Когерентный (фазовый) контроль над фотоэмиссией в двухчастотной ионизации

Попова Мария Михайловна Физический факультет МГУ, аспирантка 4 года

8 декабря 2022

План доклада

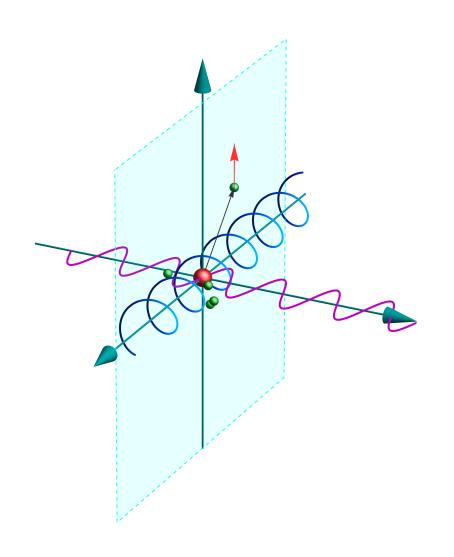
• Цель работы

• Общая теория

• Задача когерентного контроля (w+2w)

• Задача RABBITT-спектроскопии (w+13w+15w+17w)

Цель



- Разработка теоретического подхода к описанию полихроматической ионизации nω+mω VUV-полями произвольной поляризации.
- Применение развитого подхода для описания имеющихся экспериментальных данных.
- Применение развитого подхода для планирования будущих экспериментов.

План доклада

• Цель работы

• Общая теория

• Задача когерентного контроля (w+2w)

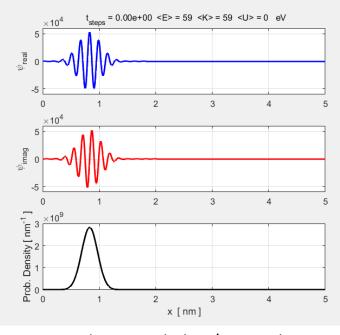
• Задача RABBITT-спектроскопии (w+13w+15w+17w)

матрица плотности электрона

$$\langle \frac{1}{2}m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2}m_s' \rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона

$$\left(\rho_{k_s q_s} \! = \! \sum_{m_s m_s'} \! (-1)^{\frac{1}{2} - m_s'} (\tfrac{1}{2} m_s, \tfrac{1}{2} - m_s' \mid k_s q_s) \langle \tfrac{1}{2} m_s \mid \rho \mid \tfrac{1}{2} m_s' \rangle \right)$$



d-arora.github.io/Doing-Physics-With-Matlab/mpDocs/se_fdtdA.htm

after some angular momentum algebra:

$$\rho_{k_sq_s} = \sum_{k_{l,\gamma}q_{l,\gamma}} B_{k_lk_sk_{\gamma}}(J_{\gamma},J_{\gamma}') \rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}(J_{\gamma},J_{\gamma}') (k_lq_l,k_sq_s \mid k_{\gamma}q_{\gamma}) Y_{k_lq_l}(\vartheta,\varphi)$$

$$egin{align} W &= \sqrt{2}
ho_{00} \ P_z &=
ho_{10}/
ho_{00} \ P_x &= -(
ho_{11}-
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \ P_y &= -i(
ho_{11}+
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \ \end{array}$$

матрица плотности электрона

$$\langle \frac{1}{2}m_s \, | \,
ho \, | \, \frac{1}{2}m_s'
angle = rac{W}{2} egin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона

Light Polarization
$$\beta = 2$$
 $\beta = 0$ $\beta = -1$
 θ

Parallel isotropic perpendicular

cluster.physik.unifreiburg.de/topics_Wavefunction_character

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{m_s m_s'} (-1)^{\frac{1}{2} - m_s'} (\frac{1}{2} m_s, \frac{1}{2} - m_s' \mid k_s q_s) \langle \frac{1}{2} m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2} m_s' \rangle$$

after some angular momentum algebra:

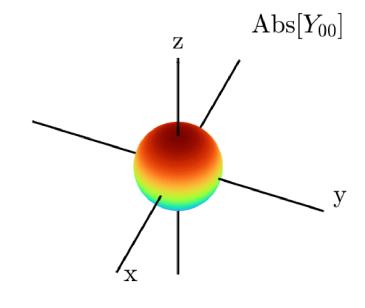
$$W=\sqrt{2}
ho_{00}$$
 $P_z=
ho_{10}/
ho_{00}$
 $P_x=-(
ho_{11}-
ho_{1-1})/(\sqrt{2}
ho_{00})$
 $P_y=-i(
ho_{11}+
ho_{1-1})/(\sqrt{2}
ho_{00})$

матрица плотности электрона

$$\langle \frac{1}{2}m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2}m_s' \rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона

$$\rho_{k_sq_s} = \sum_{m_sm_s'} (-1)^{\frac{1}{2}-m_s'} (\frac{1}{2}m_s, \frac{1}{2}-m_s' \mid k_sq_s) \langle \frac{1}{2}m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2}m_s' \rangle$$



after some angular momentum algebra:

$$egin{equation} egin{equation} egin{equati$$

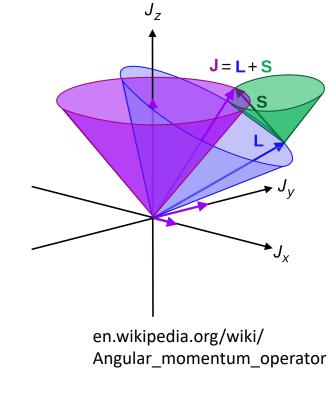
$$egin{aligned} W &= \sqrt{2}
ho_{00} \ P_z &=
ho_{10}/
ho_{00} \ P_x &= -(
ho_{11}-
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \ P_y &= -i(
ho_{11}+
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \end{aligned}$$

матрица плотности электрона

$$\langle \frac{1}{2}m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2}m_s' \rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона

$$\rho_{k_sq_s} \! = \! \sum_{m_sm'} \! (-1)^{\frac{1}{2}-m'_s} (\tfrac{1}{2}m_s, \tfrac{1}{2}-m'_s \, | \, k_sq_s) \langle \tfrac{1}{2}m_s \, | \, \rho \, | \, \tfrac{1}{2}m'_s \rangle$$



угловое распределение и спиновая поляризация

after some angular momentum algebra:

$$egin{aligned} egin{aligned} egin{aligned\\ egin{aligned} egi$$

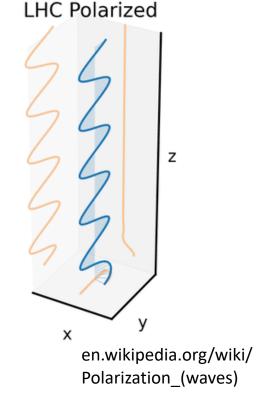
$$W=\sqrt{2}
ho_{00}$$
 $P_z=
ho_{10}/
ho_{00}$ $P_x=-(
ho_{11}-
ho_{1-1})/(\sqrt{2}
ho_{00})$ $P_y=-i(
ho_{11}+
ho_{1-1})/(\sqrt{2}
ho_{00})$

матрица плотности электрона

$$\langle \frac{1}{2}m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2}m_s' \rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{m_s m_s'} (-1)^{\frac{1}{2} - m_s'} (\frac{1}{2} m_s, \frac{1}{2} - m_s' \mid k_s q_s) \langle \frac{1}{2} m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2} m_s' \rangle$$



угловое распределение и спиновая поляризация

after some angular momentum algebra:

$$ho_{k_sq_s} = \sum_{k_{l,\gamma}q_{l,\gamma}} B_{k_lk_sk_{\gamma}}(J_{\gamma},J_{\gamma}') \left[o_{k_{\gamma}q_{\gamma}}(J_{\gamma},J_{\gamma}') (k_lq_l,k_sq_s \mid k_{\gamma}q_{\gamma}) Y_{k_lq_l}(\vartheta,\phi)
ight]$$

$$egin{align} W &= \sqrt{2}
ho_{00} \ P_z &=
ho_{10}/
ho_{00} \ P_x &= -(
ho_{11}-
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \ P_y &= -i(
ho_{11}+
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \ \end{array}$$

Статистический тензор фотона $p_{\gamma} = \sum_{\lambda} e_{\gamma}^{\lambda} n_{\lambda}$

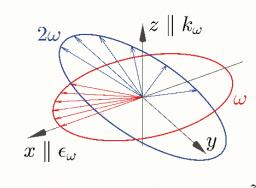
$$|\gamma
angle = \sum_{\lambda} e_{\gamma}^{\lambda} |1\lambda
angle$$

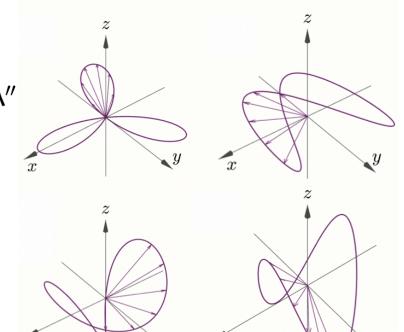
один фотон
$$\left\langle \mathbf{k}\lambda\mid \rho\mid \mathbf{k}\lambda' \right
angle = rac{1}{2}\left(egin{array}{cc} 1+P_3 & -P_1+iP_2 \ -P_1-iP_2 & 1-P_3 \end{array}
ight)$$

$$|2\gamma\rangle = \sum_{M_{\gamma}\lambda\lambda'} e_{\gamma}^{\lambda} e_{\gamma}^{\lambda'} (1\lambda, 1\lambda' | J_{\gamma}M_{\gamma}) |1\lambda\rangle |1\lambda'\rangle$$

$$|3\gamma\rangle = \sum_{M_{\gamma}m_{\gamma}\lambda\lambda'\lambda''} e_{\gamma}^{\lambda} e_{\gamma}^{\lambda'} e_{\gamma}^{\lambda''} (1\lambda, 1\lambda' | J_{n\gamma}M_{n\gamma}) (J_{n\gamma}M_{n\gamma}, 1\lambda' | J_{\gamma}M_{\gamma}) |1\lambda\rangle |1\lambda'\rangle |1\lambda''$$

$$\rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}(J_{\gamma},J'_{\gamma}) = \sum_{M_{\gamma}M'_{\gamma}} (-1)^{J'_{\gamma}-M'_{\gamma}} (J_{\gamma}M_{\gamma},J'_{\gamma}-M'_{\gamma} \mid k_{\gamma}q_{\gamma})$$
$$\langle J_{\gamma}M_{\gamma} \mid m\gamma + n\gamma \rangle \langle m\gamma + n\gamma \mid J'_{\gamma}M'_{\gamma} \rangle.$$

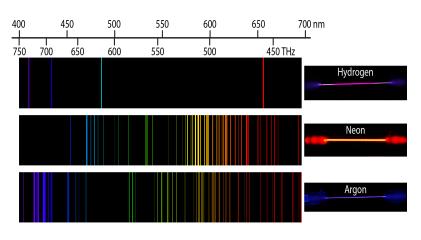




матрица плотности электрона

$$\langle rac{1}{2}m_s \, | \,
ho \, | \, rac{1}{2}m_s'
angle = rac{W}{2} egin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона



wisc.pb.unizin.org/chem109fall2021ver02/chapter/atomic-spectra/

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{m_s m_s'} (-1)^{\frac{1}{2} - m_s'} (\frac{1}{2} m_s, \frac{1}{2} - m_s' \mid k_s q_s) \langle \frac{1}{2} m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2} m_s' \rangle$$

after some angular momentum algebra:

$$egin{aligned} egin{aligned} egin{aligned\\ egin{aligned} egi$$

$$egin{align} W &= \sqrt{2}
ho_{00} \ P_z &=
ho_{10}/
ho_{00} \ P_x &= -(
ho_{11}-
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \ P_y &= -i(
ho_{11}+
ho_{1-1})/(\sqrt{2}\,
ho_{00}) \ \end{array}$$

Расчет матричных элементов перехода

$$i\,rac{\partial}{\partial t}\Psi(m{r},t) = \left(\hat{H}_{
m at}+\hat{H}_{
m int}(t)
ight)\Psi(m{r},t).$$

$$\hat{H}_{
m at} oldsymbol{arphi}_{n,arepsilon}(oldsymbol{r}) = E_{n,arepsilon} oldsymbol{arphi}_{n,arepsilon}(oldsymbol{r}), \qquad a_f(t) = a_f^{(0)}(t) \ \Psi(oldsymbol{r},t) = \sum a_n(t) oldsymbol{arphi}_n(oldsymbol{r}) e^{-iE_nt} + \int \! darepsilon \, a_arepsilon(t) oldsymbol{arphi}_{arepsilon}(oldsymbol{r}) e^{-iE_nt} \, a_f^{(0)}(t) = \delta_{fi} \ \delta_{fi}$$

$$\frac{da_f(t)}{dt} = -i \int_i e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t} \langle \varphi_f | \hat{H}_{\text{int}}(t) | \varphi_i \rangle a_i(t)$$

Решение системы скоростных уравнений (РСУ)

+: автоматический учет эффектов сильного поля

-: ресурсоемкость

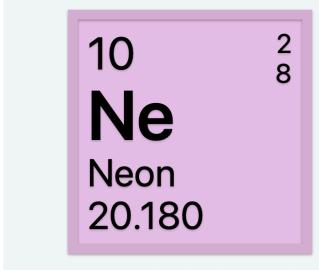
Переход к теории возмущений (ТВ)

Матричный элемент факторизуется на зависящую от времени и зависящую

$$\langle \phi_f | \widehat{H}_{
m int} | \phi_i
angle = \langle \phi_f | D | \phi_i
angle \cdot \int A(t) e^{\pm i \omega t} dt$$
 от мишени части

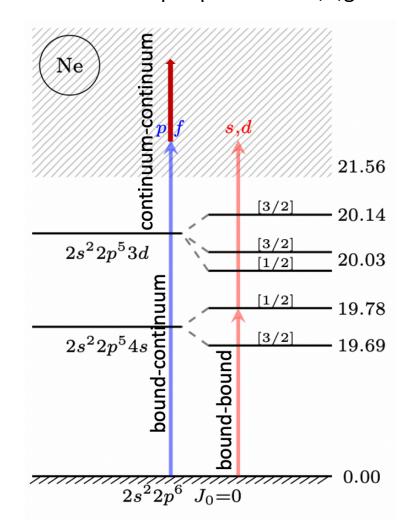
Расчет методами R-матрицы и МСНF

Расчет матричных элементов перехода



Oxidation states	N/A
Configuration	[He] 2s ² 2p ⁶
Expanded	1s² 2s² 2p ⁶
Energy levels	2, 8
HOAO	l=1, m=1, n=2

Дипольные переходы: Однофотонные: s,d-волны Двухфотонные: p,f-волны Трехфотонные: s,d,g-волны





Расчет матричных элементов

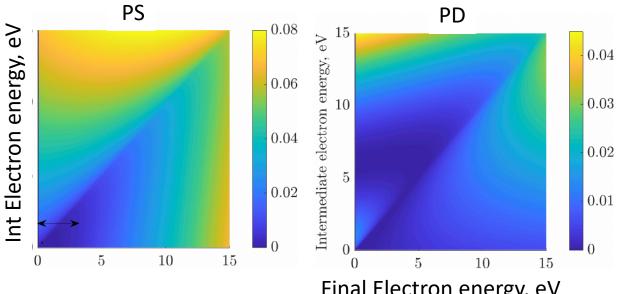
bound-bound (MCHF+R-матрица):

Состояние	Е, эВ	RME	Лидирующие конфигурации
$2p^5(^2P_{3/2})3s[3/2]$	16.67	-0.25	$-0.92 2p^{5}3s~^{3}P\rangle -0.39 2p^{5}3s~^{1}P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})3s[1/2]$	16.85	0.60	$-0.38 2p^{5}3s~^{3}P angle + 0.92 2p^{5}3s~^{1}P angle$
$2p^5(^2P_{3/2})4s[3/2]$	19.69	-0.19	$-0.69 2p^54s~^3P angle -0.71 2p^54s~^1P angle$
$2p^5(^2P_{1/2})4s[1/2]$	19.78	-0.18	$0.71 2p^54s~^3P angle - 0.69 2p^54s~^1P angle$
$2p^5(^2P_{3/2})3d[1/2]$	20.03	0.10	$0.89 2p^{5}3d~^{3}P\rangle - 0.43 2p^{5}3d~^{1}P\rangle - 0.12 2p^{5}3d~^{3}D\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})3d[3/2]$	20.04	-0.17	$0.27 2p^{5}3d~^{3}P\rangle + 0.72 2p^{5}3d~^{1}P\rangle - 0.64 2p^{5}3d~^{3}D\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})3d[3/2]$	20.14	0.13	$-0.36 2p^{5}3d\ ^{3}P\rangle -0.54 2p^{5}3d\ ^{1}P\rangle -0.76 2p^{5}3d\ ^{3}D\rangle$

(CPC, **174** (2006)

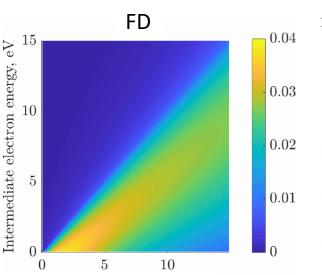
Fischer, Computational Atomic Structure, 1994)

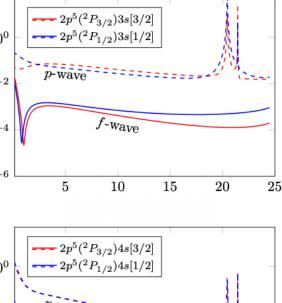
continuum-continuum (MCHF + PRA, 50, (1994))

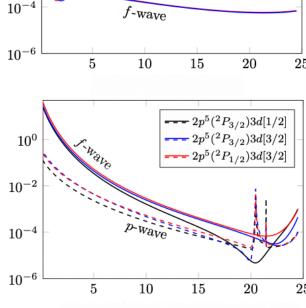


Final Electron energy, eV

bound-continuum (MCHF+R): 100 = 2.5- - s-wave - d-wave 1.5 0.520 10 15 2!Electron energy, eV







Electron energy, eV

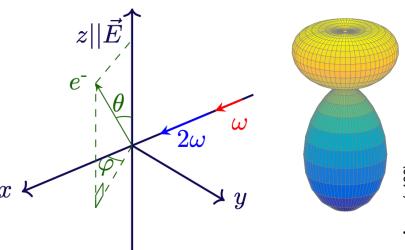
План доклада

• Цель работы

• Общая теория

• Задача когерентного контроля (w+2w)

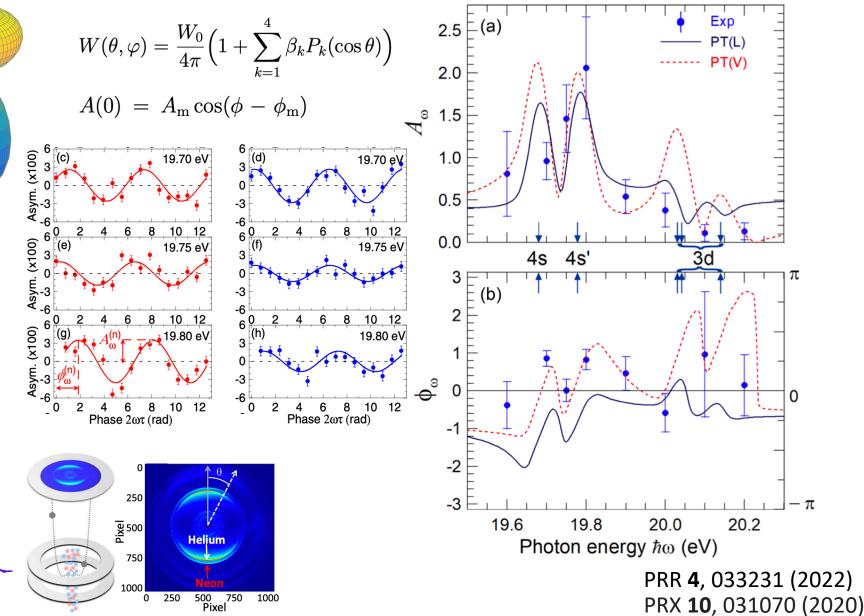
• Задача RABBITT-спектроскопии (w+13w+15w+17w)



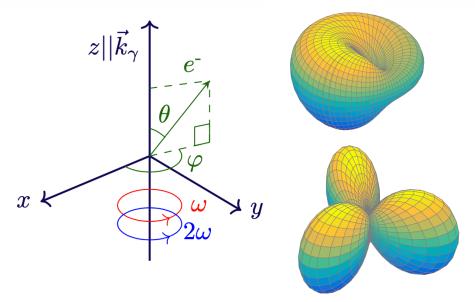
Выводы:

- 1) Рассматриваемые эффекты поддается наблюдению.
- 2) Подход позволяет качественно описать экспериментальные данные.

 2ω

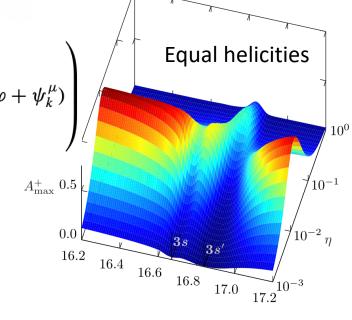


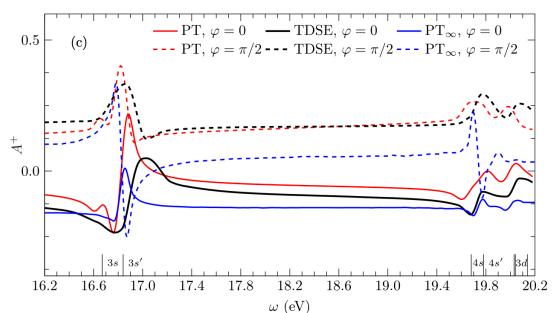
Результаты:
$$\omega + 2\omega$$
 $E_{\omega+2\omega}(t) = E_{\omega}(t)e_{\omega}e^{-i\omega t} + E_{2\omega}(t)e_{2\omega}e^{-i(2\omega t + \phi)}$



$$W(\theta,\varphi) = \frac{W_0}{4\pi} \left(1 + \sum_{\substack{k>0\\0\leqslant \mu \leqslant k}} |\beta_k^{\mu}| P_k^{\mu}(\cos\theta) \cos(\mu\varphi + \psi_k^{\mu}) \right)$$

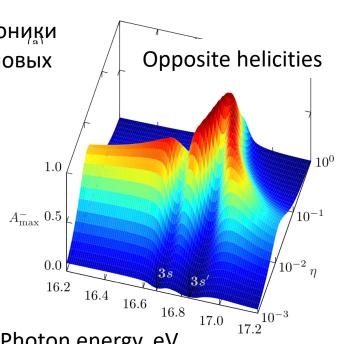
$$A\left(\frac{\pi}{2},\varphi\right) = \frac{W\left(\frac{\pi}{2},\varphi\right) - W\left(\frac{\pi}{2},\varphi + \pi\right)}{W\left(\frac{\pi}{2},\varphi\right) + W\left(\frac{\pi}{2},\varphi + \pi\right)}$$





Выводы:

- 1) Изменение фазы второй гармоники приводит только к вращению угловых распределений.
- 2) Возможности когерентного контроля с помощью изменения интенсивности выше для случая гармоник противоположных Спиральностей.



Photon energy, eV

PRA **100**, 063417 (2019)

$$W(\vartheta,\varphi) = \sum_{kq} \beta_{kq} Y_{kq}(\vartheta,\varphi)$$

$$W = S_1(\vartheta, \varphi) + S_2(\vartheta, \varphi) \cos(\phi - \phi_{\max}(\vartheta, \varphi))$$

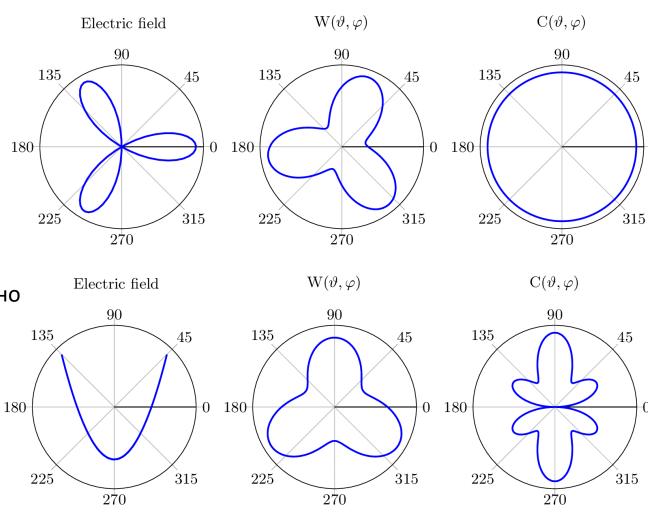
Выводы:

- 1) Возможности когерентного контроля выше для предельных поляризаций полей.
- 2) При варьировании фазы второй гармоники угловое распределение фотоэлектронов может как вращаться, так и изменять свою форму. Чистое вращение характерно для полей круговой поляризации, чистое изменение формы для полей линейной поляризации.

$$A\left(\frac{\pi}{2},\varphi\right) = \frac{W\left(\frac{\pi}{2},\varphi\right) - W\left(\frac{\pi}{2},\varphi + \pi\right)}{W\left(\frac{\pi}{2},\varphi\right) + W\left(\frac{\pi}{2},\varphi + \pi\right)}$$

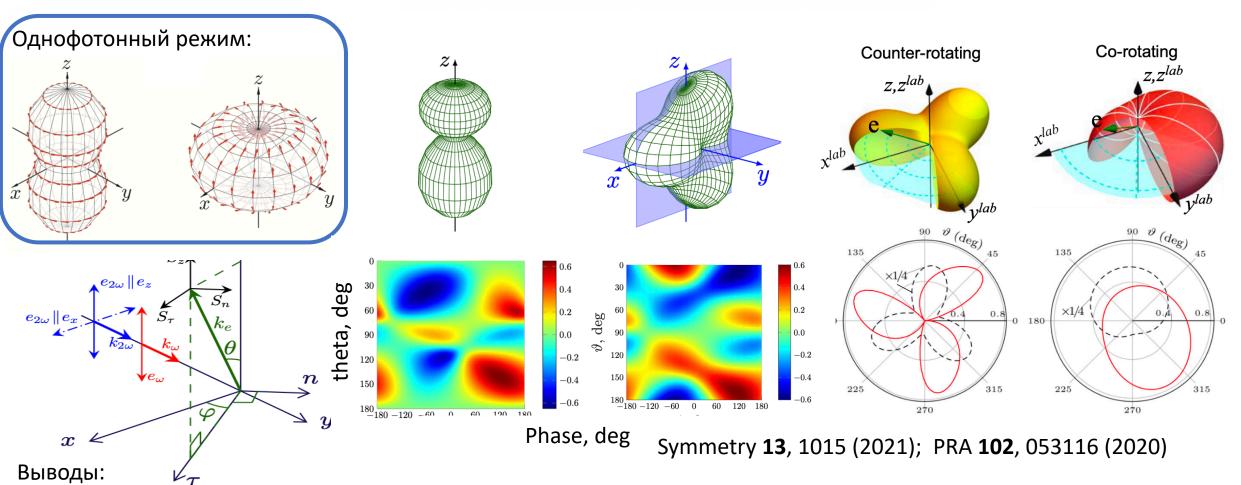
$$A(0) = A_{\rm m}\cos(\phi - \phi_{\rm m})$$

Трансформация формы угловых распределений



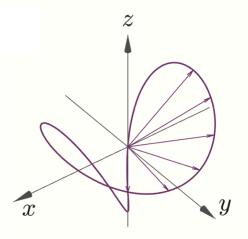
$$C(\vartheta,\varphi) = \left| \frac{W(\vartheta,\varphi)_{\phi = \phi_{\max}} - W(\vartheta,\varphi)_{\phi = \phi_{\max} + \pi}}{W(\vartheta,\varphi)_{\phi = \phi_{\max}} + W(\vartheta,\varphi)_{\phi = \phi_{\max} + \pi}} \right|$$

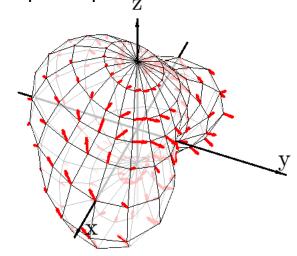
ЖЭТФ, **162**, 1 (7), 72–86 (2022)

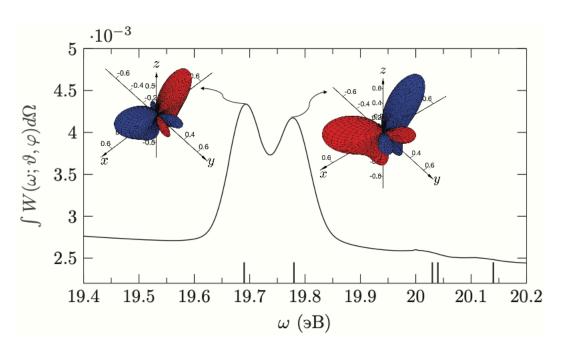


- При ω+2ω ионизации ожидается высокая степень спиновой поляризации при энергиях фотонов ω в окрестности возбужденных состояний. Степень когерентного контроля над спиновой поляризацией может быть больше 50%.
 Для гармоник, линейно поляризованных в одном направлении, не появляется новых компонент спиновой поляризации. Для гармоник, поляризованных в перпендикулярных направлениях, появляются другие компоненты.
- 3) Для циркулярно поляризованных в одной плоскости гармоник компонента P_z спиновой поляризации имеет ту же форму, что и угловые распределения, и появляются другие компоненты спиновой поляризации.

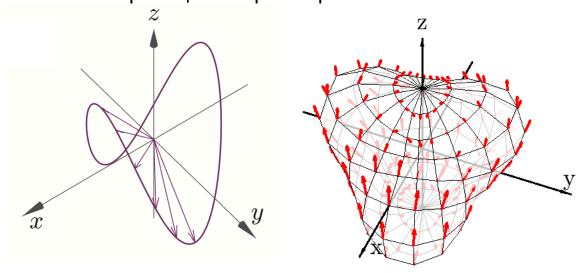
Линейная поляризации основной гармоники Циркулярная поляризации второй гармоники

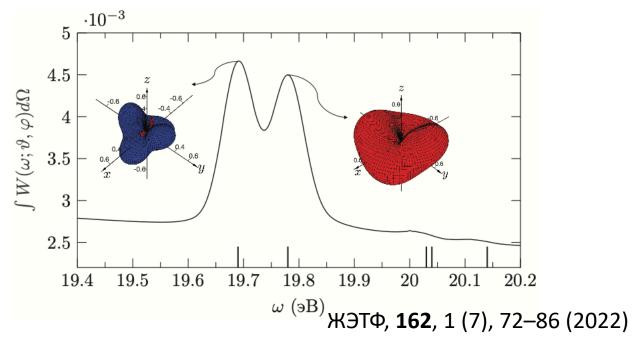






Циркулярная поляризации основной гармоники Линейная поляризации второй гармоники





План доклада

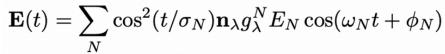
• Цель работы

• Общая теория

• Задача когерентного контроля (w+2w)

• Задача RABBITT-спектроскопии (w+13w+15w+17w)

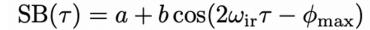
Результаты: RABBITT

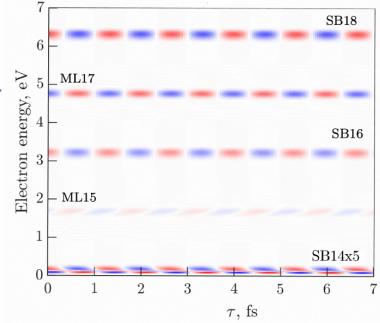


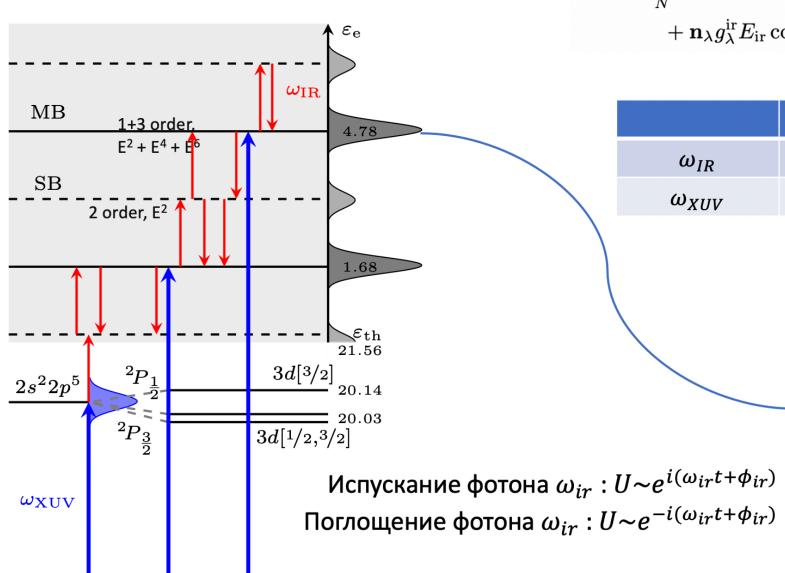
$$+\mathbf{n}_{\lambda}g_{\lambda}^{\mathrm{ir}}E_{\mathrm{ir}}\cos^{2}(t/\sigma_{\mathrm{ir}})\cos(\omega_{\mathrm{ir}}t+\phi_{\mathrm{ir}}),$$

$$\lambda_{IR} = 798 \div 806 \, nm$$

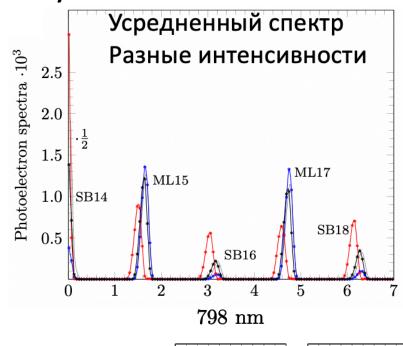
	I, Вт/см ²	Т, фс
ω_{IR}	$0.25 \div 4 \cdot 10^{12}$	20
ω_{XUV}	$4\cdot 10^9$	10





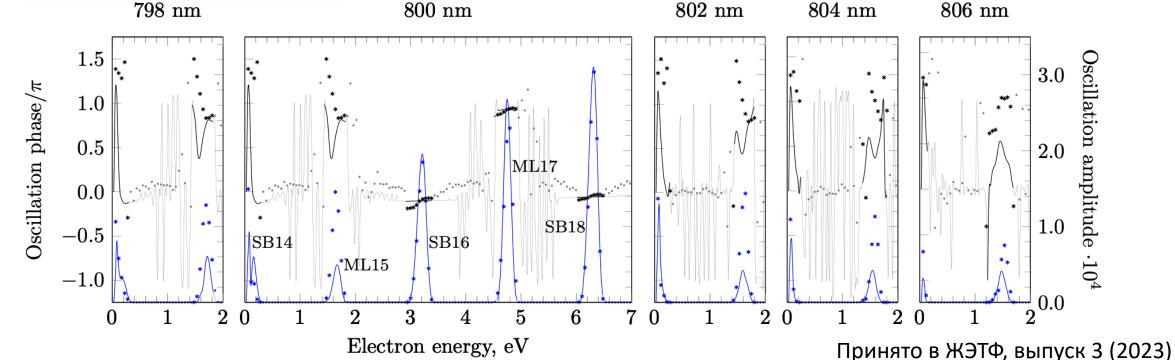


Результаты: RABBITT

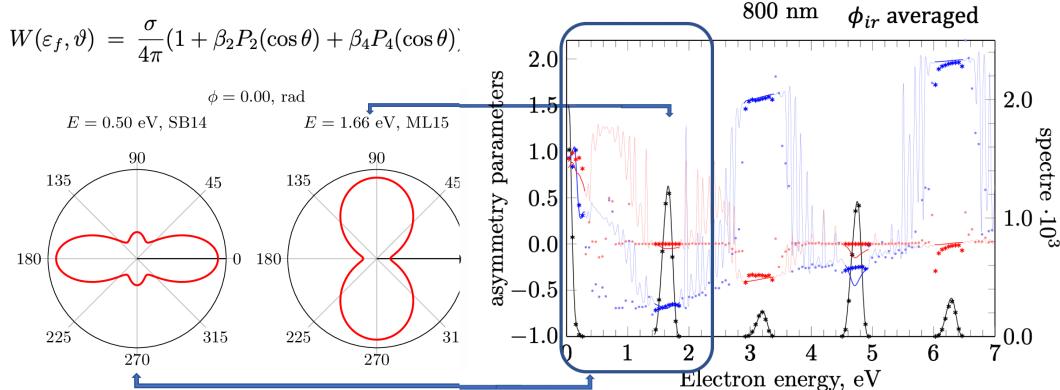


Выводы:

- 1) В припороговой области ТВ не позволяет учесть все эффекты, и это связано не только со Штарковским сдвигом.
- 2) Для более высоких энергий результаты полностью совпадают.
- 3) Возможность возбуждения дискретных состояний приводит к резкой модуляции припороговой боковой линии с энергией, проявляясь как в формировании внутренней структуры, так и в скачкообразном изменении фазы.

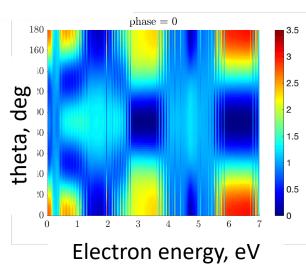


Результаты: RABBITT



Выводы:

- 1) Форма угловых распределений зависит от фазы ϕ_{ir} существенно слабее, чем интегральный фотоэлектронный спектр.
- 2) В основных линиях параметр угловой анизотропии β_2 близок к однофотонномму, но немного отклоняются от него. Зависимость от фазы ϕ_{ir} проявляется, в основном, для параметра β_4 , который существует исключительно благодаря взаимодействию с IR полем. 3) Параметры угловой анизотропии в припороговом сайдбенде существенно отличаются от параметров угловой анизотропии в остальных.



Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ, грант No 075-15-2021-1353; Российского фонда фундаментальных исследований (РФФИ), грант No 20-52-12023; Министерства науки и высшего образования РФ (проект No 0818-2020-0005) с использованием вычислительных ресурсов ЦКП 'Центр данных ДВО РАН'.

Спасибо за внимание!