

Управление угловым распределением фотоэлектронов при ионизации неона циркулярно поляризованными основной и второй гармониками высокочастотного лазера

Е. В. Грызлова^{1,*}, М. М. Попова^{2†}

¹НИИ ядерной физики имени Д. В. Скобелевича МГУ имени М. В. Ломоносова
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 19

²Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова,
физический факультет, кафедра общей ядерной физики
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

(Статья поступила 26.02.2019; Подписана в печать 27.02.2019)

В рамках нестационарной теории возмущений были исследованы интерференционные эффекты, возникающие в результате прямой однофотонной и резонансной двухфотонной ионизации неона двухчастотным циркулярно поляризованным излучением. Получены аналитические формулы для дифференциального сечения процесса в многоэлектронных атомах инертных газов. Выполнены расчеты для неона при параметрах излучения, экспериментально реализуемых на современных лазерах на свободных электронах.

PACS: 32.80.Qk, 32.80.Rm

УДК: 539.186.22

Ключевые слова: атомный фотоэффект, угловые распределения, нелинейные процессы, вакуумно-ультрафиолетовое излучение, когерентное управление.

распределения, нелинейные процессы, вакуумно-

ВВЕДЕНИЕ

Появление мощных лазеров на свободных электронах, работающих в диапазоне вакуумного ультрафиолета и генерирующих излучение, обладающее высокой пространственной и временной когерентностью, позволило распространить на высокочастотный домен исследования интерференционных явлений, возникающих в результате двухфотонной ионизации атомов излучением основной (несущей) частоты ω и однофотонной ионизации второй гармоникой 2ω и проявляющихся в асимметрии углового распределения фотоэлектронов (РАД). Ранее такие исследования были доступны только в оптическом или инфракрасном диапазонах [1, 2]. Изучение интерференционных явлений представляет важность как с теоретической точки зрения, так и как метод реализации квантового когерентного контроля. Впервые когерентное управление угловыми распределениями электронной эмиссии было осуществлено в [3] на примере атома неона при $\omega \approx 19.7$ эВ и линейной поляризации гармоник.

Для водорода, являющегося простейшей системой для теоретического описания, и более удобного для экспериментального изучения неона ионизация $\omega + 2\omega$ линейно поляризованным светом была проанализирована в статьях [4, 5]. Случай циркулярной поляризации был исследован для водорода в статье [6]. С появлением лазера на свободных электронах FERMI, способного генерировать высокочастотное излучение с изменяемой поляризацией [7], возникла необходимость распространения этих исследований на многоэлектронные мишени. В настоящей работе рассматри-

вается интерференция одно- и двухфотонного каналов ионизации неона полями круговой поляризации, когда основная гармоника ω сканирует области $2p^5 3s[1/2]_1$ и $2p^5 4s[1/2]_1$ (далее $3s'$ and $4s'$ соответственно) резонансов (рис. 1).

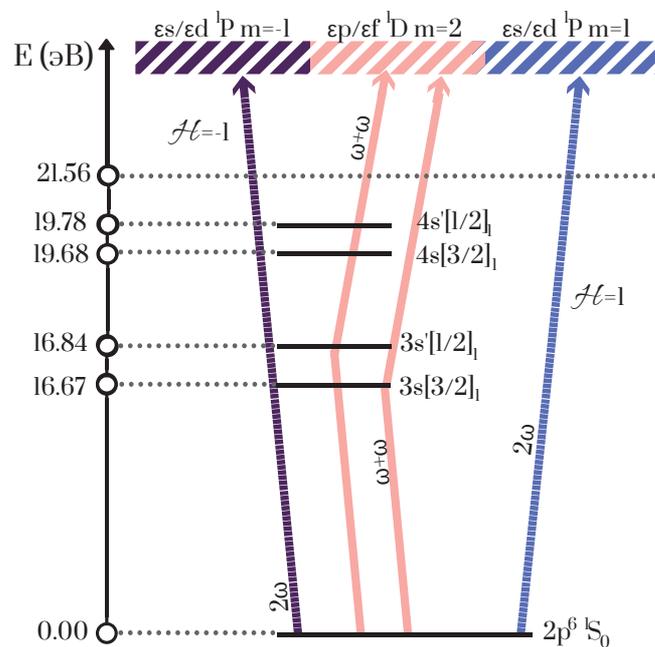


Рис. 1: Каналы $\omega + 2\omega$ ионизации атома неона циркулярно поляризованным излучением

1. ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ

Электрическое поле двухчастотного циркулярно поляризованного излучения, распространяющегося вдоль

*E-mail: gryzlova@gmail.com

†E-mail: mm.popova@phys.msu.ru

Таблица I: Энергии возбуждения (эВ), коэффициенты конфигурационного смешивания ведущие термы в МСНФ и приведенные матричные элементы в атомных единицах

Уровень	Энергия (эксп.)	Ведущие термы	Матричный элемент
$2p^5(^2P_{3/2})3s[3/2]_1$	16.67	$-0.15 2p^5 3s^1 P\rangle + 0.98 2p^5 3s^3 P\rangle$	0.09
$2p^5(^2P_{1/2})3s'[1/2]_1$	16.84	$0.98 2p^5 3s^1 P\rangle + 0.15 2p^5 3s^3 P\rangle$	-0.59
$2p^5(^2P_{3/2})4s[3/2]_1$	19.68	$-0.58 2p^5 4s^1 P\rangle + 0.81 2p^5 4s^3 P\rangle$	0.13
$2p^5(^2P_{1/2})4s'[1/2]_1$	19.78	$0.81 2p^5 4s^1 P\rangle + 0.58 2p^5 4s^3 P\rangle$	-0.18
$2p^5(^2P_{3/2})3d[1/2]_1$	20.03	$0.38 2p^5 3d^1 P\rangle - 0.91 2p^5 3d^3 P\rangle + 0.12 2p^5 3d^3 D\rangle$	0.08
$2p^5(^2P_{3/2})3d[3/2]_1$	20.04	$0.77 2p^5 3d^1 P\rangle + 0.24 2p^5 3d^3 P\rangle - 0.58 2p^5 3d^3 D\rangle$	0.16
$2p^5(^2P_{1/2})3d[3/2]_1$	20.14	$0.50 2p^5 3d^1 P\rangle + 0.32 2p^5 3d^3 P\rangle + 0.80 2p^5 3d^3 D\rangle$	0.10

оси \mathbf{z} , берется в виде

$$\varepsilon(t) = F(t) \cdot (\cos \omega t \mathbf{x} + \sin \omega t \mathbf{y} + \eta(\cos(2\omega t + \phi)\mathbf{x} + \mathcal{H}\sin(2\omega t + \phi)\mathbf{y})), \quad (1)$$

где $F(t) = \sin(\frac{\omega}{2N}t)^2$ — огибающая импульса (N — число оптических циклов в импульсе), η — отношение силы поля первой ω и второй 2ω гармоник, а $\mathcal{H} = +1$ для право- и $\mathcal{H} = -1$ — для левополяризованного излучения.

Дифференциальное сечение эмиссии электронов с энергией $k^2/2 = 2\omega - IP$ (IP — энергия ионизации) во втором порядке теории возмущений имеет вид

$$\frac{dW}{d\Omega} = \frac{1}{2J_0 + 1} \sum_{M_f M_0 \mu} \left| \eta U_{M_f M_0 \mu}^{(1)} + U_{M_f M_0 \mu}^{(2)} \right|^2, \quad (2)$$

где $U_{M_f M_0 \mu}^{(1)}$ — амплитуда ионизации фотонами с частотой 2ω в первом порядке теории возмущений, $U_{M_f M_0 \mu}^{(2)}$ — амплитуда ионизации фотонами с частотой ω во втором порядке; M_0, M_f и μ — магнитные квантовые числа начального, конечного атомного состояния и вылетевшего электрона, соответственно. Следуя нестационарной теории возмущений [8], можно представить

$$U_{M_0, M_f \mu}^{(1)} = -i \langle \zeta_f J_f M_f, k \mu | e \hat{D} | \zeta_0 J_0 M_0 \rangle T^{(1)} \quad (3)$$

$$U_{M_0, M_f \mu}^{(2)} = - \sum_n \langle \zeta_f J_f M_f, k \mu | e \hat{D} | \zeta_n J_n M_n \rangle \times \langle \zeta_n J_n M_n | e \hat{D} | \zeta_0 J_0 M_0 \rangle T_{E_n}^{(2)}. \quad (4)$$

Временные факторы были подробно рассмотрены в [4]. Мы ограничиваемся здесь только электрическими дипольными амплитудами. В нашем расчете амплитуда двухфотонного перехода (4) включает в себя прямую сумму переходов только по семи промежуточным состояниям с возбуждением $3s, 4s$ и $3d$ орбиталей; остальные промежуточные виртуальные состояния учитываются полуэмпирически из амплитуд стационарной теории возмущений [9]. Приведенные амплитуды переходов между основным и возбужденными состояниями, включая состояния непрерывного спектра и фазы рассеяния последних, были рассчитаны методом самосогласованного поля Хартри-Фока. Орбитали $1s, 2s$ и $2p$ были оптимизированы, чтобы минимизировать энергию основного состояния. Орбитали $3s, 4s, 3d$ и орбитали непрерывного спектра оптимизированы в модели замороженного остова с учетом зависимости от терма [10] (табл. I).

Дифференциальное сечение ионизации (2) можно представить в форме

$$\frac{dW}{d\Omega} = \frac{dW_I}{d\Omega} + \frac{dW_{II}}{d\Omega} + \frac{dW_{III}}{d\Omega}, \quad (5)$$

где первый и второй члены отвечают за ионизацию фотонами второй и первой гармоник соответственно, а третий — за их интерференцию. Пользуясь формализмом квантовой теории углового момента [11], в приближении LSJ-связи можно получить выражения для каждого из этих членов (6–8):

$$\frac{dW_I}{d\Omega} = \sum_{l' k} (-1)^{L_f + k + q} \frac{\hat{l}'}{4\pi} (1q, 1 - q | k0)(l0, l'0 | k0) \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ l' & l & L_f \end{Bmatrix} \langle \zeta_f L_f l' : L = 1 || eD || \zeta_0 0 \rangle \langle \zeta_f L_f l' : L = 1 || eD || \zeta_0 0 \rangle^* \Delta_l \Delta_{l'}^* P_k(\cos \theta) T^{(1)} T^{(1)*}, \quad (6)$$

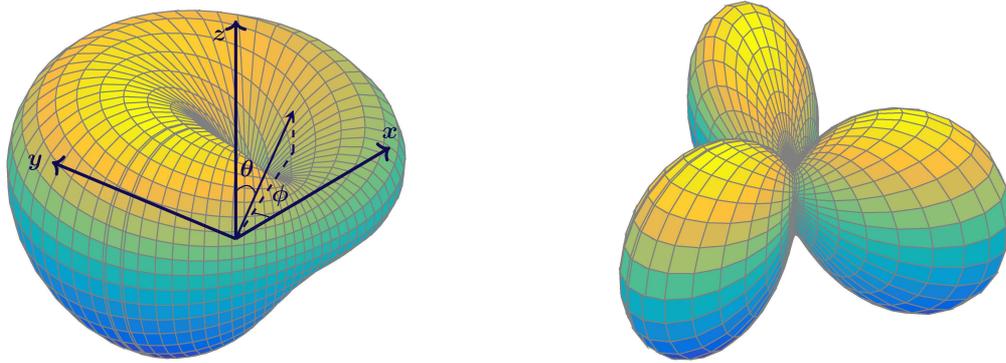


Рис. 2: Форма PAD в районе 3s резонанса ($\omega = 16.84$ эВ) в случае одинаковой (слева) и разной (справа) поляризации для мощности излучения $I = 10^{12}$ Вт/см², $N = 500$ оптических циклов, $\eta = 0.1$, и относительной фазы между гармониками $\phi = 0$

где P_k — полином Лежандра, $\Delta_l = i^{-l}e^{i\delta_l}$ — кулоновская фаза рассеяния, и введено стандартное обозначение для $6j$ -символа Вигнера, коэффициентов Клебша–Гордана, $\hat{a} = \sqrt{2a+1}$, $q = +1$ для право- и $q = -1$ для левополяризованного излучения, а факторы $T_{E_n}^{(1)}$ и далее $T_{E_n}^{(2)}$ определяются зависимостью импульса от времени и детально описаны в [3].

$$\begin{aligned} \frac{dW_{II}}{d\Omega} = & \sum_{l'l''} \sum_{LL'S} (-1)^{L_f+L'+S} \frac{\hat{2}^2 \hat{L} \hat{L}' \hat{l} \hat{l}''}{4\pi} (l0, l'0 | k0)(22q, 2-2q | k0)(1q, 1q | 22q)(1q, 1q | 22q) \times \\ & \times \left\{ \begin{matrix} L & L' & k \\ l' & l & L_f \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} S & 2 & L' \\ k & L & 2 \end{matrix} \right\} \left(\sum_{nL_n} \alpha_{10}^{\zeta_n} \alpha_{L_n S}^{\zeta_n} \left\{ \begin{matrix} S & L & 2 \\ 1 & 1 & L_n \end{matrix} \right\} \langle \zeta_n 1 || eD || \zeta_0 0 \rangle \langle \zeta_f L_f l : L || eD || \zeta_n L_n \rangle \right) \times \\ & \times \left(\sum_{n'L'_n} \alpha_{10}^{\zeta_{n'}} \alpha_{L'_n S}^{\zeta_{n'}} \left\{ \begin{matrix} S & L' & 2 \\ 1 & 1 & L'_n \end{matrix} \right\} \langle \zeta_{n'} 1 || eD || \zeta_0 0 \rangle^* \langle \zeta_f L_f l' : L' || eD || \zeta_{n'} L'_n \rangle^* \right) \Delta_l \Delta_{l'}^* P_k(\cos \theta) T_{E_n}^{(2)} T_{E_n}^{(2)*}, \quad (7) \end{aligned}$$

где, как и далее в W_{III} , предполагается промежуточная схема связи уровней:

$$|\xi_n J_n\rangle = \sum_{L_n S_n} \alpha_{L_n S_n}^{\xi_n} |\xi_n L_n S_n J_n\rangle.$$

$$\begin{aligned} \frac{dW_{III}}{d\Omega} = & \sum_{l'l''k\sigma} (-1)^{L_f+L'+k} \frac{\hat{l} \hat{l}''}{\sqrt{\pi} \hat{k} \hat{1}} (l0, l'0 | k0)(1q', 1q' | L'2q')(1q, L' - 2q' | k - \sigma) \times \\ & \times \left\{ \begin{matrix} L_f & L' & l' \\ k & l & 1 \end{matrix} \right\} \Re \left[\langle \zeta_f L_f l : L = 1 || eD || \zeta_0 0 \rangle \times \right. \\ & \left. \times \left(\sum_n |\alpha_{10}^{\zeta_n}|^2 \langle \zeta_n 1 || eD || \zeta_0 0 \rangle^* \langle \zeta_f L_f l' : L' || eD || \zeta_n 1 \rangle^* \right) \Delta_l \Delta_{l'}^* Y_{k-\sigma}(\theta, \varphi) (-iT^{(1)}) T_{E_n}^{(2)*} \right] \quad (8) \end{aligned}$$

PAD в случае одинаковой ($\mathcal{H} = +1$) и противоположной ($\mathcal{H} = -1$) поляризации первой и второй гармоник можно представить в виде:

$$\begin{aligned} \frac{dW^{++}}{d\Omega} &= \frac{W_0}{4\pi} (1 + \beta_2 P_2(\cos \theta) + \beta_4 P_4(\cos \theta) + |\beta_1| \sin \theta \cos(\varphi - \psi_1) - |\beta_3| \sin^3 \theta \cos(\varphi - \psi_3)), \\ \frac{dW^{+-}}{d\Omega} &= \frac{W_0}{4\pi} (1 + \beta_2 P_2(\cos \theta) + \beta_4 P_4(\cos \theta) + |\beta_3| \sin^3 \theta \cos(3\varphi - \psi_3)), \quad (9) \end{aligned}$$

где β_k — коэффициенты угловой анизотропии, не зависящие от угла. В рамках используемой модели $\beta_{2,3,4}$

для одинаковых ($++$) и противоположных спиральностей ($+-$) гармоник и совпадают, β_1 в случае проти-

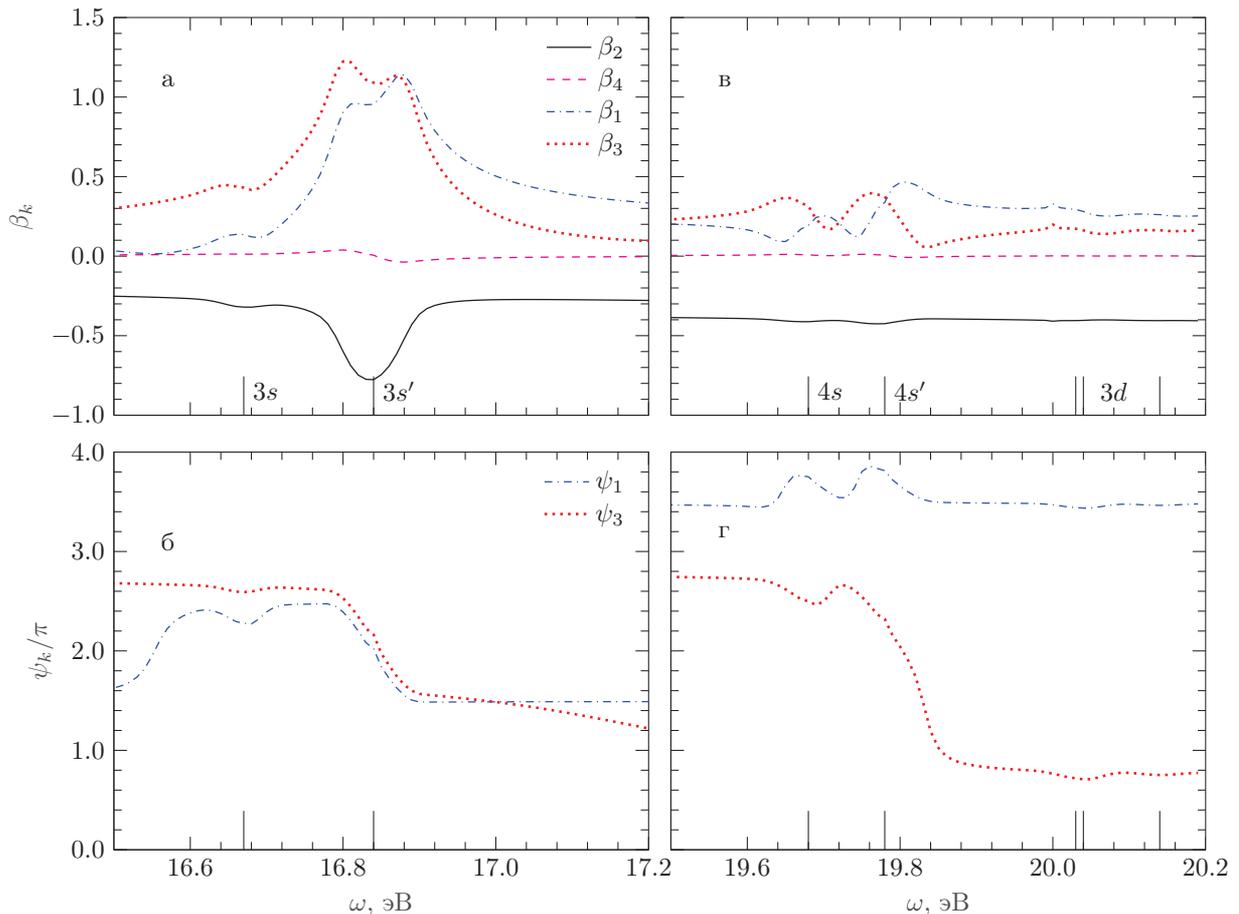


Рис. 3: Коэффициенты β_k и фазы ψ_k углового распределения фотоэлектронов для мощности излучения $I = 10^{12}$ Вт/см², импульса $N = 500$ оптических циклов, $\eta = 0.1$, и относительной фазы между гармониками $\phi = 0$

воположных спиральностей равен нулю. Для водорода [6] коэффициент β_1 был равен нулю и для одинаковой поляризации гармоник, что указывает на его термозависимую природу. Вид угловых распределений в области $3s$ -резонанса показан на рис. 2.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Коэффициенты β_k и фазы ψ_k , определяющие форму углового распределения фотоэлектронов (9), представлены на рис. 3 в зависимости от энергии основной гармоники ω в области $3s$ (а, б) и $4s$ (в, г) резонансов для мощности излучения $I = 10^{12}$ Вт/см², $N = 500$ оптических циклов в импульсе, $\eta = 0.1$, и относительной фазы между гармониками $\phi = 0$. В [5] было показано, что для указанных параметров теория возмущений остается справедливой. Матричный элемент перехода в $3s$ в неоне больше, чем в $4s$, поэтому все коэффициенты β_k оказываются больше, за исключением β_4 : в рамках используемого подхода он практически равен нулю. Фазы ψ_k испытывают скачок в каждом резонансе (табл. I).

Также нами было проведено исследование зависимости коэффициентов β_k углового распределения фотоэлектронов в зависимости от отношения между гармониками η (рис. ??, ??). При сильной второй гармонике параметр β_2 близок к хорошо известному значению однофотонной ионизации атома неона и меняется от -0.25 (область $3s$) до -0.35 ($4s$). Напротив, при слабой второй гармонике вне резонанса β_2 определяется преимущественно f волной и в одноканальном пределе принимает значение $-8/7$. Для эффективного наблюдения интерференции необходим сопоставимый вклад от одно- и двухфотонных каналов ионизации. Когда роль резонанса невелика, это условие достигается при $\eta \sim 0.1$. Когда роль резонанса возрастает, например при $\omega \approx 16.8$ эВ, эффективная интерференция реализуется при большем вкладе второй гармоники $\eta \approx 1$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках нестационарной теории возмущений были исследованы интерференционные эффекты, возникающие в результате прямой однофотонной и резонансной

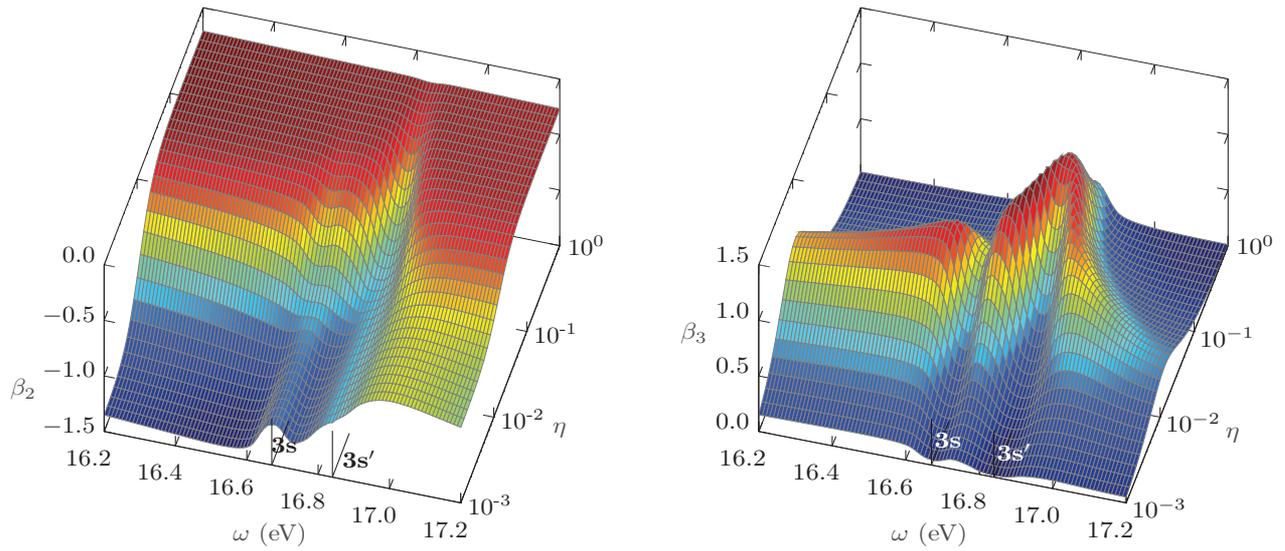


Рис. 4: Коэффициенты $\beta_{2,3}$ углового распределения фотоэлектронов для мощности излучения $I = 10^{12}$ Вт/см², импульса $N = 500$ оптических циклов, и относительной фазы между гармониками $\phi = 0$ в зависимости от отношения между гармониками η в области $3s$ -резонанса

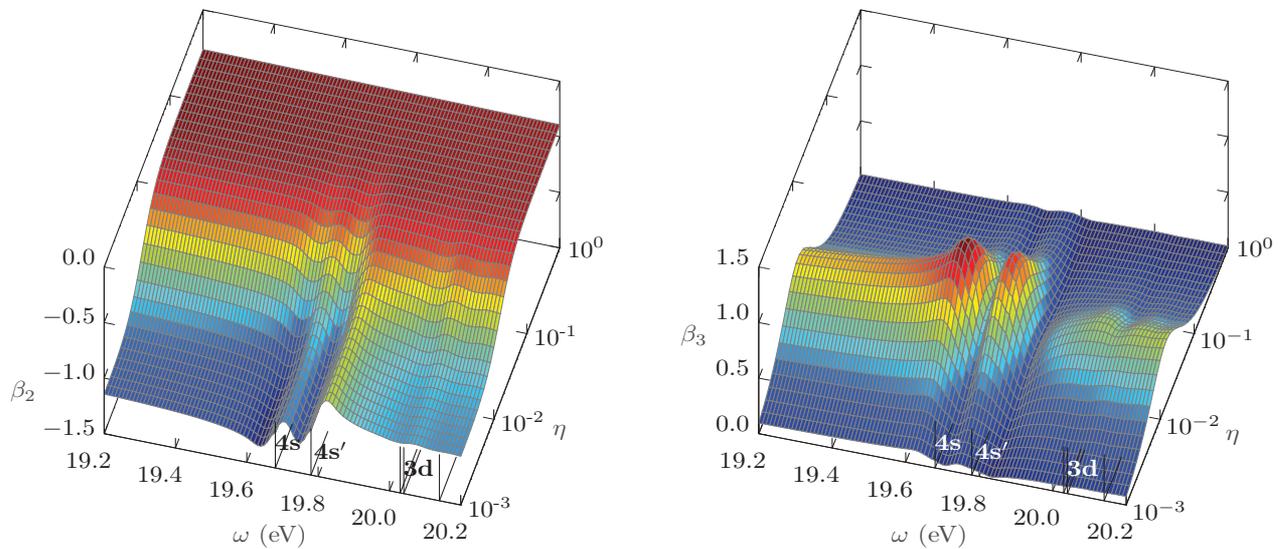


Рис. 5: Коэффициенты $\beta_{2,3}$ углового распределения фотоэлектронов для мощности излучения $I = 10^{12}$ Вт/см², импульса $N = 500$ оптических циклов, и относительной фазы между гармониками $\phi = 0$ в зависимости от отношения между гармониками η в области $4s$ -резонанса

двухфотонной ионизации неона двухчастотным циркулярно поляризованным излучением. Получены аналитические формулы для дифференциального сечения процесса в многоэлектронных атомах инертных газов. Выполнены первые расчеты для атома неона при параметрах излучения, экспериментально реализуемых на современных лазерах на свободных электронах. Определены относительные интенсивности гармоник, при которых наблюдение когерентного управления угловы-

ми распределениями при ионизации неона, будут оптимальными.

Благодарности

Работа Е.В. Грызловой была поддержана грантом Фонда развития теоретической физики и математики «Базис».

-
- [1] Баранова Н.Б., Зельдович Б.Я., Чудинов А.Н., Шулгинов А.А. ЖЭТФ. 1990. **98**, №6(12). С. 1857.
- [2] Yin Yi-Yian, Chen Ce, Elliott D.S., Smith A.V. Phys. Rev. Lett. 1992. **69**. P. 2353.
- [3] Prince K.C., Allaria E., Callegari C., Cucini R., De Ninno G., Di Mitri S., Diviacco B., Ferrari E., Finetti P., Gauthier D. et al. Nature Photonics. 2016. **10**. P. 176.
- [4] Grum-Grzhimailo A.N., Gryzlova E.V., Staroselskaya E.I., Venzke J., Bartschat K. Phys. Rev. A. 2015. **91**. P. 063418(1).
- [5] Gryzlova E.V., Grum-Grzhimailo A.N., Staroselskaya E.I., Douguet N., Bartschat K. Phys. Rev. A. 2018. **97**. P. 013420(1).
- [6] Douguet N., Grum-Grzhimailo A.N., Gryzlova E.V., Staroselskaya E.I., Venzke J., Bartschat K. Phys. Rev. A. 2016. **93**. P. 033402(1).
- [7] Allaria E., Appio R., Badano L., Barletta W.A., Bassanese S., Biedron S.G., Borga A., Busetto E., Castronovo D., Cinquegrana P. et al. Nature Photonics. 2012. **6**. P. 639.
- [8] Messiah A. Quantum Mechanics. Dover Publications. 1961.
- [9] Старосельская Е.И., Грум-Гржимайло А.Н. Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 2015. №5. С. 45.
- [10] Fischer C.F., Brage T., Johnsson P. Computational Atomic Structure. An MCHF Approach/IOP Publishing. Bristol. 1997.
- [11] Balashov V.V., Grum-Grzhimailo A.N., Kabachnik N.M. Polarization and Correlation Phenomena in Atomic Collisions: A Practical Theory Course. Kluwer Academic/Plenum Publishers New York, United States. 2000.
-

Control of the photoelectron angular distribution in ionization of neon by circularly polarized fundamental and second harmonics of a high-frequency laser

E. V. Gryzlova^{1a}, M. M. Popova^{2b}

¹Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, M.V.Lomonosov Moscow State University, Moscow 119191, Russia.

²Department of General Nuclear Physics, Faculty of Physics, M.V.Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

E-mail: ^agryzlova@gmail.com, ^bmm.popova@phys.msu.ru

Within the framework of the time-dependent perturbation theory, interference effects arising from direct single-photon and resonant two-photon ionization of neon by two-frequency circularly polarized radiation were investigated. Analytical formulas for the differential cross section of the process in multielectron atoms of inert gases were obtained. Calculations were made for neon with radiation parameters experimentally implemented on modern free electron lasers.

PACS: 32.80.Qk, 32.80.Rm.

Keywords: atomic photoeffect, angular distributions, nonlinear processes, vacuum-ultraviolet radiation, coherent control.

Received 26 February 2019.

Сведения об авторах

1. Грызлова Елена Владимировна — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-47-76, e-mail: gryzlova@gmail.com.

2. Попова Мария Михайловна — студент; e-mail: mm.popova@phys.msu.ru.
