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)





- 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

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

статистический тензор электрона

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



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

угловое распределение и спиновая поляризация

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_{l,\gamma} q_{l,\gamma}} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma')(k_l q_l, k_s q_s \mid k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi)$$

$$W = \sqrt{2}\rho_{00}$$

$$P_z = \rho_{10}/\rho_{00}$$

$$P_x = -(\rho_{11} - \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00})$$

$$P_y = -i(\rho_{11} + \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00})$$

матрица плотности электрона

$$\langle \frac{1}{2}m_s \left| \left. \mathbf{\rho} \right| \frac{1}{2}m'_s
ight
angle = rac{W}{2} egin{pmatrix} 1+P_z & P_x-iP_y \ P_x+iP_y & 1-P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона



cluster.physik.uni-

freiburg.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:

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_{l,\gamma} q_{l,\gamma}} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma')(k_l q_l, k_s q_s \mid k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi)$$

угловое распределение и спиновая поляризация

$$W = \sqrt{2}\rho_{00}$$

$$P_z = \rho_{10}/\rho_{00}$$

$$P_x = -(\rho_{11} - \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00})$$

$$P_y = -i(\rho_{11} + \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00})$$

матрица плотности электрона

$$\left\langle \frac{1}{2}m_s \left| \right. \mathbf{\rho} \left| \right. \frac{1}{2}m'_s \right\rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

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

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_{l,\gamma} q_{l,\gamma}} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma')(k_l q_l, k_s q_s \mid k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi)$$

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

$$Abs[Y_{00}]$$

матрица плотности электрона

$$\left\langle \frac{1}{2}m_s \left| \right. \mathbf{\rho} \left| \left. \frac{1}{2}m'_s \right\rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}\right\rangle$$

статистический тензор электрона

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

en.wikipedia.org/wiki/ Angular_momentum_operator

угловое распределение и спиновая поляризация

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_{l,\gamma} q_{l,\gamma}} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') (k_l q_l, k_s q_s \mid k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi)$$

$$W = \sqrt{2}\rho_{00}$$

$$P_z = \rho_{10}/\rho_{00}$$

$$P_x = -(\rho_{11} - \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00})$$

$$P_y = -i(\rho_{11} + \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00})$$



матрица плотности электрона

$$\left\langle \frac{1}{2}m_s \left| \right. \mathbf{\rho} \left| \right. \frac{1}{2}m'_s \right\rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}$$

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

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_{l,\gamma} q_{l,\gamma}} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') (k_l q_l, k_s q_s \mid k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi)$$

$$W = \sqrt{2}
ho_{00}$$

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

Статистический тензор фотона $p_{\gamma} = \sum e_{\gamma}^{\lambda} n_{\lambda}$ один фотон $z \parallel k_{\omega}$ $\langle \mathbf{k}\lambda | \rho | \mathbf{k}\lambda' \rangle = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1+P_3 & -P_1+iP_2 \\ -P_1-iP_2 & 1-P_3 \end{pmatrix}$ $|\gamma
angle = \sum_{\lambda} e_{\gamma}^{\lambda} |1\lambda
angle$ $\tilde{x} \parallel \epsilon_{\omega}$ $|2\gamma\rangle = \sum e_{\gamma}^{\lambda} e_{\gamma}^{\lambda'} (1\lambda, 1\lambda' | J_{\gamma} M_{\gamma}) |1\lambda\rangle |1\lambda'\rangle$ $M_{\gamma}\lambda\lambda'$ $|3\gamma\rangle = \sum e_{\gamma}^{\lambda} e_{\gamma}^{\lambda'} e_{\gamma}^{\lambda''} (1\lambda, 1\lambda' | J_{n\gamma} M_{n\gamma}) (J_{n\gamma} M_{n\gamma}, 1\lambda' | J_{\gamma} M_{\gamma}) |1\lambda\rangle |1\lambda'\rangle |1\lambda''$ $M_{\gamma}m_{\gamma}\lambda\lambda'\lambda''$ $\rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}(J_{\gamma},J_{\gamma}') = \sum (-1)^{J_{\gamma}'-M_{\gamma}'}(J_{\gamma}M_{\gamma},J_{\gamma}'-M_{\gamma}' \mid k_{\gamma}q_{\gamma})$ $M_{\nu}M'_{\nu}$ $\langle J_{\gamma}M_{\gamma}|m\gamma+n\gamma\rangle\langle m\gamma+n\gamma|J_{\gamma}'M_{\gamma}'\rangle$.

Формализм статистических тензоров

матрица плотности электрона

$$\left\langle \frac{1}{2}m_s \left| \right. \rho \left| \left. \frac{1}{2}m'_s \right\rangle \right. = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1+P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1-P_z \end{pmatrix}$$

статистический тензор электрона

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

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

угловое распределение и спиновая поляризация

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_{l,\gamma} q_{l,\gamma}} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma') \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J_\gamma')(k_l q_l, k_s q_s \mid k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi)$$

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

Расчет матричных элементов перехода

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\boldsymbol{r},t) = \left(\hat{H}_{\mathrm{at}} + \hat{H}_{\mathrm{int}}(t)\right) \Psi(\boldsymbol{r},t).$$

Переход к теории возмущений (ТВ)

$$\begin{split} \hat{H}_{at}\varphi_{n,\varepsilon}(\mathbf{r}) &= E_{n,\varepsilon}\varphi_{n,\varepsilon}(\mathbf{r}), \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= \sum_{n} a_{n}(t)\varphi_{n}(\mathbf{r})e^{-iE_{n}t} + \int d\varepsilon \, a_{\varepsilon}(t)\varphi_{\varepsilon}(\mathbf{r})e^{-iE_{\varepsilon}t} & a_{f}^{(0)}(t) &= \delta_{fi} \\ \frac{da_{f}(t)}{dt} &= -i \sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{i})t}\langle\varphi_{f} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= \sum_{n} a_{n}(t)\varphi_{n}(\mathbf{r})e^{-iE_{n}t} + \int d\varepsilon \, a_{\varepsilon}(t)\varphi_{\varepsilon}(\mathbf{r})e^{-iE_{\varepsilon}t} & a_{f}^{(0)}(t) &= \delta_{fi} \\ \frac{da_{f}(t)}{dt} &= -ie^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{i})t}\langle\varphi_{f} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{f} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t) \\ \Psi(\mathbf{r},t) &= -i\sum_{i} e^{i(\varepsilon_{f}-\varepsilon_{n})t}\langle\varphi_{i} \mid \hat{H}_{int}(t) \mid \varphi_{i}\rangle \, a_{i}^{(1)}(t)$$

 $\langle \phi_f | H_{\text{int}} | \phi_i \rangle = \langle \phi_f | D | \phi_i \rangle \cdot \int A(t) e^{-t \omega t} at$ Расчет методами R-матрицы и MCHF

Расчет матричных элементов перехода



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

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







Final 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.

ω

2) Подход позволяет качественно описать экспериментальные данные.

2ω











U

 Изменение фазы второй гармоники приводит только к вращению угловых распределений.
 Возможности когерентного контроля с помощью изменения интенсивности выше для случая
 ^{1.0} гармоник противоположных Спиральностей.





PRA 100, 063417 (2019)

 $z||ec{k}_\gamma|$

 \boldsymbol{x}

$$W(artheta,arphi) = \sum_{kq} eta_{kq} Y_{kq}(artheta,arphi)$$

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

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.

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

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

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

Трансформация формы угловых распределений



ЖЭТФ, **162**, 1 (7), 72–86 (2022)



Выводы:

1) При **w**+2**w** ионизации ожидается высокая степень спиновой поляризации при энергиях фотонов **w** в окрестности возбужденных состояний. Степень когерентного контроля над спиновой поляризацией может быть больше 50%. 2) 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 Р, 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



$$\begin{split} \mathbf{E}(t) &= \sum_{N} \cos^2(t/\sigma_N) \mathbf{n}_{\lambda} g_{\lambda}^N E_N \cos(\omega_N t + \phi_N) \\ &+ \mathbf{n}_{\lambda} g_{\lambda}^{\mathrm{ir}} E_{\mathrm{ir}} \cos^2(t/\sigma_{\mathrm{ir}}) \cos(\omega_{\mathrm{ir}} t + \phi_{\mathrm{ir}}), \end{split}$$

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



Результаты: RABBITT



Выводы:

-) 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.
- 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.

 В основных линиях параметр угловой анизотропии β₂ близок к однофотонномму, но немного отклоняются от него. Зависимость от фазы φ_{ir} проявляется, в основном, для параметра β₄, который существует исключительно благодаря взаимодействию с IR полем.
 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!