ВЕКТОРНЫЕ КОРРЕЛЯЦИИ В НЕЛИНЕЙНЫХ ПРОЦЕССАХ ИОНИЗАЦИИ АТОМОВ ВЫСОКОЧАСТОТНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

Елена Владимировна Грызлова НИИ ядерной физики имени Д.В. Скобельцына МГУ имени М.В. Ломоносова





12 октября 2023, Москва

План доклада

•Актуальность, цели и задачи

•Теоретический подход

•Угловые распределения при последовательной ионизации и теорема о подобии

Проблемы для обсуждения:

Полный (*Complete/perfect*) эксперимент;
 Влияние когерентности;
 Ранее не наблюдавшиеся состояния;

Метод извлечения параметра сверхтонкой структуры для частично перекрывающихся подуровней

•Формальная часть

Сравнение источников излучения



Рассматриваемые процессы



Преимущества последовательной ионизации



Наблюдаемые величины



Теоретический подход

- 1. Процессы рассматривается как последовательные.
- 2. Метод матрицы плотности и статистических тензоров углового момента для представления наблюдаемых в терминах приведенных амплитуд процессов.
- **3**. **В**заимодействие атома (иона) с полем рассматривается либо в электрическом дипольном приближении (*E1*), либо при учете первых недипольных поправок (*E1*&*E2*).
- **4.** Приведенные амплитуды рассчитываются отдельно с соответствующей случаю спектроскопической точностью; чаще всего методами самосогласованного поля MCHF или с учетом корреляций в непрерывном спектре методом R-матрицы.



Режимы взаимодействия с атомами



Последовательная 2PDI инертных газов

2PDI - двух фотонная двойная ионизация



Поляризация состояния

Поляризация состояния (поляризация углового момента) характеризует неравномерность заселения по различным проекциям

$$A_{k} = \frac{\sum_{M}^{M} (-1)^{J-M} (JMJ - M \mid k0) \rho_{JM,JM}}{\sum_{M}^{M} (-1)^{J-M} (JMJ - M \mid 00) \rho_{JM,JM}} = \frac{\sum_{M}^{M} (-1)^{J-M} (JMJ - M \mid k0) \rho_{JM,JM}}{\sqrt{2J+1}}$$



$$A_{20} = \frac{(N_{3/2} + N_{-3/2} - N_{1/2} - N_{-1/2})}{(N_{3/2} + N_{-3/2} + N_{1/2} + N_{-1/2})}; \qquad A_{10} = \frac{1}{\sqrt{5}} \frac{(3N_{3/2} + N_{1/2} - 3N_{-3/2} - N_{-1/2})}{(N_{3/2} + N_{-3/2} + N_{1/2} + N_{-1/2})}$$

Выстроенность Ориентация

Теоретический подход



Динамические параметры



Конструирование наблюдаемых

Вероятность процесса (функция угловой корреляции) 2PDI Z

 $\rho \sim \Lambda$

Угловое распределение второго электрона k₁=0

$$W(\theta_2) = \frac{W_0}{4\pi} (1 + \beta_2^{(2)}) p_2(\cos\theta_2) + \beta_4^{(2)} P_4(\cos\theta_2)) \qquad \beta_2 \sim \beta_2 + (\sim A_2)$$

$$\beta_2 \qquad \beta_2 \qquad \beta_2 \qquad \beta_2 \qquad \beta_2 + \beta_4 \qquad \beta_2 \qquad \beta_2 = \beta_2 + \beta_4 \qquad \beta_3 = \beta_4 - \beta_2 = \beta_2 + \beta_4 \qquad \beta_4 = \beta_2 = \beta_2 + \beta_4 \qquad \beta_4 = \beta_4 + \beta_4 + \beta_4 \qquad \beta_4 = \beta_4 + \beta$$

Конструирование наблюдаемых

Вероятность процесса (функция угловой корреляции) 2PDI Z

$$W(\theta_{1},\phi_{1};\theta_{2},\phi_{2}) = \sum_{\substack{k_{\gamma1}k_{\gamma2}k_{i}q_{i}\\k_{1}q_{1}k_{2}q_{2}J_{i}J'_{i}}} B(k_{i},k_{1},k_{i})\tilde{B}(k_{i},k_{\gamma_{2}},k_{2}) \times Feometrometrom vacuum (k_{1},k_{1},k_{1})\tilde{B}(k_{i},k_{\gamma_{2}},k_{2}) \times Feometrom vacuum (k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{\gamma_{2}})(k_{2},k_{2}) \times Feometrom vacuum (k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{\gamma_{2}})(k_{2},k_{2}) \times Feometrom vacuum (k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{\gamma_{2}})(k_{2},k_{2}) \times Feometrom vacuum (k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{1},k_{2})(k_{1},k_{2}) \times Feometrom vacuum (k_{1},k_{1},k_{1})(k_{1},k_{1},k_{2})(k_{2},k_{2})(k_{1},k_{2})(k_{1},k_{2})(k_{1},k_{2})(k_{1},k_{2})(k_{1},k_{2})(k_{1},k_{2})(k_{1},k_{2})(k_{2$$

Угловое распределение второго электрона k₁=0 $W(\mathcal{G}_2) = \frac{W_0}{4\pi} (1 + \beta_2^{(2)}) P_2(\cos \theta_2) + \beta_4^{(2)} P_4(\cos \theta_2)) \qquad \beta_4 \sim A_i$ $\beta_2 \sim \beta_2 + (\sim A_i)$ В обычной фотоионизации нет параметра β_4 $W(\mathcal{G}_1) = \frac{W_0}{4\pi} (1 + \beta_2^{(1)}) P_2(\cos \theta_1) + \beta_4^{(1)} P_4(\cos \theta_1))$

Угловые распределения при 2PDI неона



M. Braune et al J.Mod. Opt. 63,324 (2015)

Сходство угловых распределений





Photoelectron lines

| 1s | 2s | 2p | |
|-------------------------|-----------------------------------|-------------------------|-----------------------|
| $\sigma(Mb)$ references | σ(Mb) references | $\sigma(Mb)$ references | β references |
| [73] Soito 92 | [74] Schartner 92 | □ [67] Wuilleumier 79 | [76] Southworth 86 |
| RADAR [12] Berkowitz 79 | [73] Saito 92 | O [73] Saito 92 | O [77] Becker 94 |
| | [67] Wuilleumier 79 | [38] Marr 76 | [78] Derenbach 83 |
| | + [75] Wuilleumier 74 | × [75] Wuilleumier 74 | [79] Codling 76 |
| | [12] Berkowitz 79 | [12] Berkowitz 79 | + [80] Dehmer 75 |
| | [68] Yeh 93 | [68] Yeh 93 | × [75] Wuilleumier 74 |
| | [72] Johnson 79 | [72] Johnson 79 | [68] Yeh 93 |
| | [69] Kennedy 72 | [69] Kennedy 72 | [72] Johnson 79 |
| | | | [69] Kennedy 72 |
| | | | [70] Amusia 72 |

$$2p^{61}S+\gamma \rightarrow 2p^{5}{}^{2}P+\begin{cases} \varepsilon S \ ^{2}P\\ \varepsilon d \ ^{2}P \end{cases}$$

$$2p^{5^{2}P+\gamma\rightarrow 2p^{4^{3}P+}}\begin{cases} \varepsilon s \ ^{2}P\\ \varepsilon d \ ^{2}P\\ \varepsilon d \ ^{2}D\end{cases}$$

Теорема о подобии

E.V. Gryzlova et al JESRP, 204, 277, (2015).

Similarity between the angular distributions of the first- and second-step electrons in sequential two-photon atomic double ionization

$$\left\langle LSJ \left| \left| \hat{D} \right| \left| L_0 SJ_0 \right\rangle = \hat{J}\hat{J}_0 (-1)^{L+J_0+S+1} \left\{ \begin{array}{cc} J & L & S \\ L_0 & J_0 & 1 \end{array} \right\} \left\langle L \left| \left| \hat{D} \right| \right| L_0 \right\rangle = \\ \hat{J}\hat{J}_0 (-1)^{L+J_0+S+1} \left\{ \begin{array}{cc} J & L & S \\ L_0 & J_0 & 1 \end{array} \right\} LL_0 (-1)^{L+J_0+L_f+1} \left\{ \begin{array}{cc} l & L & L_f \\ L_0 & l_0 & 1 \end{array} \right\} \left\langle l \left| \left| \hat{D} \right| \right| l_0 \right\rangle$$

$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega_i} = (\pi\alpha\omega)^2 \sum_{KM} C_K^M Y_{KM} (\vartheta_i \varphi_i)$$

Предполагаем, что матричные элементы слабо зависят от терма и полного момента системы

Аналитическое суммирование по полным (J) и орбитальным (L) моментам системы

$$C_{K}^{M} = 4\pi (l_{0} + 1)\hat{l}_{0}\hat{K}^{-1} \sum_{kk'll'\lambda} D_{k} \begin{cases} l_{0} & l_{0} & k \\ l_{0} & l_{0} & L_{f} \end{cases} (-1)^{ph} \hat{l}\hat{l}'(l0l'0 | K0) \begin{cases} l_{0} & l_{0} & k \\ 1 & 1 & \lambda \end{cases}$$
$$\begin{cases} l_{0} & 1 & l \\ l_{0} & 1 & l' \\ k & k' & K \end{cases} d_{l}d_{l'}^{*} | d_{\lambda} |^{2} (k_{\gamma}q_{\gamma} k_{\gamma'}q_{\gamma'} | KM) \rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}} \rho_{k_{\gamma'}q_{\gamma'}}$$

$$ph = k + \lambda + l_0 + l' + L_f + 1 \qquad D_k = \sum_{J_i J_i'} h(J_i J_i') \hat{J}_i^2 \hat{J}_i'^2 \begin{cases} l_0 & l_0 & k \\ J_i & J_i' & 1/2 \end{cases}^2$$

Фактор деполяризации

Теорема о подобии

E.V. Gryzlova et al JESRP, 204, 277, (2015).

Similarity between the angular distributions of the first- and second-step electrons in sequential two-photon atomic double ionization

$$\langle LSJ || \hat{D} || L_{0}SJ_{0} \rangle = \hat{J}\hat{J}_{0}(-1)^{L+J_{0}+S+1} \begin{cases} J & L & S \\ L_{0} & J_{0} & 1 \end{cases} \langle L || \hat{D} || L_{0} \rangle =$$

$$\hat{J}\hat{J}_{0}(-1)^{L+J_{0}+S+1} \begin{cases} J & L & S \\ L_{0} & J_{0} & 1 \end{cases} \langle L_{0}(-1)^{L+J_{0}+L_{f}+1} \begin{cases} l & L & L_{f} \\ L_{0} & l_{0} & 1 \end{cases} \langle l || \hat{D} || l_{0} \rangle$$

$$C_{K}^{M} = 4\pi (l_{0}+1)\hat{l}_{0}\hat{K}^{-1} \sum_{kk'll'\lambda} D_{k} \begin{pmatrix} l_{0} & l_{0} & k \\ l_{0} & l_{0} & L_{f} \end{pmatrix} (-1)^{ph} \hat{l}\hat{l}' (l0l'0 || K0) \begin{cases} l_{0} & l_{0} & k \\ 1 & 1 & \lambda \end{cases} \begin{pmatrix} h(J_{i}J_{i}') = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix} \\ h(J_{i}J_{i}') = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} l_{0} & 1 & l \\ l_{0} & 1 & l' \\ k & k' & K \end{cases} d_{l}d_{l'}^{*} |d_{\lambda}|^{2} (k_{\gamma}q_{\gamma}k_{\gamma'}q_{\gamma'} || KM) \rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}\rho_{k_{\gamma'}q_{\gamma'}} \qquad D_{k} = \sum_{J_{i}J_{i}'} h(J_{i}J_{i}')\hat{J}_{i}^{2}\hat{J}_{i}^{2} \left\{ \begin{pmatrix} l_{0} & l_{0} & k \\ J_{i} & J_{i}' & 1/2 \end{pmatrix} \right\}^{2}$$

Симметрия относительно замены первого электрона на второй;

Проявление поляризации для термов конечного иона ¹S,³P,¹D относится как 1:-1/2:1/10;

D₀=1, D₂=1 (LS) и D₂=1/3 (LS J): роль поляризации при когерентном заселении подуровней тонкой структуры в три раза выше, чем при некогерентном

Обсуждаемые проблемы

Полный (Complete or perfect) эксперимент;

Влияние когерентности;

■Ранее не наблюдавшиеся состояния;

Роль поляризации иона



Роль поляризации иона



Полный эксперимент (гладкий континуум)

Четыре измеряемых второго электрона

 $\beta_2^{(Lin)}, \beta_4^{(Lin)}, \beta_2^{(Cir)}, \beta_4^{(Cir)}$

 $A_2 = \frac{N_1 + N_{-1} - 2N_0}{\sqrt{2}}$

В рамках модели Купера-Заре, то есть пренебрегая зависимостью от терма состояний непрерывного спектра, есть три неизвестных реальных величины

$$\frac{d_s^{(2)}}{d_d^{(2)}} = \left| \frac{d_s^{(2)}}{d_d^{(2)}} \right| \exp[i \operatorname{Arg}[d_s^{(2)} / d_d^{(2)}]]$$

$$\beta_{2} + \beta_{4} + \beta_{4}$$

$$A_{k} = F \left[\left| d_{s}^{(1)} / d_{d}^{(1)} \right|^{2} \right]$$

Полный эксперимент (гладкий континуум)

Четыре измеряемых второго электрона

 $\beta_2^{(Lin)}, \beta_4^{(Lin)}, \beta_2^{(Cir)}, \beta_4^{(Cir)}$

Одна измеряемая первого электрона

$$\beta_2^{(Lin)} = -2\beta_2^{(Cir)}$$

В рамках модели Купера-Заре есть три неизвестных реальных величины

$$\frac{d_s^{(2)}}{d_d^{(2)}} = \left| \frac{d_s^{(2)}}{d_d^{(2)}} \right| \exp[i \operatorname{Arg}[d_s^{(2)} / d_d^{(2)}]]$$

 $A_2 = \frac{N_1 + N_{-1} - 2N_0}{\sqrt{2}}$

$$\beta_{2} + \beta_{4} + \beta_{4$$

+ одна действительная величина первой ступени

 $Arg[d_{s}^{(1)} / d_{d}^{(1)}]$

Параметры угловой анизотропии



Полный эксперимент (гладкий континуум)



Полный эксперимент (область резонанса)

Четыре измеряемых второго электрона

 $\beta_2^{(Lin)}, \beta_4^{(Lin)}, \beta_2^{(Cir)}, \beta_4^{(Cir)}$

Одна измеряемая первого электрона

 $\beta_2^{(Lin)} = -2\beta_2^{(Cir)}$

В рамках модели Купера-Заре (Cooper-Zare) есть три неизвестных реальных величины Теперь пять

$$\frac{d_{s}^{(2)}}{d_{d}^{(2)}} \Rightarrow \begin{cases} d_{sP}^{(2)} / d_{dP}^{(2)} = \left| d_{sP}^{(2)} / d_{dP}^{(2)} \right| \exp[i \operatorname{Arg}[d_{sP}^{(2)} / d_{dP}^{(2)}]] \\ d_{sP}^{(2)} / d_{dD}^{(2)} = \left| d_{sP}^{(2)} / d_{dD}^{(2)} \right| \exp[i \operatorname{Arg}[d_{sP}^{(2)} / d_{dD}^{(2)}]] \end{cases}$$

В области АИС может быть зависимость от терма

Полный эксперимент (область резонанса)



Электронная и ионная плотности



Обсуждаемые проблемы

✓Полный (Complete or perfect) эксперимент;

Влияние когерентности;

■Ранее не наблюдавшиеся состояния;

Разница LS и LSJ связи



Когерентное и некогерентное возбуждение



Когерентное и некогерентное возбуждение



Обсуждаемые проблемы

✓Полный (Complete or perfect) эксперимент;

✓Влияние когерентности;

Состояния, ранее не наблюдавшиеся в фотоэлектронной спектроскопии;

Ранее не наблюдавшиеся состояния

✓Автоионизационные состояния иона неона частично-частичнодырочные 2s2p⁵np [Nature, **15**,170 (2019)];

✓Ридберговские автоионизационные состояния иона аргона 3s²3p⁴(¹D)nl [PRA **98**, 033408 (2018)];



Ранее не наблюдавшиеся состояния

✓Автоионизационные состояния иона неона частично-частичнодырочные 2s2p⁵np [Nature, **15**,170 (2019)];

✓Ридберговские автоионизационные состояния иона аргона 3s²3p⁴(¹D)nl [PRA **98**, 033408 (2018)];

✓Наблюдение Куперовских минимумов в спектрах ионов [Nature Comm. 9, 4659 (2018)];

✓Дважды возбужденные состояния иона аргона 3s²3p³nlnl' и обнаружение механизма дважды резонансно усиленной двойной трехфотонной ионизации [PRA 84, 063405 (2011)];

План доклада

•Актуальность, цели и задачи

•Теоретический подход

•Угловые распределения при последовательной ионизации и теорема о подобии

Проблемы для обсуждения:

Полный (*Complete/perfect*) эксперимент;
 Влияние когерентности;
 Ранее не наблюдавшиеся состояния;

Метод извлечения параметра сверхтонкой структуры для частично перекрывающихся подуровней

Поляризация при наличии спина ядра

Пример: круговая поляризация при *I*=1/2



Деполяризация электронной оболочки

$$\vec{F}=\vec{J}+\vec{I}$$

$$\langle JM | \rho | JM' \rangle \sim C_1 + C_2 wxp[-i(E_F - E_{F'} - i\frac{\Gamma_F + \Gamma_{F'}}{2})t]$$
$$A_{kq}(t) = A_{kq}(0)g_k(J,t)$$

Для мгновенного и когерентного возбуждения и Гауссовской огибающей

$$G_{k}(J_{i}) = \frac{1}{I^{2}} \sum_{F,F'} \left(\hat{F}^{2} \hat{F}^{2} \left\{ \begin{matrix} F & J_{i} & I \\ J_{i} & F' & k \end{matrix} \right\}^{2} \left(1 + \frac{E_{F} - E_{F'}}{(\Gamma_{F} + \Gamma_{F'})/2} \right)^{-1} \right)$$

Хорошо разделенные уровни $G_k(J_i) = \frac{1}{I^2} \sum_F \hat{F}^4 \begin{cases} F & J_i & I \\ J_i & F & k \end{cases}^2$ В рассматриваемой задаче (J=1)

I=1/2 $G_1(1)=7/9;$ $G_2(1)=1/3;$

I=3/2 $G_1(1)=19/45;$ $G_2(1)=37/150;$

Сверхтонкая структура атома ксенона



Циркулярный магнитный дихроизм



$$\begin{split} G_{k}(J_{i}) &= \frac{1}{I^{2}} \sum_{F,F'} \hat{F}^{2} \hat{F}^{2}, \begin{cases} F & J_{i} & I \\ J_{i} & F' & k \end{cases}^{2} \frac{1}{\Gamma} \left(1 + \frac{\omega_{FF}}{\Gamma} \right)^{-1} \\ C \text{ Верхтонкое взаимодействие} \\ A(F(F+1) - J(J+1) - I(I+1))/2 \\ &= \frac{19}{45} + \frac{5}{18} \cdot \frac{1}{1 + (\omega_{3/2 - 1/2}/\Gamma^{2})} + \frac{3}{10} \cdot \frac{1}{1 + (\omega_{5/2 - 3/2}/\Gamma^{2})} \\ &= \frac{19}{45} + \frac{5}{18} \cdot \frac{1}{1 + 2.25\alpha} + \frac{3}{10} \cdot \frac{1}{1 + 6.25\alpha} \\ G_{2}(3/2) &= \frac{37}{150} + \frac{1}{30} \cdot \frac{1}{1 + (\omega_{3/2 - 1/2}/\Gamma^{2})} + \frac{3}{10} \cdot \frac{1}{1 + (\omega_{5/2 - 1/2}/\Gamma^{2})} + \frac{21}{50} \cdot \frac{1}{1 + (\omega_{5/2 - 3/2}/\Gamma^{2})} \\ &= \frac{37}{159} + \frac{1}{30} \cdot \frac{1}{1 + 2.25\alpha} + \frac{3}{10} \cdot \frac{1}{1 + 16\alpha} + \frac{21}{50} \cdot \frac{1}{1 + 6.25\alpha} \\ \text{here } \alpha = \left(\frac{2\pi A}{\Gamma}\right)^{2} \\ \text{here } \alpha = \left(\frac{2\pi A}{\Gamma}\right)^{2} \\ \text{Mere } A = 4.2 \cdot 10^{-8} eV; \\ V_{3/2 - 1/2} = 6.4 \cdot 10^{-8} eV; \\ V_{3/2 - 1/2} = 6.4 \cdot 10^{-8} eV; \\ V_{5/2 - 3/2} = 1.06 \cdot 10^{-7} eV. \end{split}$$

Применение метода другими авторами

Effect of electronic angular momentum exchange on photoelectron anisotropy following the two-color ionization of krypton atoms

N. Saquet,¹ D. M. P. Holland,² S. T. Pratt,³ D. Cubaynes,^{4,5} X. Tang,^{5,*} G. A. Garcia,⁵ L. Nahon,⁵ and K. L. Reid^{1,†}

 ¹School of Chemistry, University of Nottingham, Nottingham NG7 2RD, United Kingdom
 ²STFC, Daresbury Laboratory, Daresbury, Warrington, Cheshire WA4 4AD, United Kingdom
 ³Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois 60439, USA
 ⁴Université Paris Sud, CNRS UMR 8214, ISMO, F-91405 Orsay, France
 ⁵Synchrotron Soleil, L'Orme des Merisiers, St. Aubin BP 48, F-91192 Gif Sur Yvette, France (Received 11 January 2016; published 28 March 2016)

We present photoelectron energy and angular distributions for resonant two-photon ionization via several low-lying Rydberg states of atomic Kr. The experiments were performed by using synchrotron radiation to pump the Rydberg states and a continuous-wave laser to probe them. Photoelectron images, recorded with both linear and circular polarized pump and probe light, were obtained in coincidence with mass-analyzed Kr ions. The photoelectron angular distributions and branching ratios for direct ionization into the Kr^{+ 2} $P_{3/2}$ and ${}^{2}P_{1/2}$ spin-orbit continua show considerable dependence on the intermediate level, as well as on the polarizations of the pump and probe light. Photoelectron images were also recorded with several polarization combinations following two-color excitation of the (${}^{2}P_{1/2}$)5f[5/2]₂ autoionizing resonance. These results are compared with the results of recent work on the corresponding autoionizing resonance in atomic Xe [E. V. Gryzlova *et al.*, New J. Phys. **17**, 043054 (2015)].

Эволюция системы в электромагнитном поле



1. При последовательной двойной ионизации атомов инертных газов выстроенность промежуточного иона А⁺ проявляется тем сильнее (коэффициент при поляризационном параметре выстроенности А₂ тем больше), чем более когерентно заселение подуровней его тонкой структуры, в предельном случае полностью когерентного заселения, соответствующего приближению LS-связи, роль выстроенности в 3 раза выше, чем в предельном случае полностью некогерентного заселения, соответствующего приближению, соответствующего приближение заселения, соответствующего приближении, так и круговой поляризации, как в дипольном приближении, так и с учетом первых поправок к дипольному приближению, для фотоэлектронов как первой, так и второй ступени.



2. При последовательной двойной ионизации атомов инертных газов вклад поляризации промежуточного состояния А⁺ зависит от состояния конечного иона A²⁺, и всегда имеет противоположный знак для термов np^{4 1}S и np^{4 3}P. В пренебрежении зависимостью волновых функций непрерывного спектра от терма системы коэффициент при поляризационном параметре выстроенности A₂ относится как 1:1/10:-1/2 для термов конечного иона np^{4 1}S, ¹D и ³P, соответственно. Утверждение справедливо для 2PDI как излучением линейной, так и круговой поляризации, как в дипольном приближении, так и с учетом первых поправок к дипольному приближению, для фотоэлектронов как первой, так и второй ступени.



3. При последовательной двойной ионизации атомов инертных газов фотонами, соответствующими бесструктурному непрерывному спектру, угловые распределения фотоэлектронов, испущенных на первой и второй ступени, подобны. Под подобием подразумевается одинаковый знак параметров угловой анизотропии и одинаковая энергетическая зависимость. Это подобие сохраняется при 2PDI полем как линейной, так и круговой поляризации, при любой степени когерентности излучения, как в дипольном приближении, так и с учетом первых поправок к нему, для любого терма конечного дважды заряженного иона А²⁺.



4. Для процесса последовательной двойной двухфотонной ионизации возможна реализация полного эксперимента, то есть извлечение всех комплексных амплитуд процесса из измеряемых величин. А именно, измерение параметров угловой анизотропии β_{2,4} второго электрона в последовательной двойной двухфотонной ионизации полями линейной и круговой поляризации позволяет, в приближении независящих от терма состояний непрерывного спектра, извлечь все комплексные амплитуды ионизации второй ступени, и, в дополнение, определить модуль отношения амплитуд первой ступени. При дополнительном измерении какого либо из β_{2,4} параметра угловой анизотропии первого электрона, возможно извлечь и фазу амплитуды первой ступени.



5. Зная какую-либо дифференциальную характеристику (линейный или круговой дихроизм, параметр угловой анизотропии фотоэлектронов β_{2,4} процесса резонансной двухфотонной ионизации для изотопов с нулевым и отличным от нуля спином ядра, можно извлечь параметр сверхтонкой структуры промежуточного, резонансно возбуждаемого состояния, для подуровней, расстояние между которыми сопоставимо с их шириной, то есть когда уровни не могут быть разделены спектроскопически.



- 1. При последовательной двойной ионизации атомов инертных газов выстроенность промежуточного иона А⁺ проявляется тем сильнее (коэффициент при поляризационном параметре выстроенности А₂ тем больше), чем более когерентно заселение подуровней его тонкой структуры, в предельном случае полностью когерентного заселения, соответствующего приближению LS-связи, роль выстроенности в 3 раза выше, чем в предельном случае полностью некогерентного заселения, соответствующего приближению, соответствующего приближение справедливо для 2PDI как излучением линейной, так и круговой поляризации, как в дипольном приближении, так и с учетом первых поправок к дипольному приближению, для фотоэлектронов как первой, так и второй ступени.
- 2. При последовательной двойной ионизации атомов инертных газов вклад поляризации промежуточного состояния А⁺ зависит от состояния конечного иона A²⁺, и всегда имеет противоположный знак для термов np^{4 1}S и np^{4 3}P. В пренебрежении зависимостью волновых функций непрерывного спектра от терма системы коэффициент при поляризационном параметре выстроенности A₂ относится как 1:1/10:-1/2 для термов конечного иона np^{4 1}S, ¹D и ³P, соответственно. Утверждение справедливо для 2PDI как излучением линейной, так и круговой поляризации, как в дипольном приближении, так и с учетом первых поправок к дипольному приближению, для фотоэлектронов как первой, так и второй ступени.
- 3. При последовательной двойной ионизации атомов инертных газов фотонами, соответствующими бесструктурному непрерывному спектру, угловые распределения фотоэлектронов, испущенных на первой и второй ступени, подобны. Под подобием подразумевается одинаковый знак параметров угловой анизотропии и одинаковая энергетическая зависимость. Это подобие сохраняется при 2PDI полем как линейной, так и круговой поляризации, при любой степени когерентности излучения, как в дипольном приближении, так и с учетом первых поправок к нему, для любого терма конечного дважды заряженного иона А²⁺.
- 4. Для процесса последовательной двойной двухфотонной ионизации возможна реализация полного эксперимента, то есть извлечение всех комплексных амплитуд процесса из измеряемых величин. А именно, измерение параметров угловой анизотропии β_{2,4} второго электрона в последовательной двойной двухфотонной ионизации полями линейной и круговой поляризации позволяет, в приближении независящих от терма состояний непрерывного спектра, извлечь все комплексные амплитуды ионизации второй ступени, и, в дополнение, определить модуль отношения амплитуд первой ступени. При дополнительном измерении какого либо из β_{2,4} параметра угловой анизотропии первого электрона, возможно извлечь и фазу амплитуды первой ступени.
- 5. Зная какую-либо дифференциальную характеристику (линейный или круговой дихроизм, параметр угловой анизотропии фотоэлектронов \$\beta_{2,4 \$} процесса резонансной двухфотонной ионизации для изотопов с нулевым и отличным от нуля спином ядра, можно извлечь параметр сверхтонкой структуры промежуточного, резонансно возбуждаемого состояния, для подуровней, расстояние между которыми сопоставимо с их шириной, то есть когда уровни не могут быть разделены спектроскопически.

Список публикаций и личный вклад

- Nature physics, 15, 170-177 (2019), IF = 19,684 (WoS) 1. 2. Nature Communications, 9, 4659, (2018), IF = 16,6 (WoS) Phys. Rev. Lett. **111**, 243002 (2013), **IF = 8,6 (WoS)** 3. Phys. Rev. Lett. **101,**193002 (2008),**IF = 8,6 (WoS)** 4. P. A. Carpeggiani, E.V.Gryzlova". New J. Phys., **17**, 043054(1)--043054(15) (2015), **IF = 3,3 (WoS)** 5. Phys. Rev. A, **98**, 033408 (2018), **IF = 2,97 (WoS)** 6. Phys. Rev. A, 89, 043424 (2014), IF = 2,97 (WoS) 7. Phys. Rev. A, 83, 031401(R) (2011), IF = 2,97 (WoS) 8. 9. Phys. Rev. A, 84, 063405 (2011), IF = 2,97 (WoS) 10. J. Opt. 20, 024005 (2018), IF=2.1 (WoS) В работах, совместных с 11. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 47, 195601, (2014), IF = 1,92 (WoS) 12. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 46, 164014 (2013), IF = 1,92 (WoS) автором-теоретиком [2,3,6,8,15,16]. 13. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 45, 215602 (2012), IF = 1,92 (WoS) 14. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 44, 175602, (2011), IF = 1,92 (WoS) 15. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 43, 225602 (2010), IF = 1,92 (WoS) 16. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 43, 111001 (2010), IF = 1,92 (WoS) 17. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 141002, (2009), IF = 1,92 (WoS) 18. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 145602, (2009), IF = 1,92 (WoS) 19. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 204,227 (2015), IF = 1,9 (WoS) 20. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **181**, 111, (2010), **IF = 1,9 (WoS)** 21. European Physical Journal D,73 93(1)-93(7) (2019), IF = 1,45 (WoS) 22. Journal of Modern Optics , 63, 334--357 (2016), IF = 1,29 (WoS) 23. Глава в книге "Progress in Photon Science: Recent Advances (eds. K. Yamanouchi, S. Tunic, V. Makarov)", "243-261", Springer Series in Chemical Physics, 119 (2019) 24. Глава в книге "Progress in Photon Science: Recent Advances (eds. K. Yamanouchi, S. Tunic, V. Makarov)", "263-282", Springer Series in Chemical Physics, 119 (2019) 25. Вестник Поморского университета, серия 'Естественные и точные науки'",4, 52—58 (2009), Журнал из списка ВАК 26. Вестник Ужгородского университета, серия 'физика', 24, 73—77 (2009), Журнал из списка ВАК 27. Вестник Ужгородского университета, серия 'физика', **34** 132-138 (2013), Журнал из списка ВАК 28. Acta Crystallographica Section D: Biological Crystallography, 71, 293-303 (2016) IF = 5,7 (WoS)
 - 29. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 204,313 (2015), IF = 1,9 (WoS)
 - 30. Elettra Highlights 2018–2019, 98-99 (2020) (прессрелиз)

Личный вклад в Nature physics [1] явно обозначен в информации о публикации, как равный вкладу первого автора "These authors contributed equally:

Личный вклад подтверждается тем, что в работах [5,9,10,11,14,18,20,22,24,25] автор диссертации является первым автором: экспериментальными группами, - первым

Достоверность результатов

Достоверность представленных в диссертации результатов подтверждается сравнением с имеющимися экспериментальными данными:

Для параметров угловой анизотропии в 2PDI инертных газов полем линейной поляризации [J. Mod. Opt . 63, 324 (2016)];

> Для параметров угловой анизотропии в 2PDI инертных газов полем линейной поляризации при учете недипольных эффектов [2], где представлены первые, и пока единственные, результаты измерений недипольных параметров угловой анизотропии в последовательной кратной ионизации.

> Для параметров угловой анизотропии в 2PDI инертных газов полями линейной и круговой поляризации, как в области бесструктурного континуума, так и в области частично-дырочных АИС иона неона [1]. Там же была показана принципиальная возможность реализации полного эксперимента при последовательной двойной двухфотонной ионизации.

Для спектров и угловых распределений в ЗРТІ атома неона фотонами с энергией 90 эВ линейной поляризации [8].

Измерения функции угловой корреляции фотоэлектронов требуют очень много времени и ресурсов, и для 2PDI были проведены всего дважды [5], [17] для 2PDI атомов неона и аргона полем линейной поляризации. В [5] изучались угловые корреляции электронов при ионизации аргона в области энергии фотонов, соответствующей ридберговской авто-ионизационной серии иона аргона. Расчеты автора диссертации воспроизвели параметры угловой анизотропии измеренных на совпадения электронов, объяснив, в частности инверсию знака β₄ вызванную АИС.

Реализация механизма дважды резонансной трехфотонной ионизации была подтверждена измерениями спектров и угловых распределений фотоэлектронов, выполненных на SPring-8 для атома аргона при энергии около 22 эВ [8],[16].

Исследование роли деполяризации в дважды резонансной ионизации ксенона с разделением по изотопам [3,5,23]. Измеренные и рассчитанные линейный и круговой дихроизм и параметры угловой анизотропии при ионизации полями линейной и круговой поляризации в хорошем согласии. Там же опробован метод определения постоянной сверхтонкой структуры для частично перекрывающихся подуровней, то есть когда состояния нельзя разрешить обычными спектроскопическими методами. Ползднее, этот метод был применен другими авторами для исследования дважды резонансной ионизации криптона [PRA 93, 033419 (2016)].

Достоверность результатов

- 1. Nature physics, 15, 170-177 (2019), IF = 19,684 (WoS)
- 2. Nature Communications, 9, 4659, (2018), IF = 16,6 (WoS)
- 3. Phys. Rev. Lett. 111, 243002 (2013), IF = 8,6 (WoS)
- 4. Phys. Rev. Lett. 101,193002 (2008),IF = 8,6 (WoS)
- 5. New J. Phys., **17**, 043054(1)--043054(15) (2015), **IF = 3,3 (WoS)**
- 6. Phys. Rev. A, 98, 033408 (2018), IF = 2,97 (WoS)
- 7. Phys. Rev. A, 89, 043424 (2014), IF = 2,97 (WoS)
- 8. Phys. Rev. A, 83, 031401(R) (2011), IF = 2,97 (WoS)
- 9. Phys. Rev. A, 84, 063405 (2011), IF = 2,97 (WoS)
- 10. J. Opt. 20, 024005 (2018), IF=2.1 (WoS)
- 11. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 47, 195601, (2014), IF = 1,92 (WoS)
- 12. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 46, 164014 (2013), IF = 1,92 (WoS)
- 13. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 45, 215602 (2012), IF = 1,92 (WoS)
- 14. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 44, 175602, (2011), IF = 1,92 (WoS)
- 15. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 43, 225602 (2010), IF = 1,92 (WoS)
- 16. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 43, 111001 (2010), IF = 1,92 (WoS)
- 17. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 141002, (2009), IF = 1,92 (WoS)
- 18. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 145602, (2009), IF = 1,92 (WoS)
- 19. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **204**,227 (2015), **IF = 1,9 (WoS)**
- 20. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena , 181 , 111, (2010) , IF = 1,9 (WoS)
- 21. European Physical Journal D,73 93(1)-93(7) (2019), IF = 1,45 (WoS)
- 22. Journal of Modern Optics , **63**, 334--357 (2016), IF = 1,29 (WoS)
- 23. Глава в книге "Progress in Photon Science: Recent Advances (eds. K. Yamanouchi, S. Tunic, V. Makarov)", "243-261", Springer Series in Chemical Physics, **119** (2019)
- 24. Глава в книге "Progress in Photon Science: Recent Advances (eds. K. Yamanouchi, S. Tunic, V. Makarov)", " 263-282", Springer Series in Chemical Physics, **119** (2019)
- 25. Вестник Поморского университета, серия 'Естественные и точные науки''',4, 52—58 (2009), Журнал из списка ВАК
- 26. Вестник Ужгородского университета, серия 'физика', 24, 73—77 (2009), Журнал из списка ВАК
- 27. Вестник Ужгородского университета, серия 'физика', 34 132-138 (2013), Журнал из списка ВАК
- 28. Acta Crystallographica Section D: Biological Crystallography, 71, 293-303 (2016) IF = 5,7 (WoS)
- 29. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 204,313 (2015), IF = 1,9 (WoS)
- <u>30. Elettra Highlights 2018–2019, 98-99 (2020) (прессрелиз)</u>

Апробация

- 1. 52nd International Conference of European Group on Atomic System (виртуальный, Загреб, 2022);
- 2. 20th International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (Метц, 2019);
- 3. The 5th International Symposium on Intense Short Wavelenght Processes in Atoms and Molecules (Париж, 2019);
- The International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces (Будапешт, 2018);
- 5. The Third STEPS Symposium on Photon Science (Москва, 2018);
- 6. 30th International Conference on Photonic Electronic and Atomic Collisions (Кернс, 2017);
- 7. International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces (Берлин, 2012);
- 8. International Conference of Electronic and Atomic Collisions (Белфаст, 2011);
- 9. International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces (Париж, 2008).

Научная новизна

□На основании развитого формализма были впервые получены параметры, характеризующие угловые распределения и угловые корреляционные функции фотоэлектронов в 2PDI атомов инертных газов полями с линейной и круговой поляризацией. Продемонстрирована роль поляризации промежуточного ионного состояния, и его деполяризации за счет эволюции подуровней тонкой структуры между актами поглощения фотона.

Впервые показана возможность реализации полного эксперимента при последовательной кратной ионизации атома.

Обнаружена возможность наблюдения недипольных эффектов в процессе двойной двухфотонной ионизации, причем указанная возможность реализуется в области энергий много ниже, чем предполагалось ранее. Исследовано, как изменение поляризации меняет возможные каналы процесса двойной двухфотонной ионизации, и продемонстрировано, что значимость недипольных эффектов может быть значительно подчеркнута соответствующим выбором поляризации излучения.

Исследована роль АИС иона в процессе последовательной кратной ионизации. Впервые получены дифференциальные характеристики фотоэлектронов при ионизации ионов в окрестности автоионизационных состояний. Показано, как автоионизационные состояния одной из ступеней меняют дифференциальные характеристики электронов, испущенных на другой ступени.

■Впервые получены дифференциальные и интегральные спектры фотоэлектронов при 3РТІ. Предсказано существование корреляций между вероятностями испускания фотоэлектронов на несмежных ступенях.

Исследована возможность двойной трехфотонной ионизации, с резонансно усиленной ступенью ионизации иона. Открыт новый тип автоионизационных состояний ионов инертных газов, и указана возможность реализации нового механизма двойной дважды резонансно усиленной трехфотонной ионизации.

Показано, что измерение угловых распределений фотоэлектронов при двухчастотной ионизации может использоваться как метод определения параметров сверхтонкой структуры в условиях частичного перекрывания данных подуровней.

Благодарности

Теория:

А. Н. Грум-Гржимайло, Н.М. Кабачник, С.И. Страхова (НИИЯФ МГУ)

- S. Fritzsche (Helmholtz Institute Jena)
- Е.И. Старосельская, М.Д. Киселев, М.М. Попова (физический ф-т МГУ)

Эксперимент:

M. Meyer, M. Ilchen, G. Hartmann, T. Mazza (European XFEL Hamburg)
G. Sansone, K. C. Prince, C. Callegari, P. A. Carpeggiani (Elettra-Sincrotrone Trieste)
M. J. J. Vrakking, A. Rouzee (FOM Institute, Amsterdam)

- K. Ueda, H. Fukuzawa (Tohoku University, Sendai)
- R. Moshammer, A. Rudenko, M Kurka (MPI für Kernphysik, Heidelberg)
- J. T. Costello (National Centre for Plasma Science and Technology, Dublin)

Спасибо за внимание!