de probabilitate a ionizării este direct proporțională cu sarcina electrică efectivă a nucleului și cu masa redusă a sistemului.

Al doilea model, modelul TDSE, este bazat pe rezolvarea “exactă”, numerică a TDSE în spațiul impulsurilor. În capitolul 4 sunt prezentate detaliile legate de abordarea noastră numerică, în timp ce în capitolul 5 precizia modelului este testată, unde modelul TDSE este folosit pentru investigarea ionizării sistemelor hidrogenoide și un acord excelent a fost găsit cu alte calcule numerice “exacte” [6]. În capitolul 7 modelul TDSE a fost aplicat pentru a studia ionizarea moleculelor biatomice prin impact cu fotoni și cu particule încărcate. În ambele cazuri, am observat minime adânci în densitatea de probabilitate a ionizării, care este o evidență directă a interferenței destructive. În cazul ionizării prin impact cu particule încărcate am mai arătat că în secțiune eficace de ionizare aceste minime de interferență se pot observa numai în planul  $xOz$ , care este definită de axa moleculară și de direcția de impact a particulei încărcate.

## Bibliografie

- [1] T. Brabec and F. Krausz. *Rev. Mod. Phys.* (2000) **72** 545–591.
- [2] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, *et al.* *Opt. Lett.* (2003) **28** 1987–1989.
- [3] M. Y. Shverdin, D. R. Walker, D. D. Yavuz, G. Y. Yin, *et al.* *Phys. Rev. Lett.* (2005) **94** 033904.
- [4] P. B. Corkum. *Phys. Rev. Lett.* (1993) **71** 1994–1997.
- [5] D. B. Milošević, G. Paulus, D. Bauer, and W. Becker. *J. Phys. B-At. Mol. Opt.* (2006) **39** R203–R262.
- [6] G. Duchateau, C. Illescas, B. Pons, E. Cormier, *et al.* *J. Phys. B-At. Mol. Opt.* (2000) **33** L571–L576.
- [7] S. Borbély, K. Tőkési, and L. Nagy. *Phys. Rev. A* (2008) **77** 033412.
- [8] G. Duchateau, E. Cormier, and R. Gayet. *Eur. Phys. J. D* (2000) **11** 191.
- [9] P. Baling, D. Fregenal, T. Ichioka, H. Knudsen, *et al.* *Nucl. Instr. and Meth. B* (2004) **221** 200.
- [10] S. Brawley, J. Beale, S. Armitage, D. Leslie, *et al.* *Nucl. Instr. and Meth. B* (2008) **266** 497.
- [11] L. B. Madsen and P. Lambropoulos. *Phys. Rev. A* (1999) **59** 4574–4579.
- [12] V. Rodríguez. *Nucl. Instr. and Meth. B* (2006) **247** 105.
- [13] S. Borbély, K. Tőkési, and L. Nagy. *Nucl. Instr. Meth. B* (2009) **267** 386–389.
- [14] S. Borbély, G. Z. Kiss, and L. Nagy. *Cent. Eur. J. Phys.* (2010) **in press**.
- [15] V. D. Rodríguez, E. Cormier, and R. Gayet. *Phys. Rev. A* (2004) **69** 053402.
- [16] H. Hirase, V. Nikolenko, J. H. Goldberg, and R. Yuste. *J. Neurobiol.* (2002) **51** 237–247.
- [17] I. Ratkay-Traub, T. Juhasz, C. Horvath, C. Suarez, *et al.* *Ophthalmology Clinics of North America* (2001) **14** 347–355.
- [18] D. Mathur, F. A. Rajgara, A. K. Dharmadhikari, and J. A. Dharmadhikari. *Phys. Rev. A* (2008) **78** 023414.
- [19] S. Borbély, K. Tőkési, and L. Nagy. *Eur. J. Phys. D* (2010) **submitted**.
- [20] H. D. Cohen and U. Fano. *Phys. Rev.* (1966) **150** 30–33.
- [21] N. Stolterfoht, B. Sulik, V. Hoffmann, B. Skogvall, *et al.* *Phys. Rev. Lett.* (2001) **87** 023201.

- [22] M. Walter and J. Briggs. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* (1999) **32** 2487.
- [23] M. S. Schoffler, K. Kreidi, D. Akoury, T. Jahnke, *et al.* *Phys. Rev. A* (2009) **78** 013414.
- [24] L. Nagy, S. Borbély, and K. Póra. *Phys. Lett. A* (2004) **327** 481–489.
- [25] D. Misra, A. H. Kelkar, S. Chatterjee, and L. C. Tribedi. *Phys. Rev. A* (2009) **80** 062701.
- [26] L. Nagy, S. Borbély, and K. Póra. *Braz. J. Phys.* (2006) **36** 511.
- [27] S. Borbély and L. Nagy. *Rad. Phys. Chem.* (2007) **76** 516.
- [28] S. Borbély, K. Póra, and L. Nagy. *J. Phys.: Conf. Ser.* (2009) **163** 012067.
- [29] V. D. Rodríguez, P. Macri, and R. Gayet. *J. Phys. B-At. Mol. Opt.* (2005) **28** 2775–2791.

# List of Abbreviations

**CTMC** classical trajectory Monte Carlo method

**CV** Coulomb-Volkov

**DVR** discrete variable representation

**FE** finite element

**FEDVR** finite element discrete variable representation

**HHG** high harmonics generation

**MPI** multiphoton ionization

**MSSFA** momentum-space strong-field approximation

**OBI** over-the-barrier ionization

**SAE** single active electron approximation

**SFA** strong-field approximation

**TDSE** time dependent Schrödinger equation

**TI** tunneling ionization

**VOLKOV** Volkov model