

# Ионизация атомов и ионов лазером на свободных электронах: выход за пределы дипольного приближения

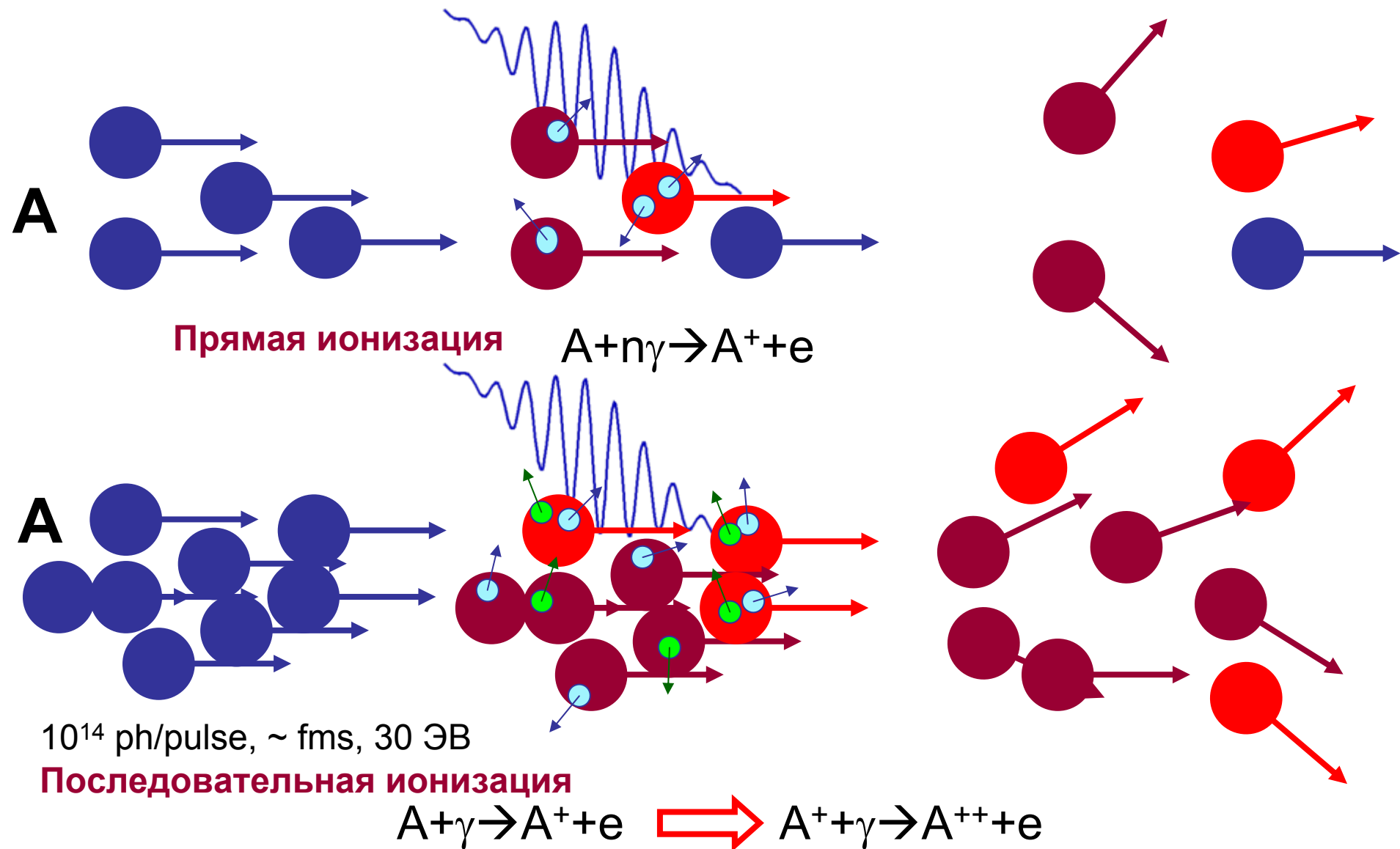
*Е.В. Грызлова*

*А.Н. Грум-Гржимайло, С.И. Страхова и А.С. Битюцкая*

**Ломоносовский чтения**

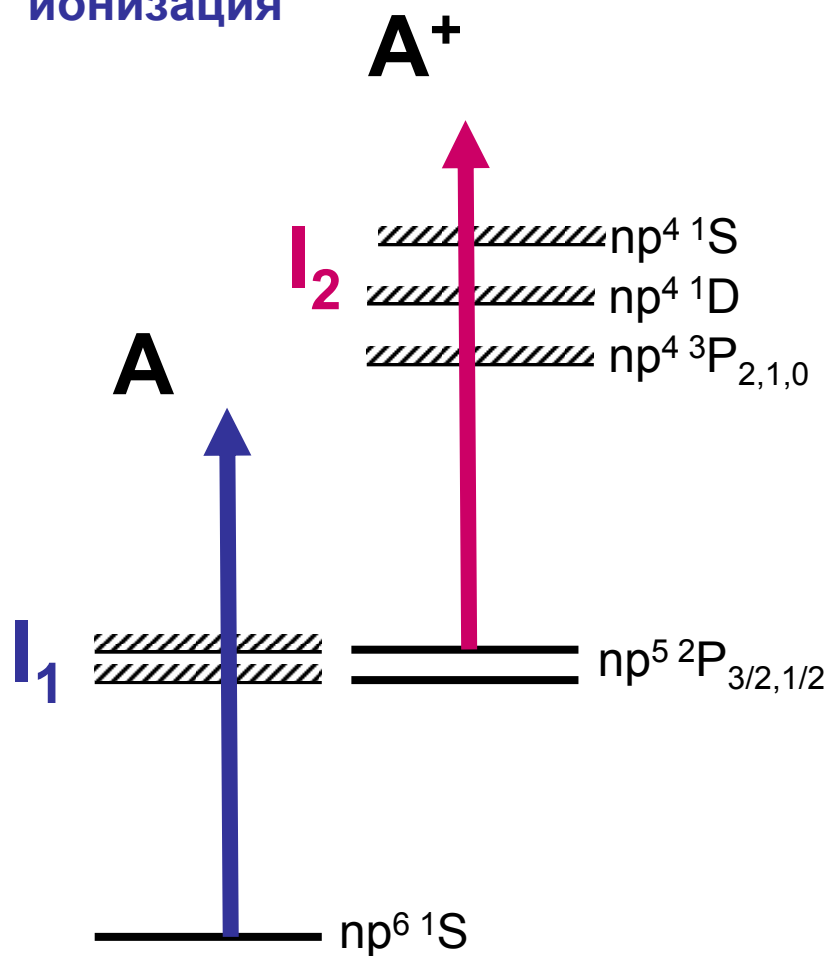
Москва, НИИЯФ МГУ, 17 апреля 2012 г.

# Ионизация атомов и ионов полем лазера на свободных электронах

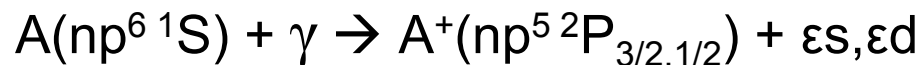


# Последовательная ионизация

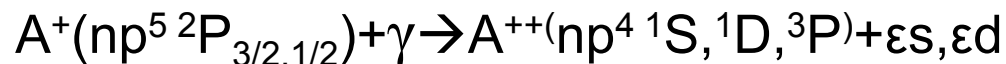
Последовательная  
двойная двухфотонная  
ионизация



$$\omega > I_1$$



$$\omega > I_2$$



U. Becker, M. Braune, S. Korica, A. Reinköster,  
J. Viefhaus and D. Rolles  
(ICISS-2006, Foz do Iguacu).

M. Braune, A. Reinköster, J. Viefhaus,  
B. Lohmann and U. Becker  
(ICPEAC-2007, Freiburg).

✓ **Спектры и угловые распределения  
фотоэлектронов**

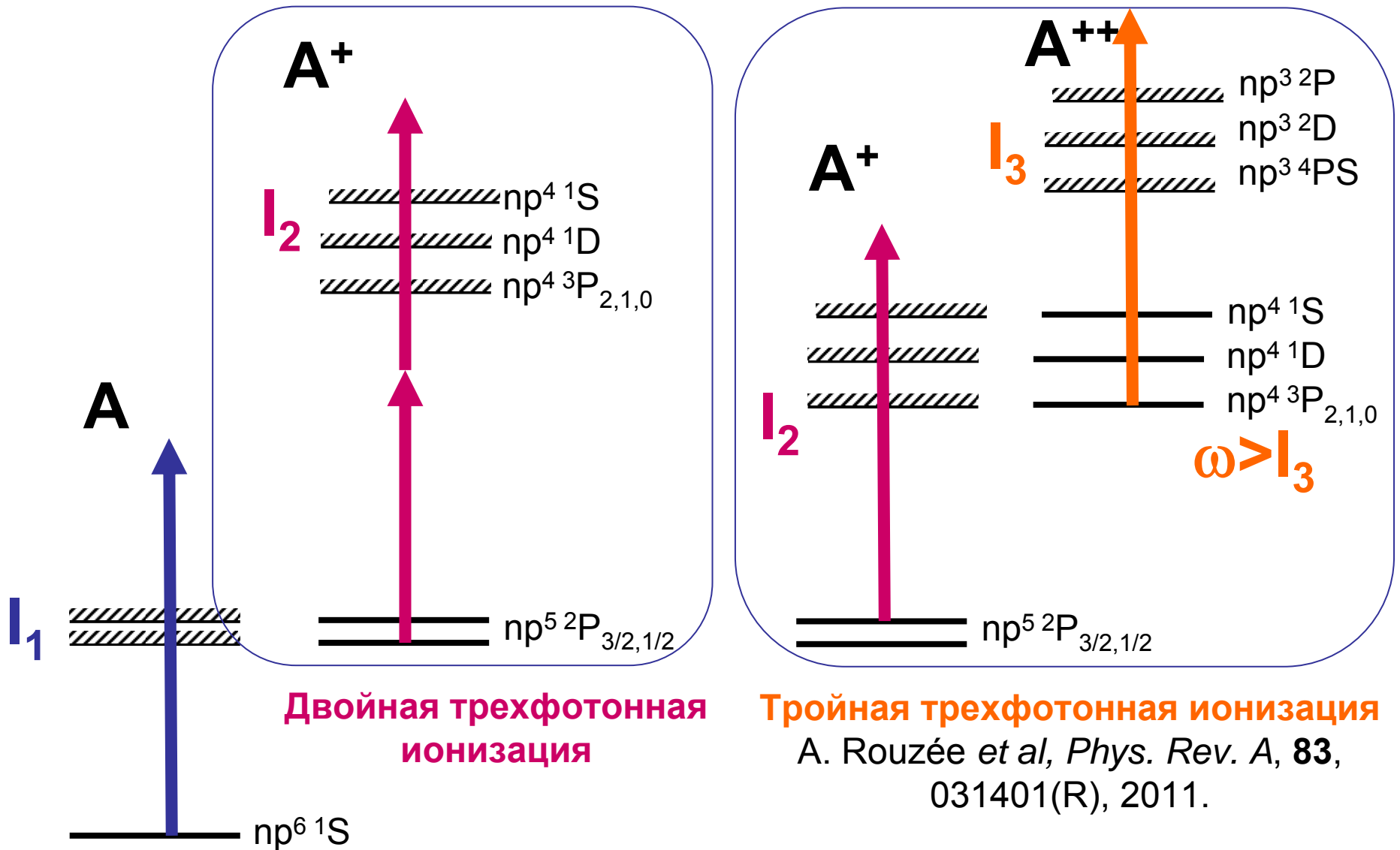
S. Fritzsche *et al*, *J. Phys. B*, **41**, 165601,  
2008.

✓ **Угловые корреляционные функции**

M. Kurka *et al*, *J. Phys. B*, **42**, 141002, 2009.

# Последовательная ионизация

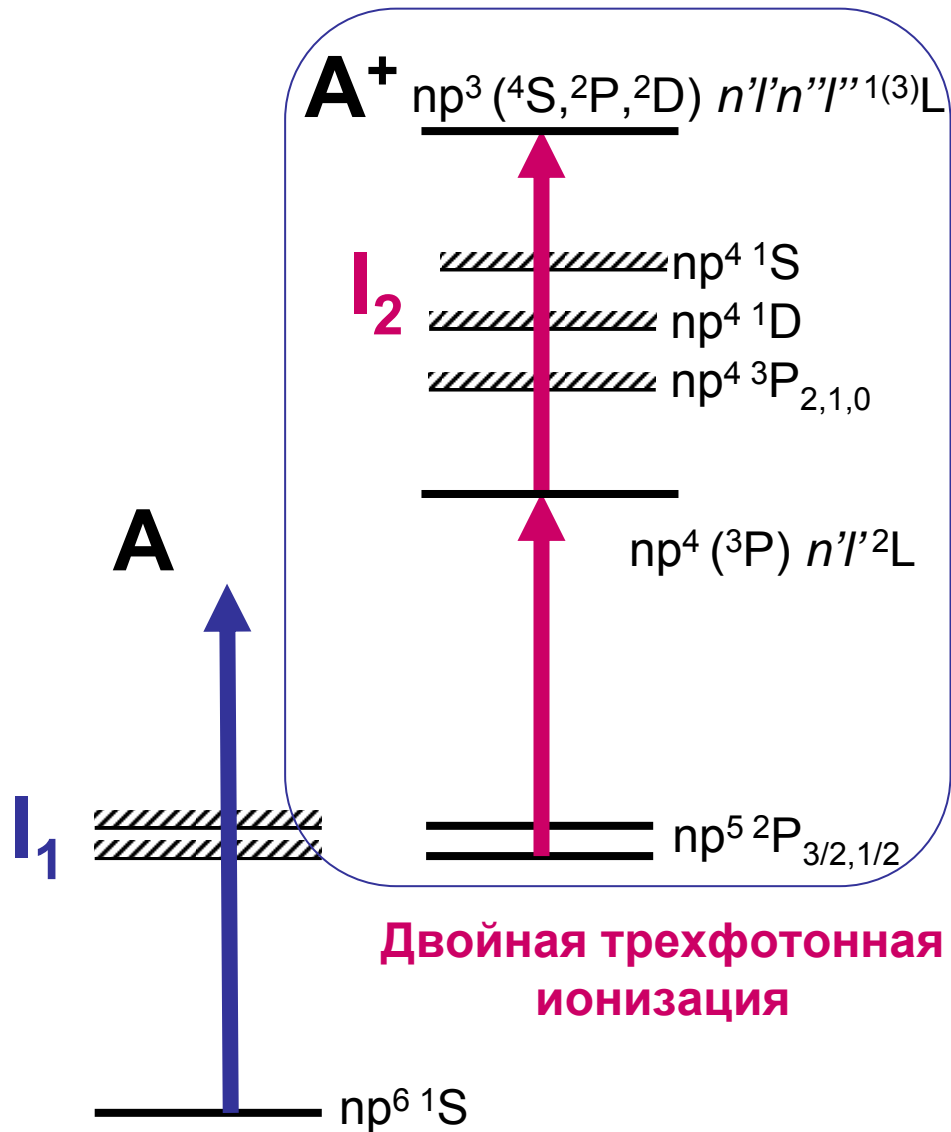
## Наблюдаемые трехфотонные процессы



А. Rouzée et al, *Phys. Rev. A*, **83**, 031401(R), 2011.

# Последовательная ионизация

## Наблюдаемые трехфотонные процессы



✓ Прямая двухфотонная ионизация иона

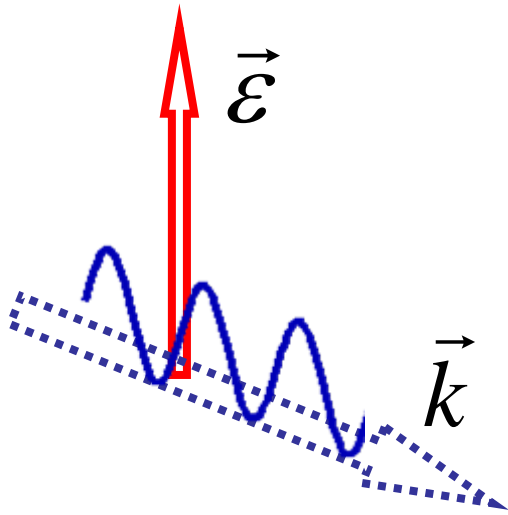
✓ Резонансная ионизация иона  
H. Fukuzawa *et al*, *J. Phys. B*, **43**, 111001, 2010.

✓ Дважды резонансная ионизация иона  
E.V. Gryzlova *et al*, *Phys. Rev. A*, **84**, 063405, 2011.

# Теоретическая модель

1. *Процесс* двойной ионизации атома рассматривается как последовательный
2. *Для* описания поляризационных состояний атомов и ионов, находящихся в лазерном поле, используется формализм матрицы плотности и статистических тензоров
3. *Для* расчетов атомных волновых функций, дипольных матричных элементов и фотоионизационных амплитуд используется многоконфигурационный метод Хартри-Фока
4. *Взаимодействие* лазерного поля с атомами рассматривается в дипольном приближении

# Отказ от дипольного приближения



$$\hat{V}(\vec{r}, t) = -\frac{e}{mc} (\vec{A}(\vec{r}, t) \cdot \vec{p});$$

$$\vec{p} = -i\hbar\nabla; \quad \vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{\varepsilon} e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} \approx \vec{\varepsilon} e^{-i\omega t} (1 + i\vec{k}\vec{r} + \dots)$$

## Взаимодействие

$$\hat{V}(\vec{r}, t) \Rightarrow -e^{-i\omega t} \frac{e}{mc} \left( (\vec{\varepsilon} \cdot \vec{p}) + i \frac{\omega}{c} (\vec{\varepsilon} \cdot \vec{p})(\vec{k} \cdot \vec{r}) + \dots \right)$$

$$\hat{V}_d = -\frac{e}{mc} (\vec{\varepsilon} \cdot \vec{p});$$

$$\hat{V}_q = -i \frac{\omega e}{mc^2} (\vec{\varepsilon} \cdot \vec{p})(\vec{k} \cdot \vec{r}) = -i \frac{\omega e}{mc^2} (\{\vec{k} \otimes \vec{\varepsilon}\}_2 \cdot \{\vec{r} \otimes \vec{p}\}_2)$$

$$\hat{V}_d = -i \frac{e\omega}{c} (\vec{\varepsilon} \cdot \vec{r}); \quad \hat{V}_q = \frac{e\omega^2}{2c^2} (\vec{\varepsilon} \cdot \vec{r})(\vec{k} \cdot \vec{r}) = \frac{e\omega^2}{2c^2} (\{\vec{k} \otimes \vec{\varepsilon}\}_2 \cdot \{\vec{r} \otimes \vec{r}\}_2)$$

# Теоретическая модель

Поляризация промежуточного иона:

$$\rho_{k_1 q_1}(J_i; \theta_1, \varphi_1) = \pi \alpha \omega \sum_{k_1 k_{\gamma_1}} B(k_1, k_i, k_{\gamma_1}) \rho_{k_{\gamma_1} 0}^{\gamma} (k_i q_i k_1 - q_0 | k_{\gamma_1} 0) \sqrt{\frac{4\pi}{2k_1 + 1}} Y_{k_1 q_i}^*(\theta_1, \varphi_1),$$

Динамический коэффициент 1-ой степени

Угловая зависимость 1-го электрона

Поляризация фотона

$$z \parallel E$$

$$\rho_{00}^{(\gamma)}(1,1) = \frac{1}{\sqrt{3}}; \quad \rho_{20}^{(\gamma)}(1,1) = -\sqrt{\frac{2}{3}};$$

$$\rho_{1\pm 1}^{(\gamma)}(2,1) = \pm \frac{1}{2}; \quad \rho_{2\pm 1}^{(\gamma)}(2,1) = -\frac{\sqrt{5}}{6}; \quad \rho_{3\pm 1}^{(\gamma)}(2,1) = \mp \frac{2}{3};$$

Фотоионизация поляризованного иона:

$$W(\theta_1, \varphi_1; \theta_2, \varphi_2) = \pi \alpha \omega \sum_{\substack{k_{\gamma_2} q_{\gamma_2} k_i q_i \\ k_2 q_2 J_i J'_i}} \tilde{B}(k_i, k_i, k_2) (k_i q_i k_{\gamma_2} 0 | k_2 q_2) \rho_{k_i q_i}(J_i, J'_i; \theta_1, \varphi_1) \rho_{k_{\gamma_2} 0}^{\gamma} \times$$

Суммирование по уровням промежуточного иона

Динамический коэффициент 2-ой степени

$$\times \sqrt{\frac{4\pi}{2k_2 + 1}} Y_{k_2 q_2}(\theta_2, \varphi_2),$$

Угловая зависимость 2-го электрона



# Теоретическая модель

Динамический  
коэффициент 1<sup>ой</sup>  
ступени

$$B(k_1, k_i, k_{\gamma_1}) = \frac{\hat{L}_1^{(\gamma)} \hat{L}_1^{(\gamma)}}{\hat{1}^2} \hat{k}_i \hat{k}_{\gamma_1} \sum_{l_1 l'_1 j_1 j'_1} (-1)^{j_1+1/2} \hat{l}_1 \hat{l}'_1 \hat{j}_1 \hat{j}'_1 (l_1 0 l'_1 0 | k_1 0) \left\{ \begin{matrix} J_i & j_1 & L_1^{(\gamma)} \\ J_i & j'_1 & L_1^{(\gamma)} \\ k_i & k_1 & k_{\gamma_1} \end{matrix} \right\} \times$$

$$\times \left\langle J_i, l_1 j_1 : 1 \parallel \hat{O}^{(k^\gamma)} \parallel 0 \right\rangle \left\langle J_i, l'_1 j'_1 : 1 \parallel \hat{O}^{(k^\gamma)} \parallel 0 \right\rangle^*$$

Динамический  
коэффициент 2<sup>ой</sup>  
ступени

$$k_0 \rightarrow k = k_{\gamma_1}; J_0 = L_0 = 0 \rightarrow J_1 = J'_1 = L^{(\gamma)}; L_1 = L^{(\gamma)}.$$

$$\tilde{B}\{k_i, k_2, k_{\gamma_2}\} = \frac{\hat{L}_2^{(\gamma)} \hat{L}_2^{(\gamma)}}{\hat{1}^2} \hat{k}_i \hat{k}_{\gamma_2} \sum_{l_2 l'_2 j_2 j'_2} (-1)^{J_2+J_{i_2}-1/2} \hat{l}_2 \hat{l}'_2 \hat{j}_2 \hat{j}'_2 \hat{J}_2 \hat{J}'_2 (l_2 0 l'_2 0 | k_2 0) \left\{ \begin{matrix} j_2 & l_2 & 1/2 \\ l'_2 & j'_2 & k_2 \end{matrix} \right\} \times$$

$$\times \left\{ \begin{matrix} j_2 & J_2 & J_{i_2} \\ J'_2 & j'_2 & k_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_i & L_2^{(\gamma)} & J_2 \\ J_i & L_2^{(\gamma)} & J'_2 \\ k_i & k_{\gamma_2} & k_2 \end{matrix} \right\} \left\langle J_{i_2}, l_2 j_2 : J_2 \parallel \hat{O}^{(k^\gamma)} \parallel J_i \right\rangle \left\langle J_{i_2}, l'_2 j'_2 : J'_2 \parallel \hat{O}^{(k^\gamma)} \parallel J'_i \right\rangle^*.$$

где  $\hat{j} = 2j + 1$

Динамические коэффициенты обладают следующим свойством

$$\tilde{B}^{(L^{(\gamma_2)}, L^{(\gamma_2)})}(k_i, k_{\gamma_2}, k_2) = (-1)^{k_i + k_{\gamma_2} + k_2} \tilde{B}^{(L^{(\gamma_2)}, L^{(\gamma_2)})}(k_i, k_{\gamma_2}, k_2)$$

# Угловое распределение фотоэлектронов при учете первых недипольных поправок

Угловое распределение фотоэлектронов  
в дипольном приближении

$\vec{\mathcal{E}}$

$$W(\theta, \varphi) = \frac{\sigma_{dip}}{4\pi} \left( 1 + \beta_2 P_2(\cos \theta) + \beta_4 P_4(\cos \theta) + \right.$$

Интерференция E1 и E2 амплитуд

$$\left. + (\delta + \gamma_2 \cos^2 \theta + \gamma_4 \cos^4 \theta) \sin \theta \sin \varphi \right)$$

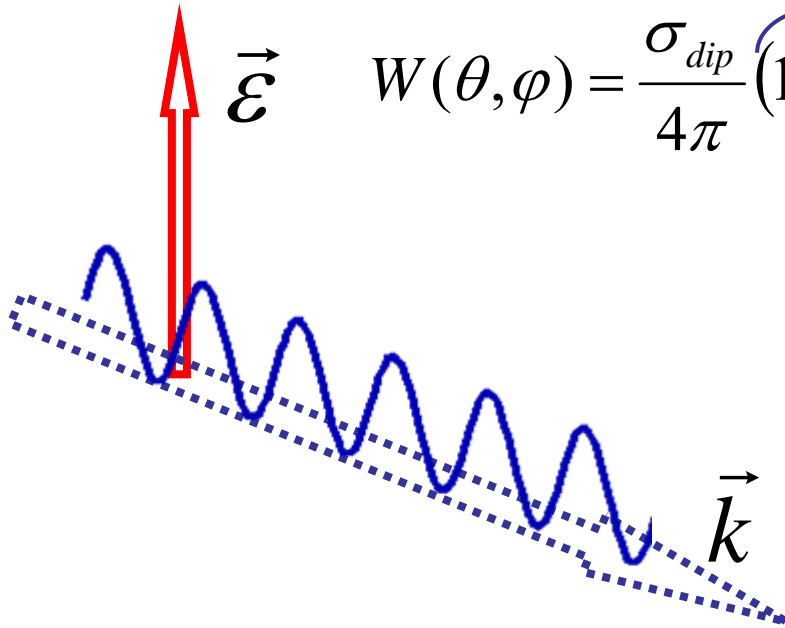
$$\delta = 2 \operatorname{Re} \left[ -i\sqrt{6}\tilde{\rho}_{11} + i\frac{\sqrt{21}}{2}\tilde{\rho}_{31} - i\frac{1}{4}\sqrt{\frac{165}{2}}\tilde{\rho}_{51} \right]$$

$$\gamma_2 = 2 \operatorname{Re} \left[ -i\frac{5\sqrt{21}}{2}\tilde{\rho}_{31} + i\frac{7}{2}\sqrt{\frac{165}{2}}\tilde{\rho}_{51} \right]$$

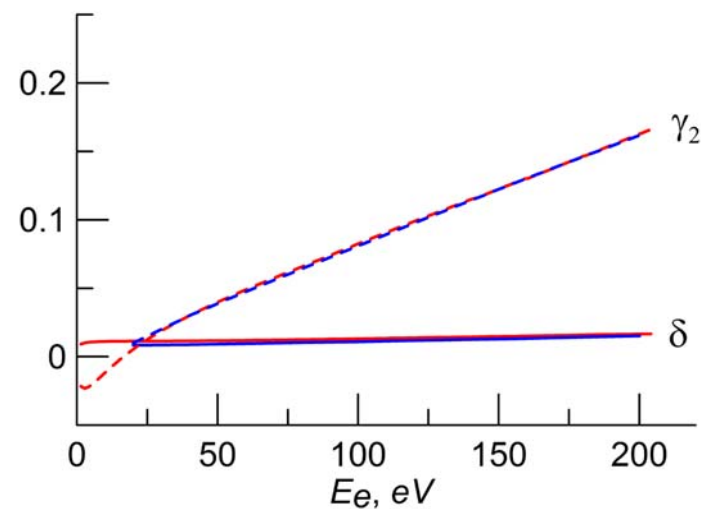
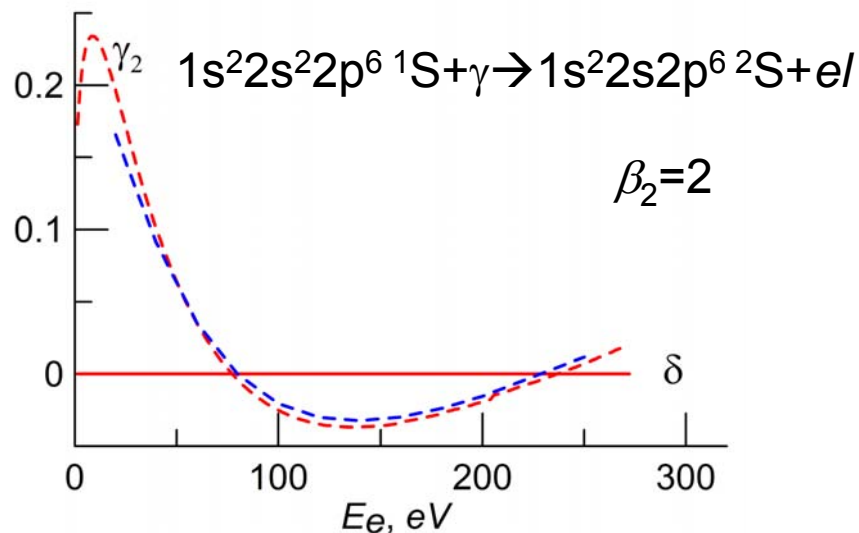
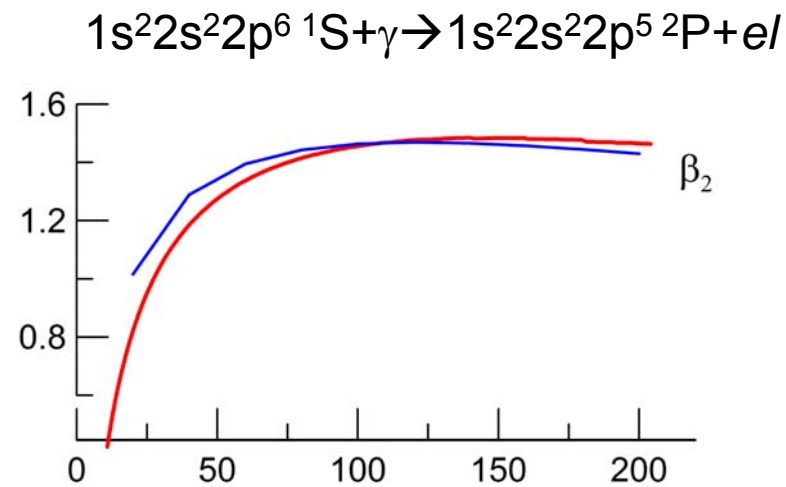
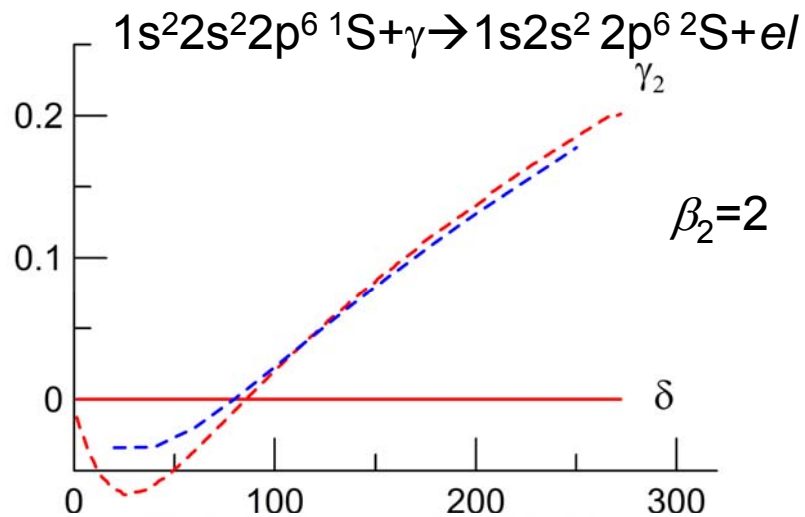
$$\gamma_4 = 2 \operatorname{Re} \left[ -i\frac{21}{4}\sqrt{\frac{165}{2}}\tilde{\rho}_{51} \right]$$

где

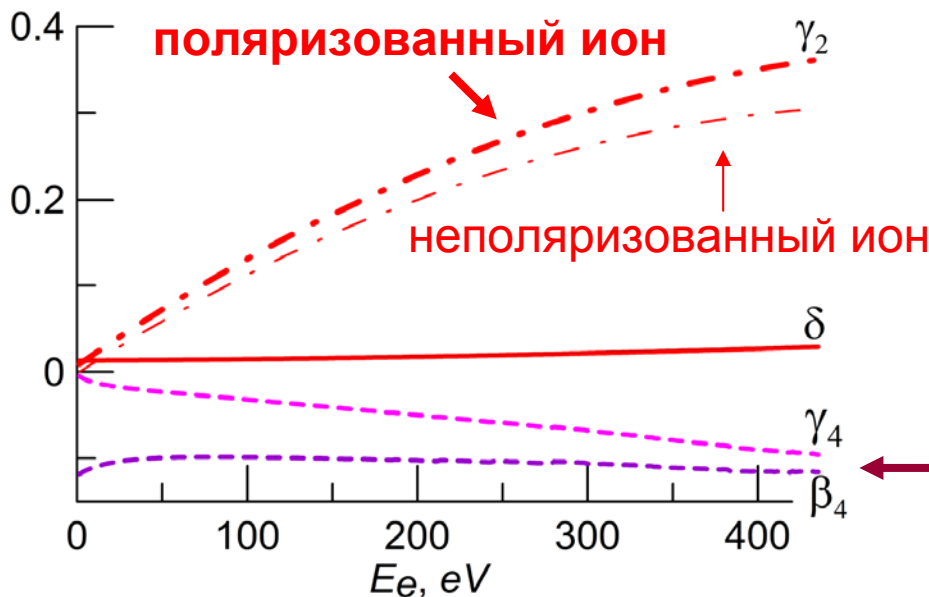
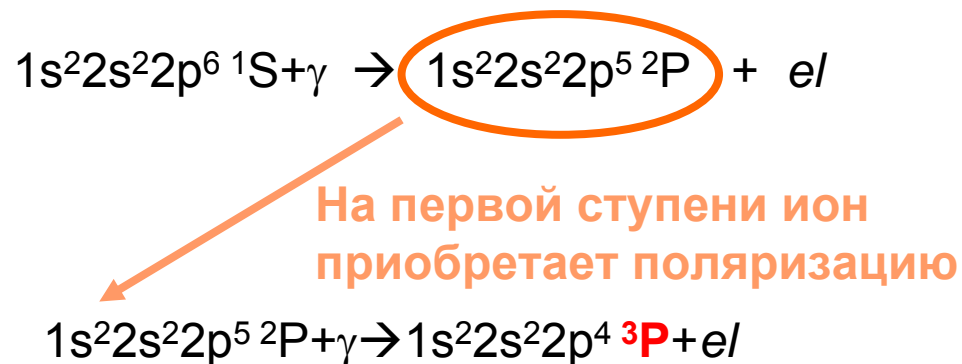
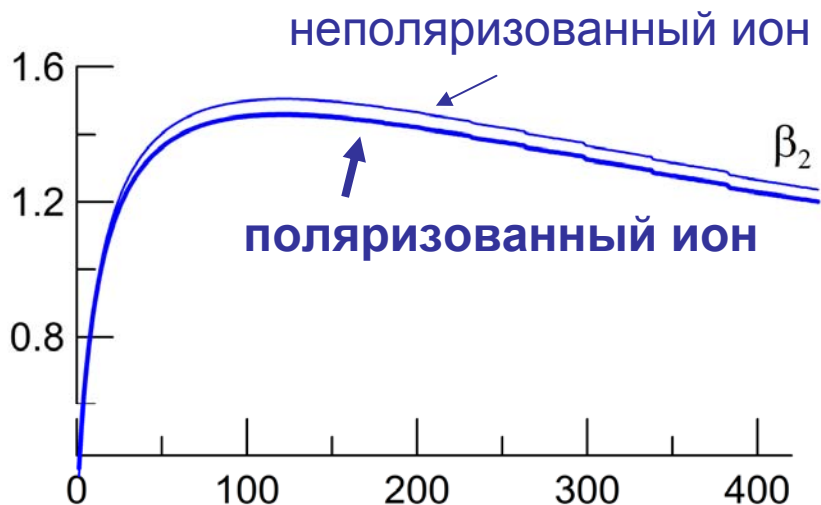
$$\tilde{\rho}_{k_2 q_2} = \rho_{k_2 q_2} \cdot \hat{j}_2 \hat{j}'_2 \hat{l}_2 \hat{l}'_2 (l_2 0 l_2' 0 | k_2 0) \begin{Bmatrix} k_2 & J_2 & J'_2 \\ J_f & j'_2 & j_2 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_2 & l_2 & l'_2 \\ 1/2 & j'_2 & j_2 \end{Bmatrix}$$



# Проверка: прямая ионизация атома неона

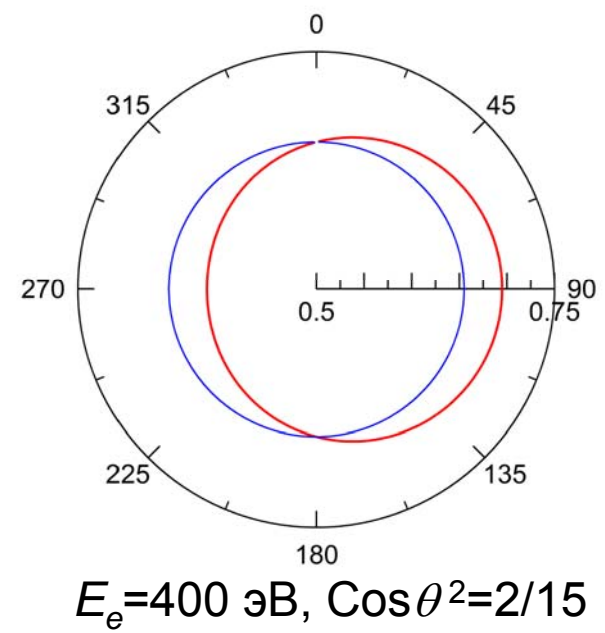
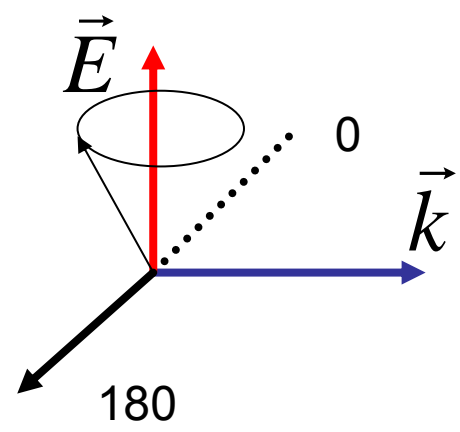
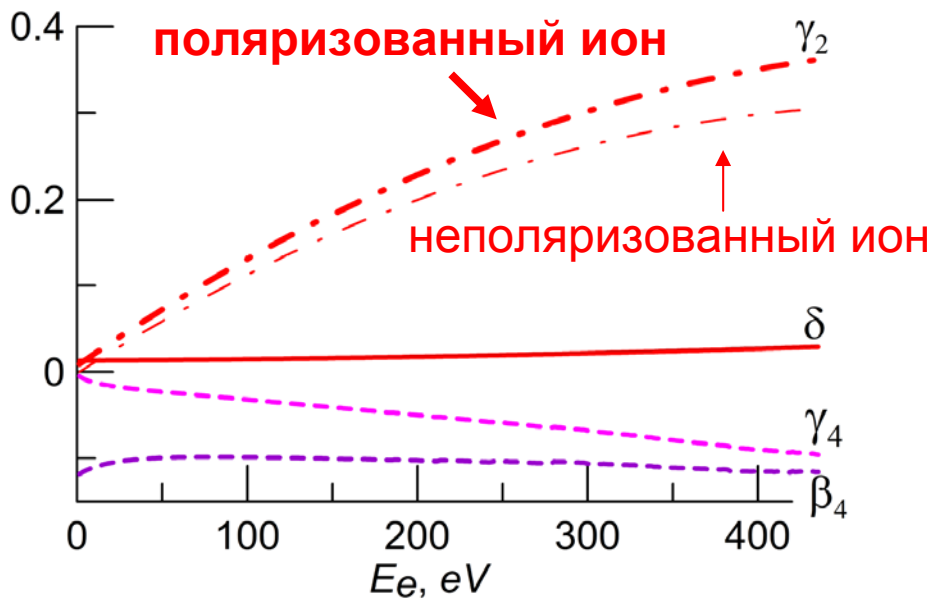
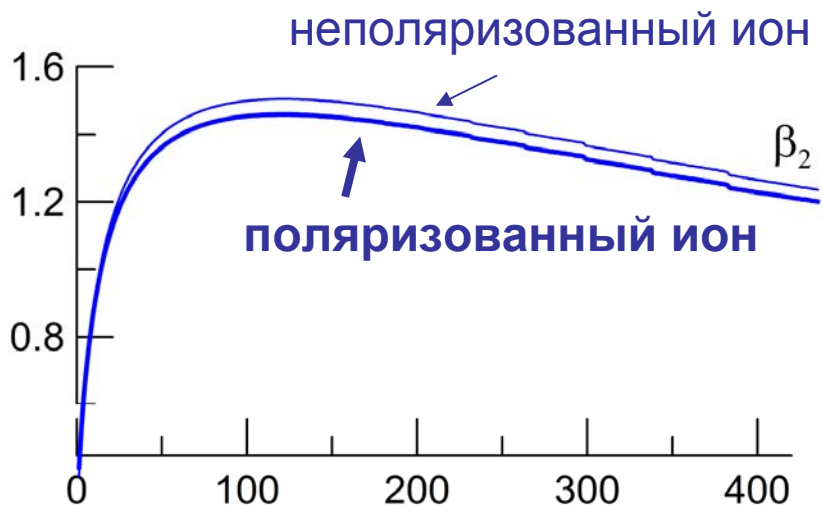


# Недипольные параметры в последовательной двойной ионизации

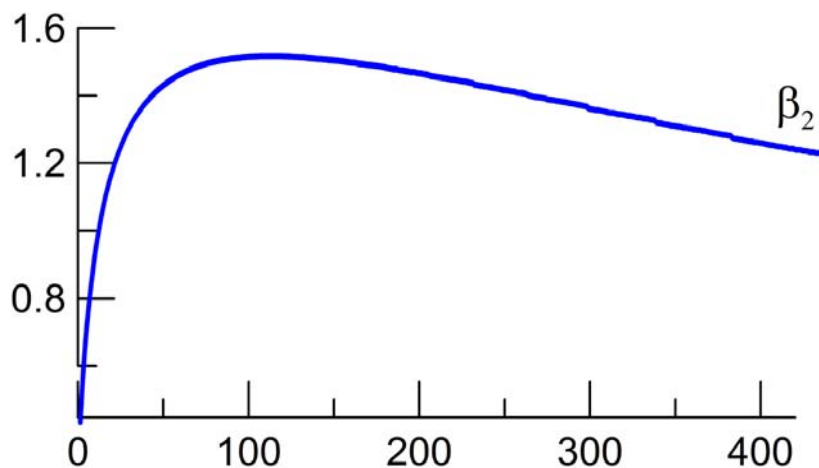


Присутствуют только при ионизации поляризованного иона

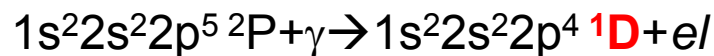
# Недипольные параметры в последовательной двойной ионизации



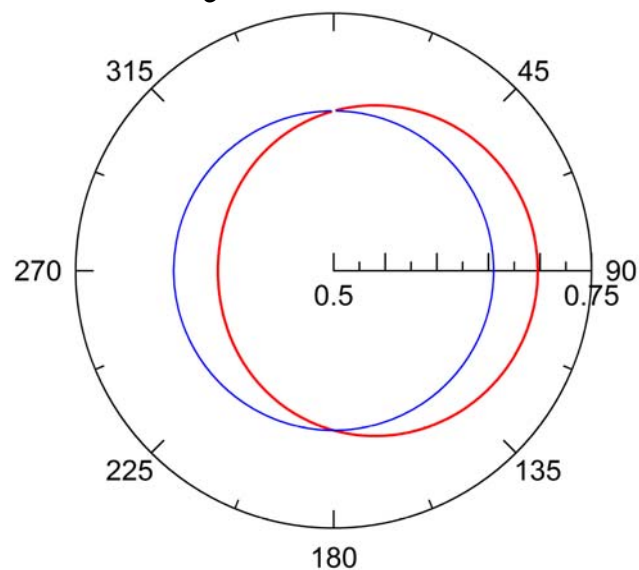
# Недипольные параметры в последовательной двойной ионизации



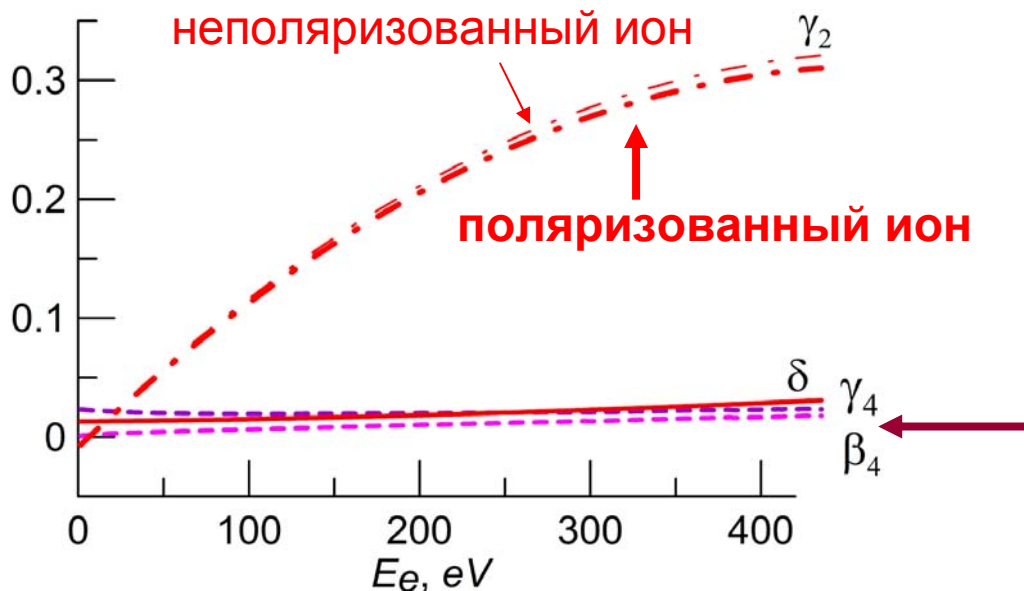
На первой ступени ион приобретает поляризацию



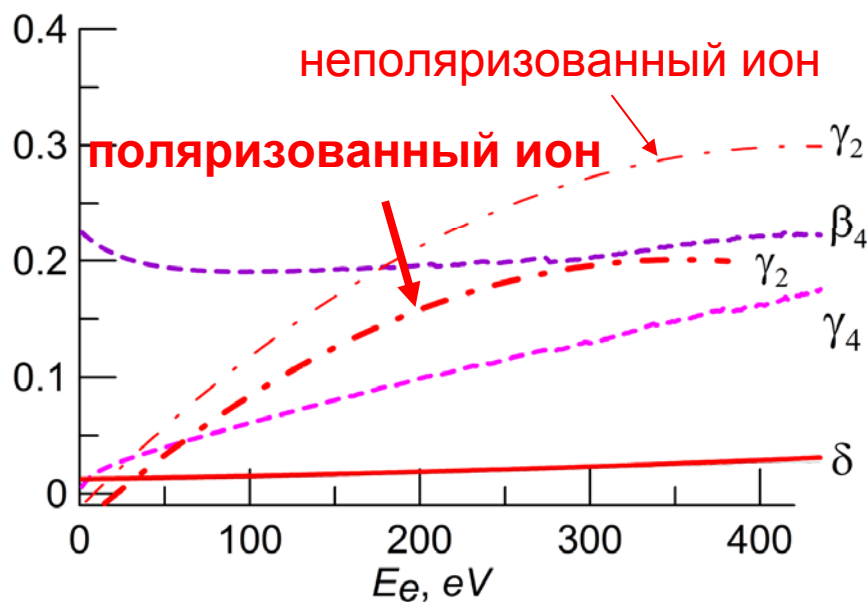
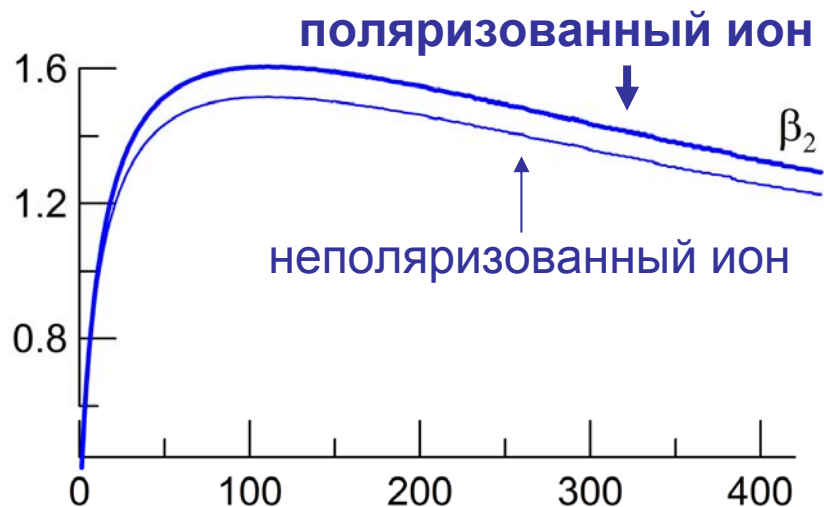
$$E_e = 400 \text{ эВ}, \text{ Cos } \theta^2 = 2/15$$



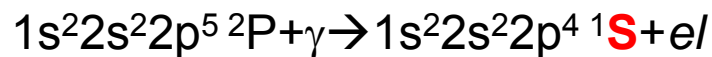
Присутствуют только при ионизации поляризованного иона



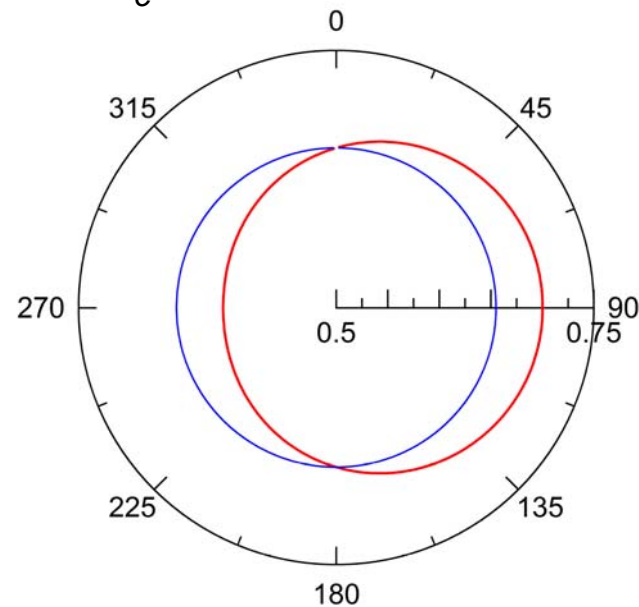
# Недипольные параметры в последовательной двойной ионизации



На первой ступени ион приобретает поляризацию



$$E_e = 400 \text{ эВ}, \text{ Cos } \theta^2 = 2/15$$



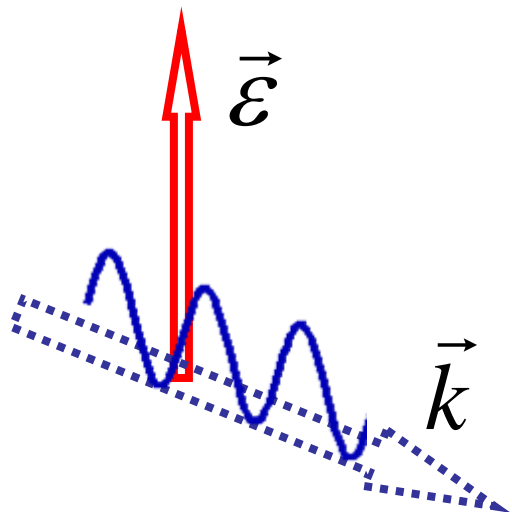
Присутствуют только при ионизации поляризованного иона

# Выводы

- ✓ В настоящее время параметры лазеров на свободных электронах достигли значений, при которых дипольное приближение может оказаться недостаточным
- ✓ Самым значительным является вклад от интерференции электрического дипольного и электрического квадрупольного моментов, который проявляется в дифференциальных по углу характеристиках
- ✓ Угловое распределение фотоэлектронов при учете недипольных эффектов заметно модифицируется, в частности теряется аксиальная симметрия относительно вектора линейной поляризации лазерного излучения
- ✓ Интерпретация недипольных эффектов в последовательной ионизации отличается от атомной ионизации за счет появления угловых параметров высоких рангов



# Учет первых недипольных поправок



$$\hat{V}_d = -\frac{e\omega}{c}(\vec{\varepsilon} \cdot \vec{r});$$

$$\hat{V}_q = i\frac{e\omega^2}{2c^2}(\vec{\varepsilon} \cdot \vec{r})(\vec{k} \cdot \vec{r}) = i\frac{e\omega^2}{2c^2}(\{\vec{k} \otimes \vec{\varepsilon}\}_2 \cdot \{\vec{r} \otimes \vec{r}\}_2)$$

$$\{\vec{r} \otimes \vec{r}\}_{2q} = \sqrt{\frac{2}{3}} \sqrt{\frac{4\pi}{5}} Y_{2q}(\vec{r} / |\vec{r}|)$$

Матричный элемент перехода

$$\langle J_1 M_1 | \hat{F} | J_0 M_0 \rangle = \sum_{\lambda} \varepsilon_{\lambda}^* \langle J_1 M_1 | \sqrt{\frac{4\pi}{3}} r \cdot Y_{1\lambda} | J_0 M_0 \rangle + \frac{i\omega}{\sqrt{6}c} \sum_{\lambda} \{\vec{k} \otimes \vec{\varepsilon}\}_{2\lambda}^* \langle J_1 M_1 | \sqrt{\frac{4\pi}{5}} r^2 \cdot Y_{2\lambda} | J_0 M_0 \rangle$$

Переход к приведенным матричным элементам неявно фиксирует систему координат

$$\langle J_1 M_1 | \hat{F} | J_0 M_0 \rangle = \sum_{\lambda} \varepsilon_{\lambda}^* \frac{(J_0 M_0 1\lambda | J_1 M_1)}{\hat{J}_1} \langle J_1 || \hat{D} || J_0 \rangle + \frac{i\omega}{\sqrt{6}c} \sum_{\lambda} \{\vec{k} \otimes \vec{\varepsilon}\}_{2\lambda}^* \frac{(J_0 M_0 2\lambda | J_1 M_1)}{\hat{J}_1} \langle J_1 || \hat{Q} || J_0 \rangle$$