



Киселев Максим Дмитриевич

Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова,
Физический факультет, кафедра общей ядерной физики



**Моделирование нелинейных и сверхбыстрых
ионизационных процессов в атомах
в мягком рентгеновском и экстремальном
ультрафиолетовом диапазоне**

по материалам диссертации на соискание учёной
степени кандидата физико-математических наук

Специальность: 1.3.6. Оптика

Научный руководитель:

*доктор физ.-мат. наук, вед. науч. сотр.
Грум-Гржимайло Алексей Николаевич*

Москва – 2023

План доклада

- Актуальность, цели и задачи исследования

- Образование двойной К-вакансии в неоне – с привлечением данных экспериментов на European XFEL (г. Гамбург, Германия)
- Ионизация внешних $4s$ и $4p$ оболочек криптона
- Образование корреляционных сателлитных линий в криптоне при ионизации $3d$ -оболочки – с привлечением данных экспериментов на MAX IV (г. Лунд, Швеция)
- Резонансная фотоионизация закрученными пучками излучения
 - Положения, выносимые на защиту
 - Публикации по теме диссертации
 - Апробация (доклады на конференциях)
 - Благодарности

Актуальность

Фотоионизация в интенсивных когерентных полях и сопутствующие нелинейные явления активно исследовались в течение последних десятилетий с помощью лазеров, работающих в ближней ИК и видимой областях спектра.

Создание и развитие техники генерации высокочастотного излучения (рентгеновские ЛСЭ, генераторы высоких лазерных гармоник) вкупе с уникальным набором характеристик (высокая интенсивность, фемто- и даже аттосекундная длительность импульсов) открыло возможность экспериментально изучать процессы, ранее недоступные для наблюдения, такие как кратная последовательная фотоионизация, образование многозарядных ионов, в том числе экзотических «полых» конфигураций.

Качественный скачок в полноте экспериментальных данных требует соответствующего развития теоретических подходов, а для планирования новых экспериментов необходимы результаты высококачественного моделирования процессов со сложной динамикой.

Цели и задачи

Целью настоящей работы является разработка и применение теоретического подхода для моделирования экзотических фотоионизационных процессов в атомах гелия, неона, криптона под действием высокоэнергетического излучения, в том числе закрученного (бесселевы пучки), а также демонстрация возможности применения метода R-матрицы для успешного описания ионизации глубоких атомных оболочек..

Задачи исследования:

- ❖ Разработка спектроскопических моделей ионизации: атома и однозарядного иона неона вблизи порога ионизации $1s$ -оболочки последнего (975-1080 эВ), атома и ионов криптона в области ниже (20-90 эВ) и выше (90-230 эВ) порога ионизации атомной $3d$ -оболочки, атома гелия в области его низших автоионизационных состояний (59-61 эВ);
- ❖ Расчёт амплитуд фотоионизации в рамках разработанных спектроскопических моделей и моделирование на их основе энергетических зависимостей сечений ионизации, параметров анизотропии угловых распределений фотоэлектронов (УРФ), а также фотоэлектронных спектров, заселённостей различных атомных и ионных состояний, выходов ионов различной кратности;
- ❖ Разработка формализма для описания процесса ионизации многоэлектронных атомов закрученным бесселевым излучением различной поляризации (циркулярной и линейной);
- ❖ Моделирование УРФ при ионизации атома гелия бесселевым излучением.

**Образование двойной К-вакансии в неоне
(с привлечением данных экспериментов
на European XFEL)**

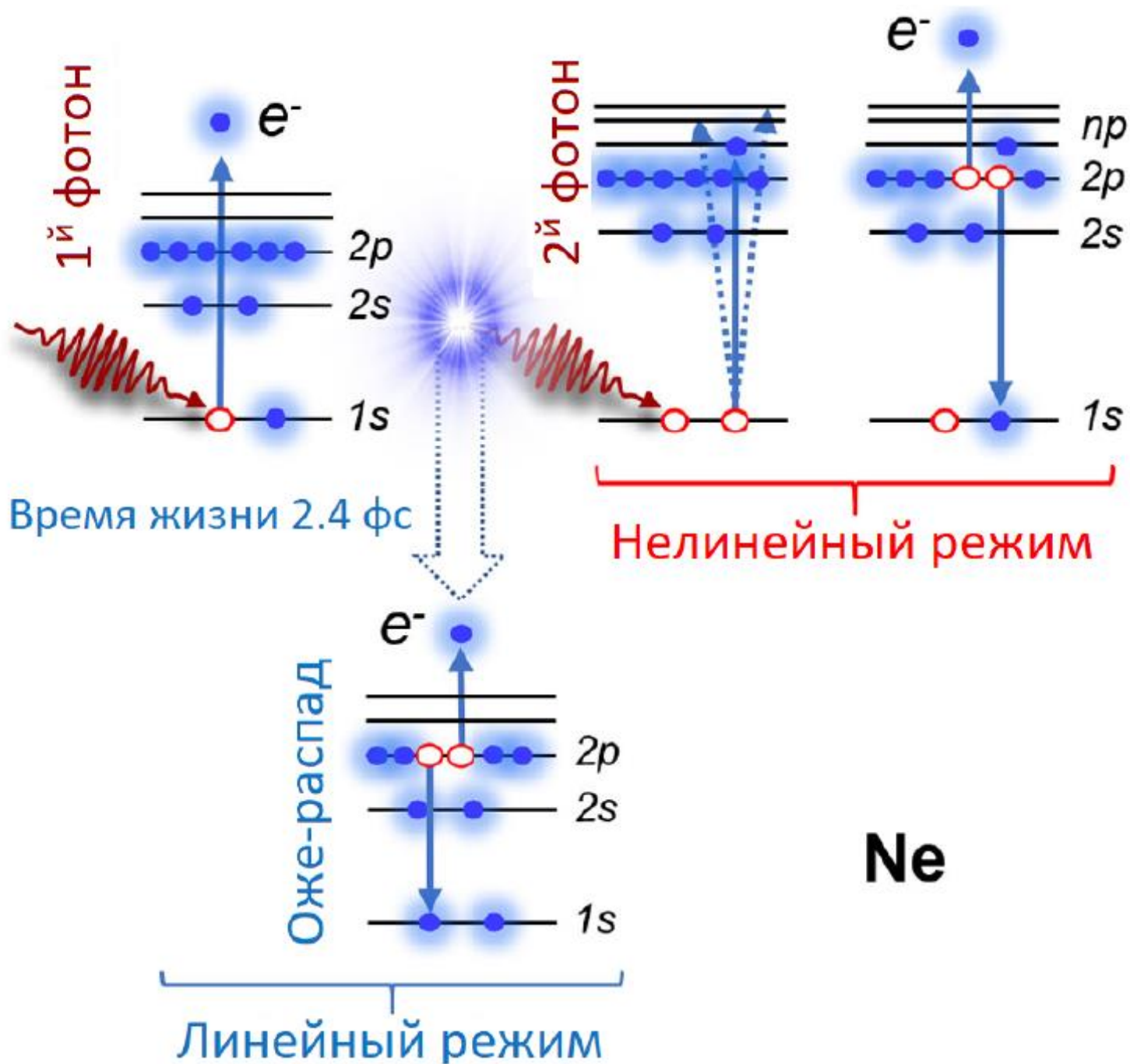


**Первое измерение
на линии European XFEL
The SQS (Small Quantum
Systems) instrument, *M. Meyer***

$$\tau_{XFEL} \sim 25 \text{ фс}$$

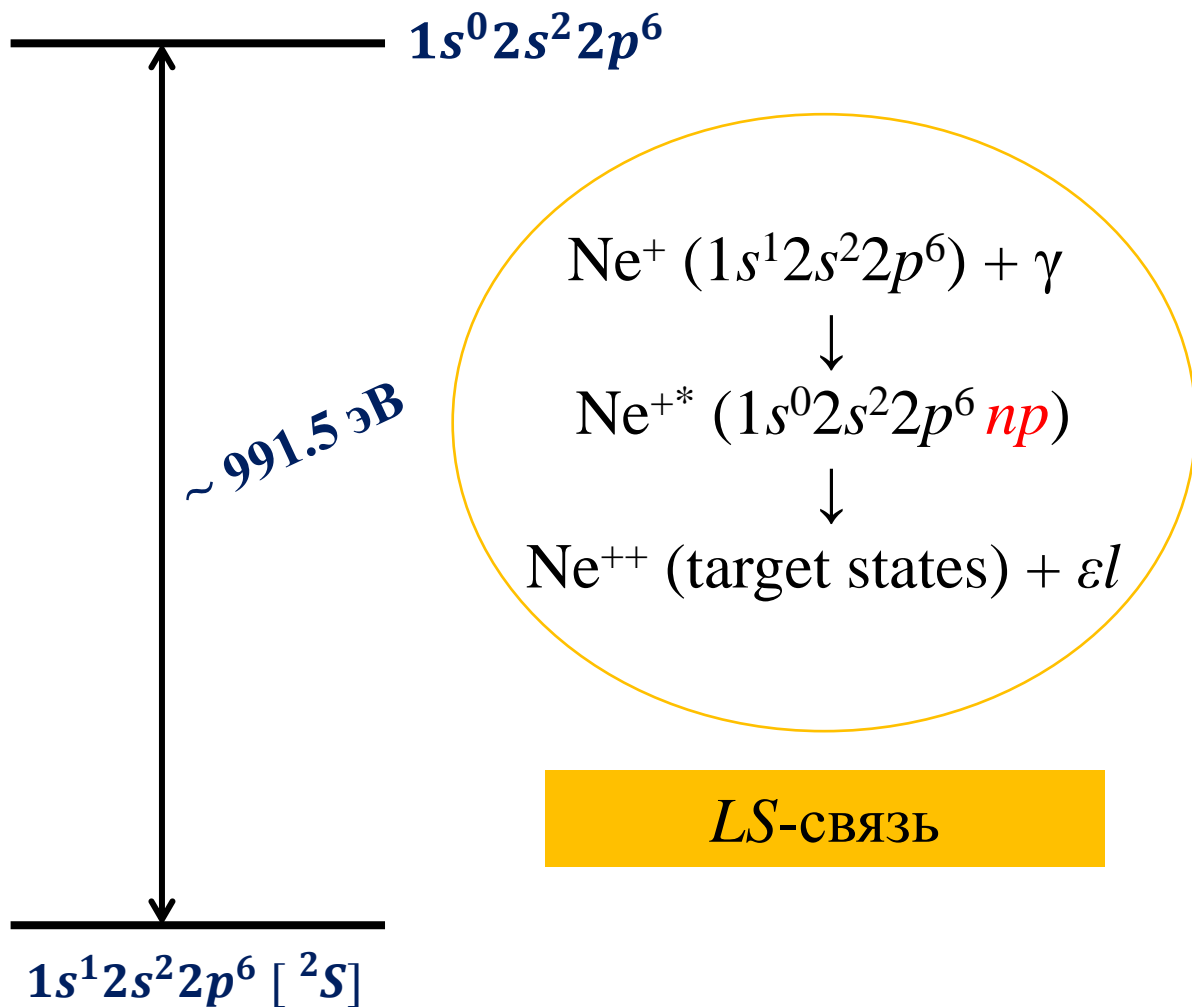
$$\Gamma \sim 8.5 \text{ эВ (FWHM)}$$

$$\gamma \sim 2 \text{ эВ (FWHM)}$$



$\text{Ne}^+ 1s^0 2s^2 2p^6 np$ ($n \geq 3$)
Теория: метод R-матрицы, BSR¹

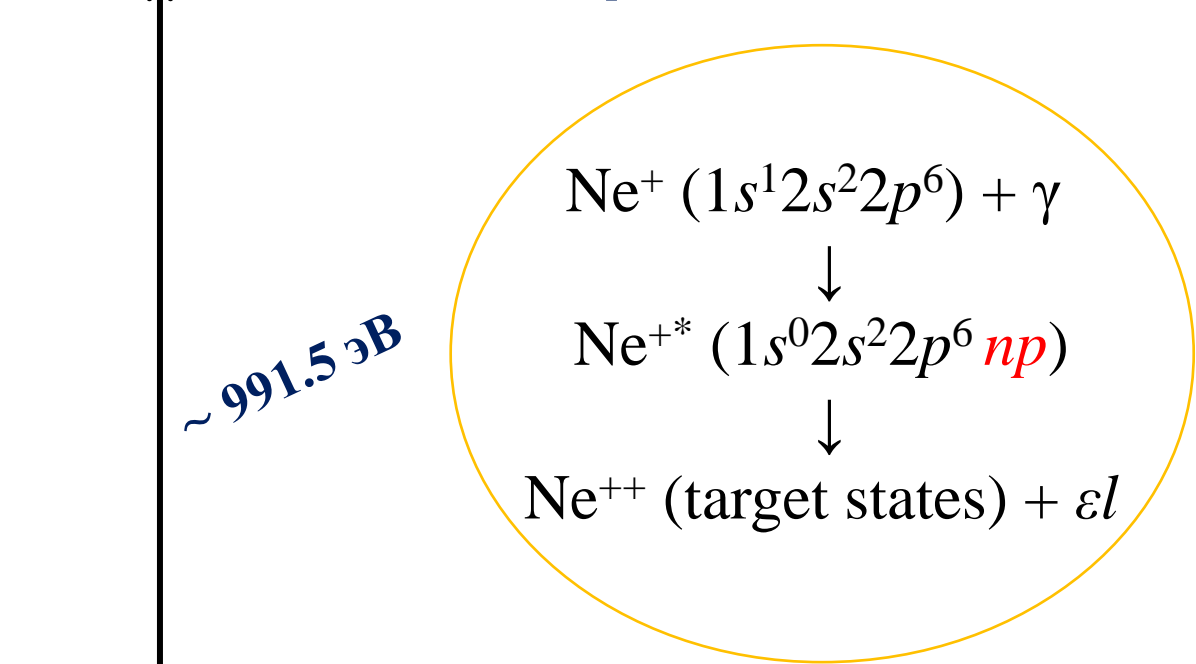
¹ (O. Zatsarinny, *Comput. Phys. Comm.* 174 (2006) 273-356)



$\text{Ne}^+ 1s^0 2s^2 2p^6 np \ (n \geq 3)$
 Теория: метод R-матрицы, BSR¹

¹ (O. Zatsarinny, Comput. Phys. Comm. 174 (2006) 273-356)

$1s^0 2s^2 2p^6$



LS -связь

- $1s^0 2s^1 2p^6 np^1$
- $1s^0 2s^2 2p^5 np^1$
- $1s^0 2s^1 2p^6 3s^1 / 3d^1$
- $1s^0 2s^2 2p^5 3s^1 / 3d^1$

$1s^0 2s^2 2p^6$

$1s^1 2s^0 2p^6 3s^1 / 3d^1$

- spectator
- $1s^1 2s^0 2p^6 np^1$
 - $1s^1 2s^1 2p^5 np^1$
 - $1s^1 2s^2 2p^4 np^1$

$1s^1 2s^1 2p^5 3s^1 / 3d^1$
 $1s^1 2s^2 2p^4 3s^1 / 3d^1$

- participator
- $1s^1 2s^1 2p^6$
 - $1s^1 2s^2 2p^5$

321 состояние

$(n = 3 - 8)$

$1s^1 2s^2 2p^6 \ [^2S]$

только конфигурации, соответствующие распадам с активным np -электроном

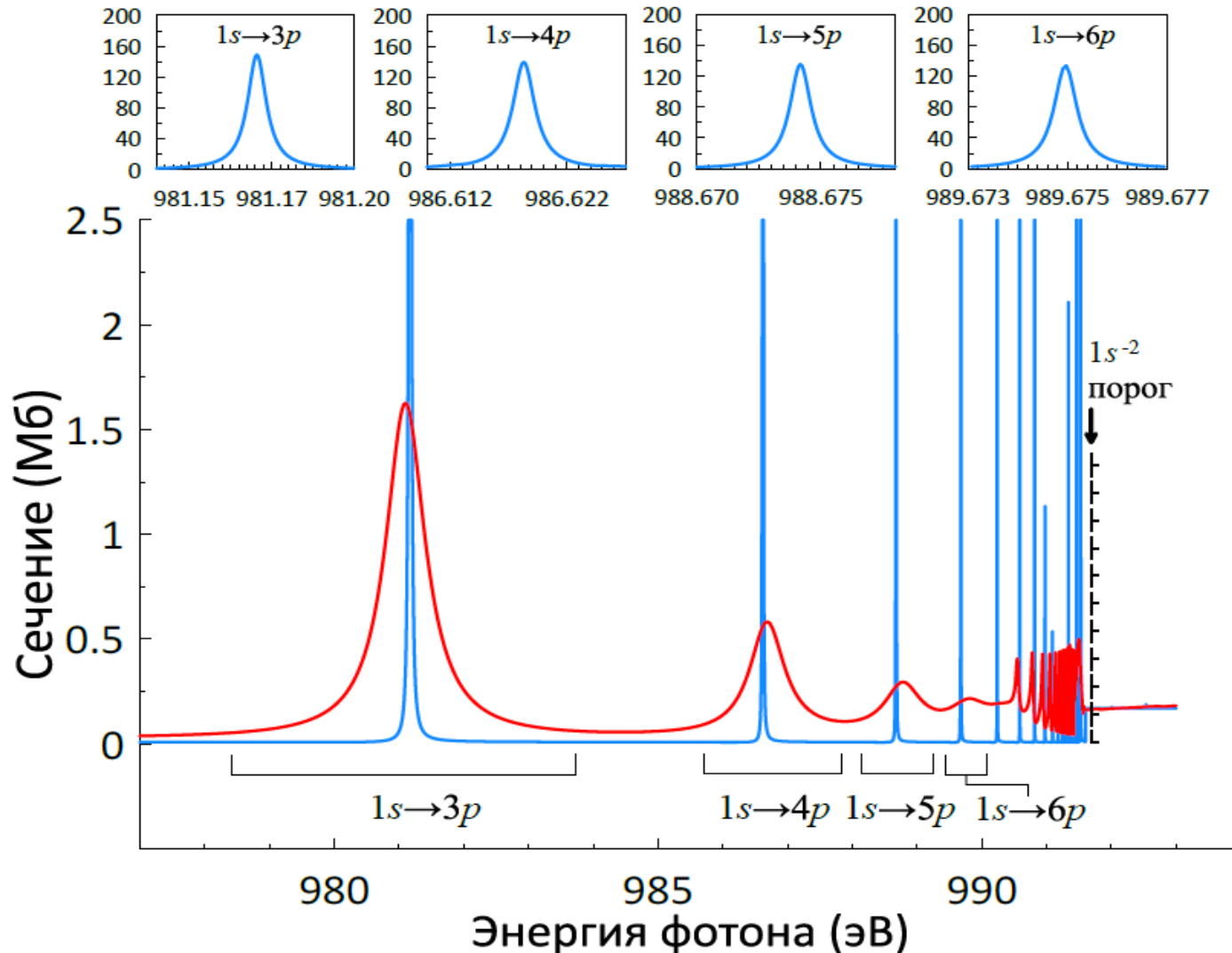
$1s^1 2s^2 2p^5, 1s^0 2s^2 2p^6$

дополнительно учтены конфигурации, соответствующие распадам с пассивным np -электроном, а также «встряски» в $3s/3d$ оболочки

$1s^1 2s^2 2p^5, 1s^1 2s^1 2p^6, 1s^0 2s^2 2p^6,$

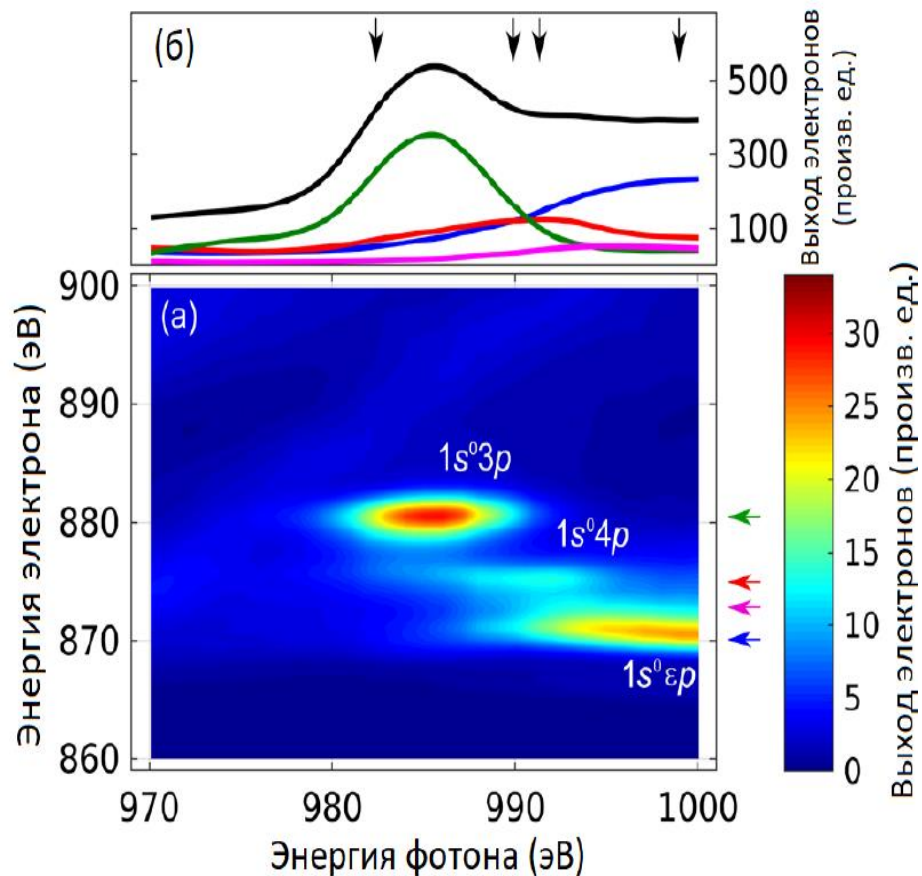
$[1s^1 2s^2 2p^4, 1s^1 2s^0 2p^6, 1s^0 2s^2 2p^5, 1s^1 2s^1 2p^5, 1s^0 2s^1 2p^6] 3s/3d,$

$[1s^1 2s^2 2p^4, 1s^1 2s^0 2p^6, 1s^0 2s^2 2p^5, 1s^1 2s^1 2p^5, 1s^0 2s^1 2p^6] np (n = 3 - 8)$

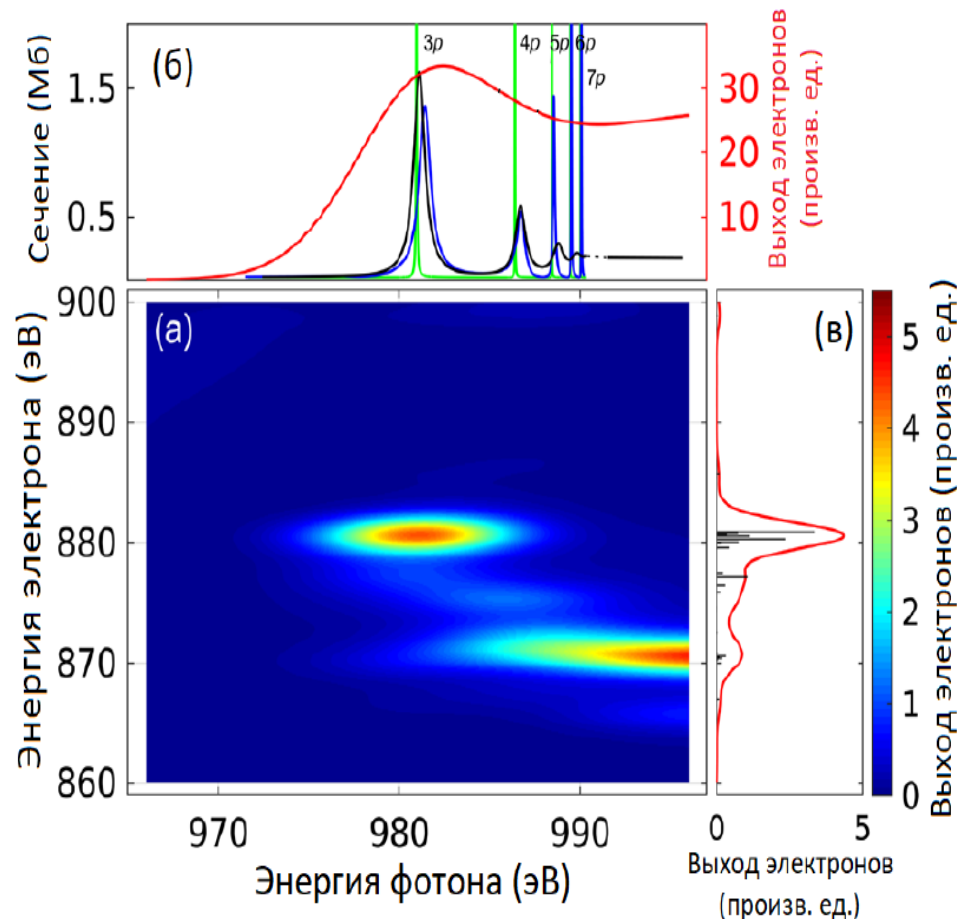


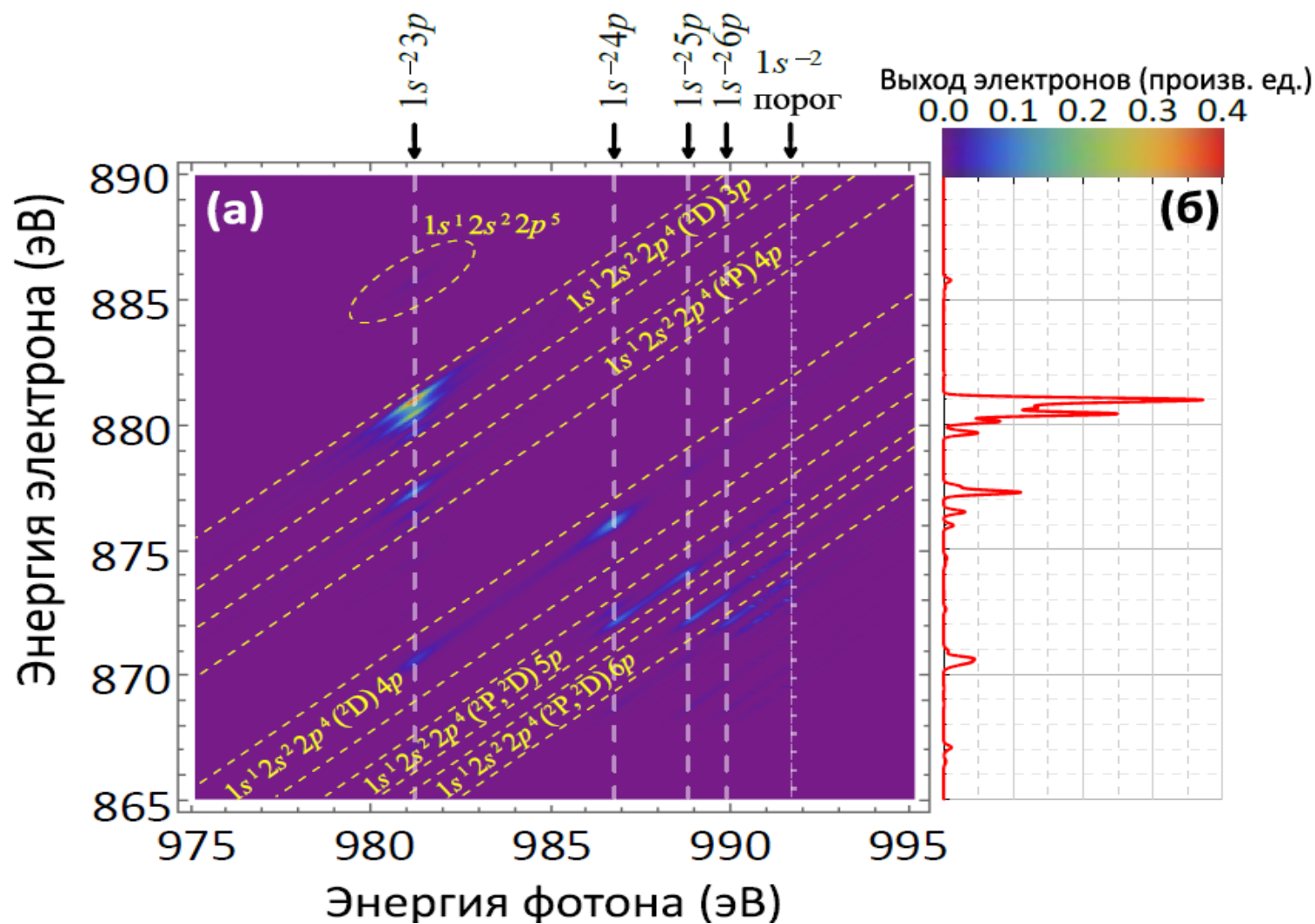
Вероятность фотоионизации как двухпараметрическая функция энергии электрона и энергии фотона

Эксперимент



Теория





В рамках расширенной модели для $1s^{-2}3p$ -резонанса:

< 3% – participator;

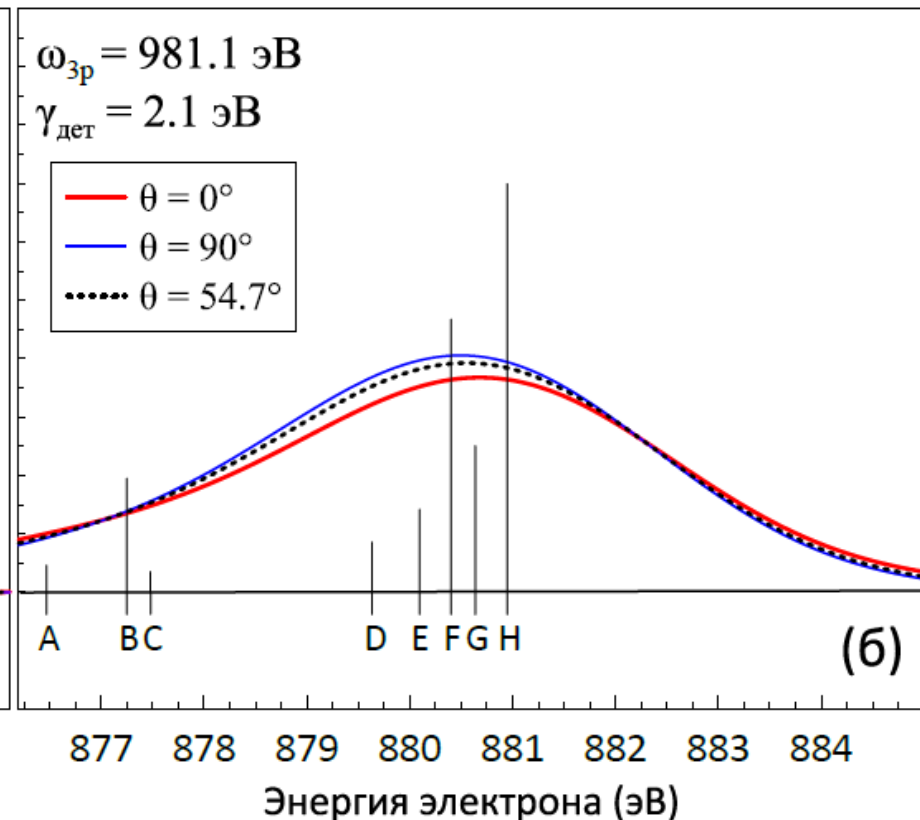
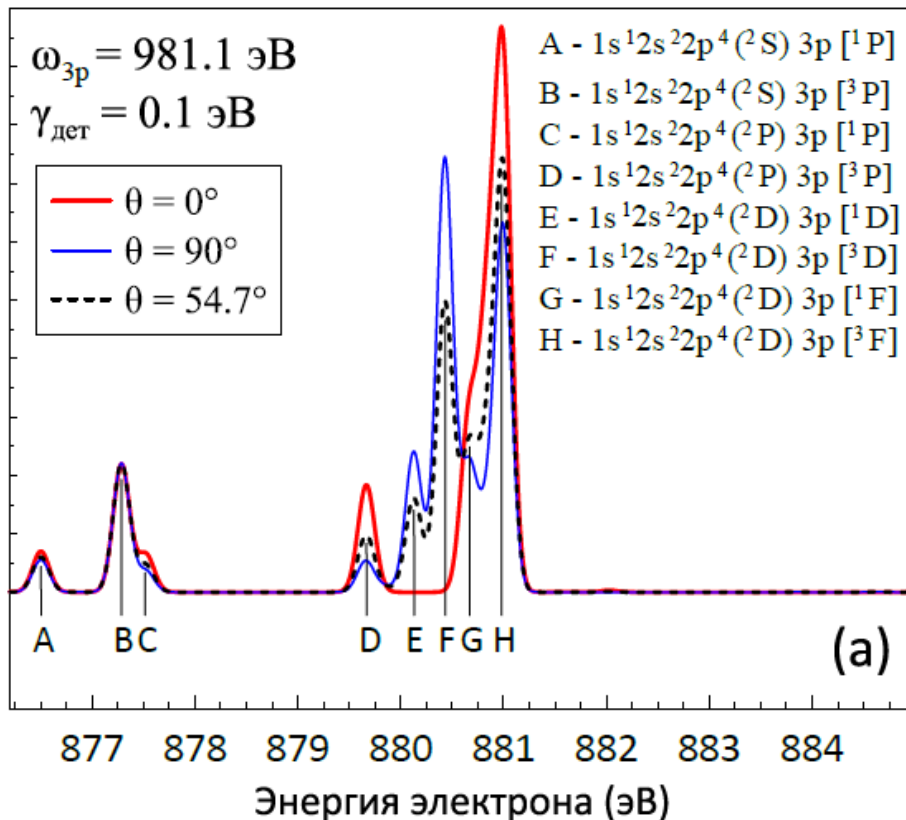
69.7% – spectator, затрагивающие только $2p$ -оболочку;

16.5% – spectator, затрагивающие $2s$ -оболочку с образованием как $2s^{-1}$, так и $2s^{-2}$ состояний;

11.7% – shake-up $3p \rightarrow np$ ($n \geq 4$).

$$\sigma(\theta) = \sigma_0(1 + \beta P_2(\cos \theta))$$

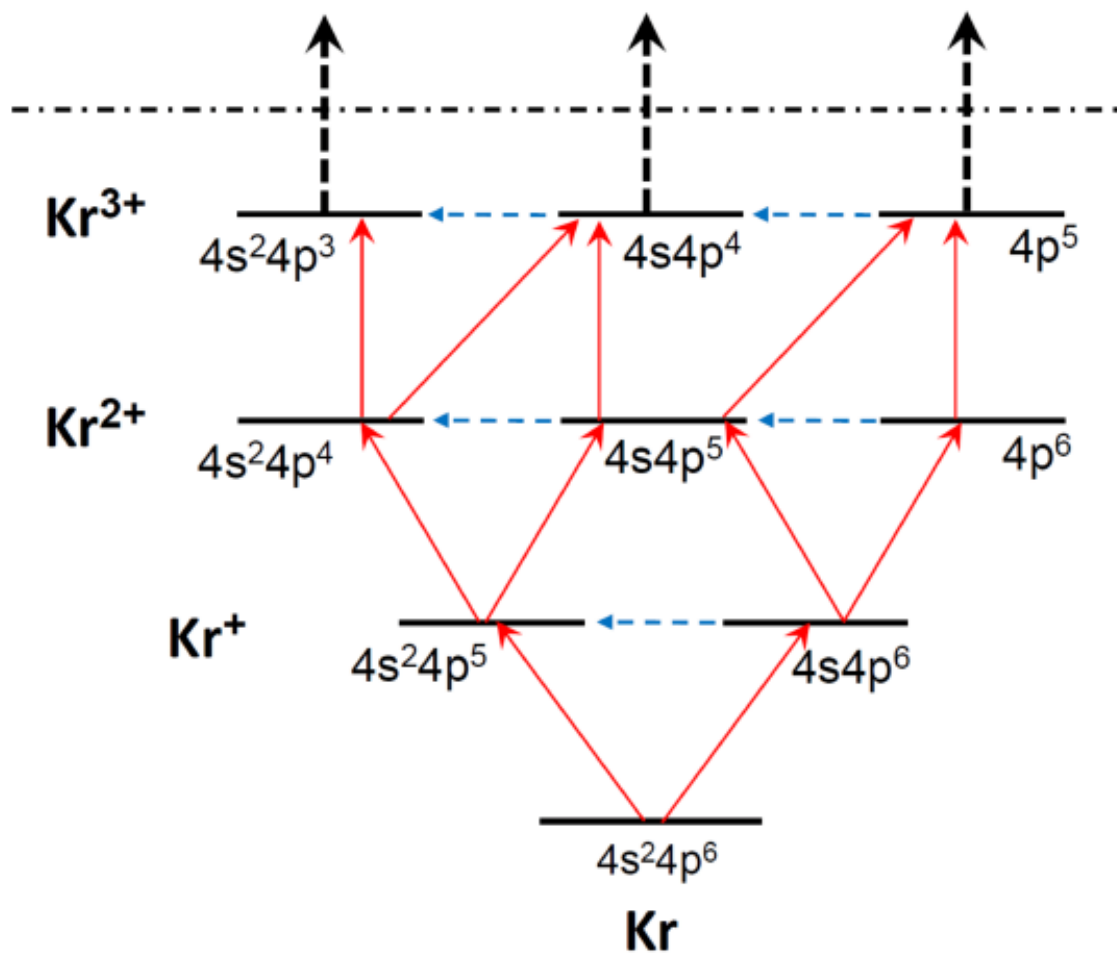
Выход электронов (произв. ед.)

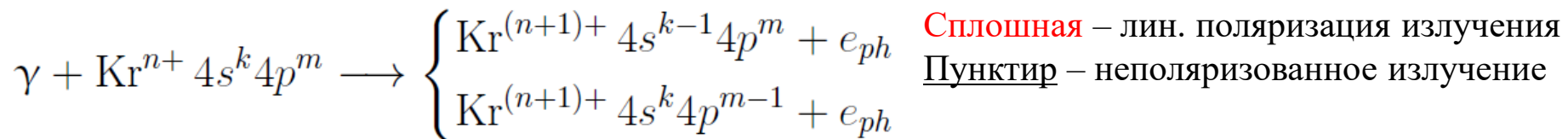


для термина остаточного иона $2Sf+1D$ наблюдается полное исчезновение соответствующих линий в спектре, наблюдаемом параллельно поляризации поля ($\beta = -1$)

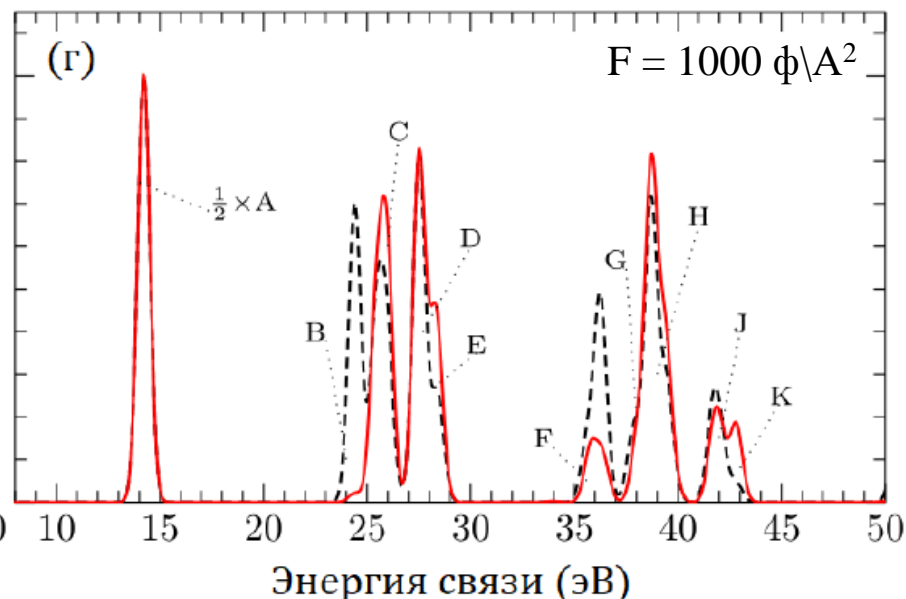
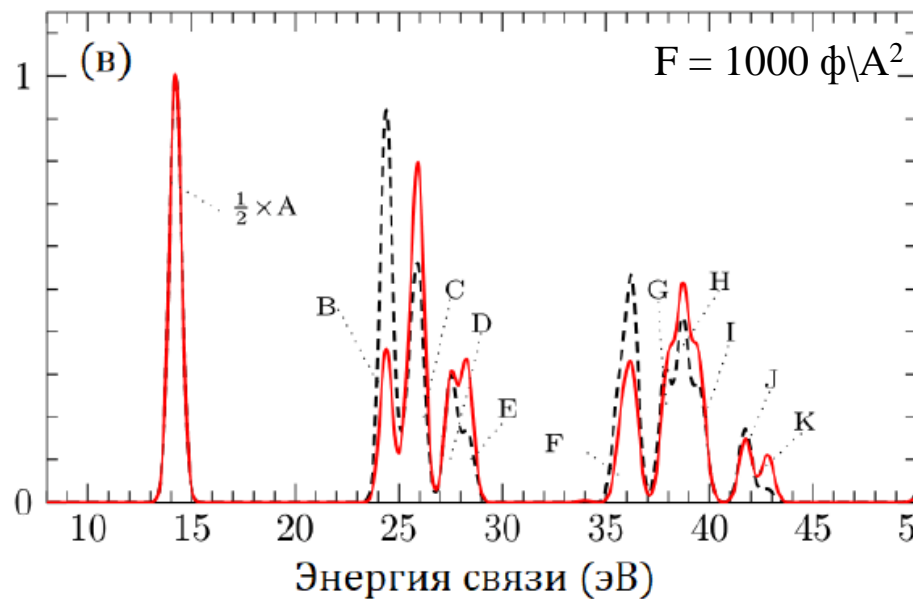
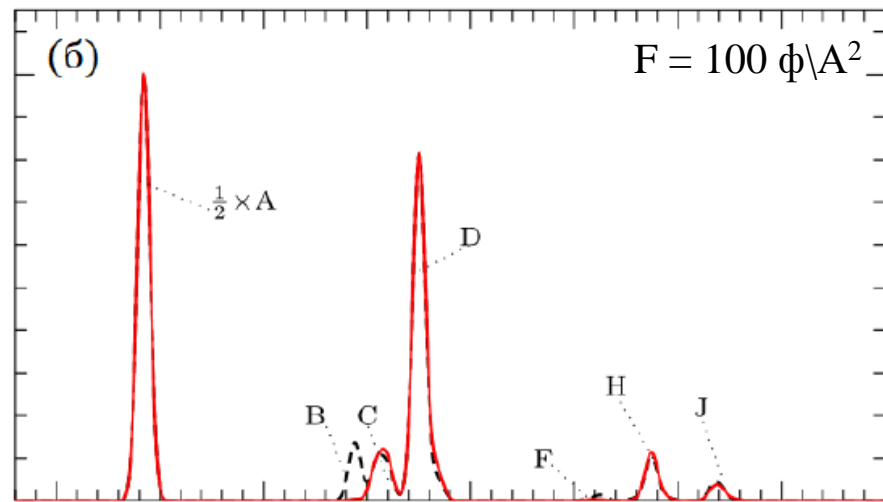
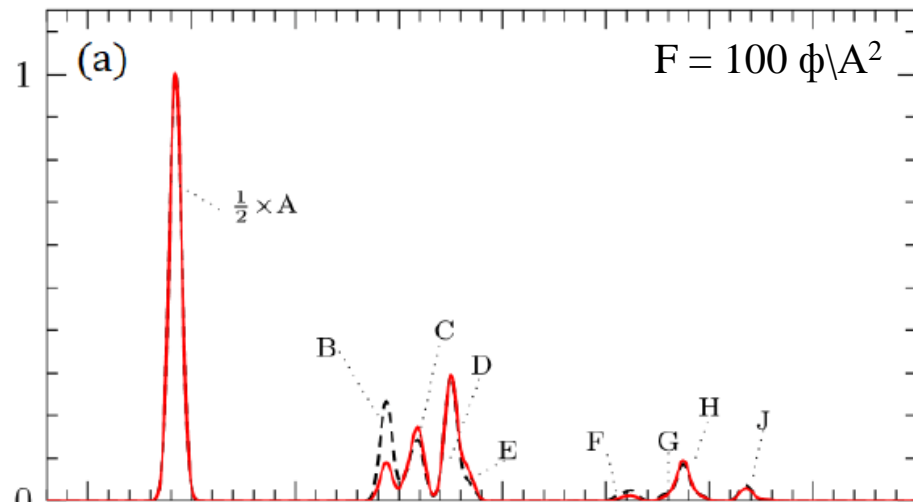
**Ионизация внешних $4s$ и $4p$
оболочек криптона**

$$\gamma + \text{Kr}^{n+} 4s^k 4p^m \longrightarrow \begin{cases} \text{Kr}^{(n+1)+} 4s^{k-1} 4p^m + e_{ph} \\ \text{Kr}^{(n+1)+} 4s^k 4p^{m-1} + e_{ph} \end{cases}$$




 $\omega = 65 \text{ эВ}$
 $\omega = 78 \text{ эВ}$

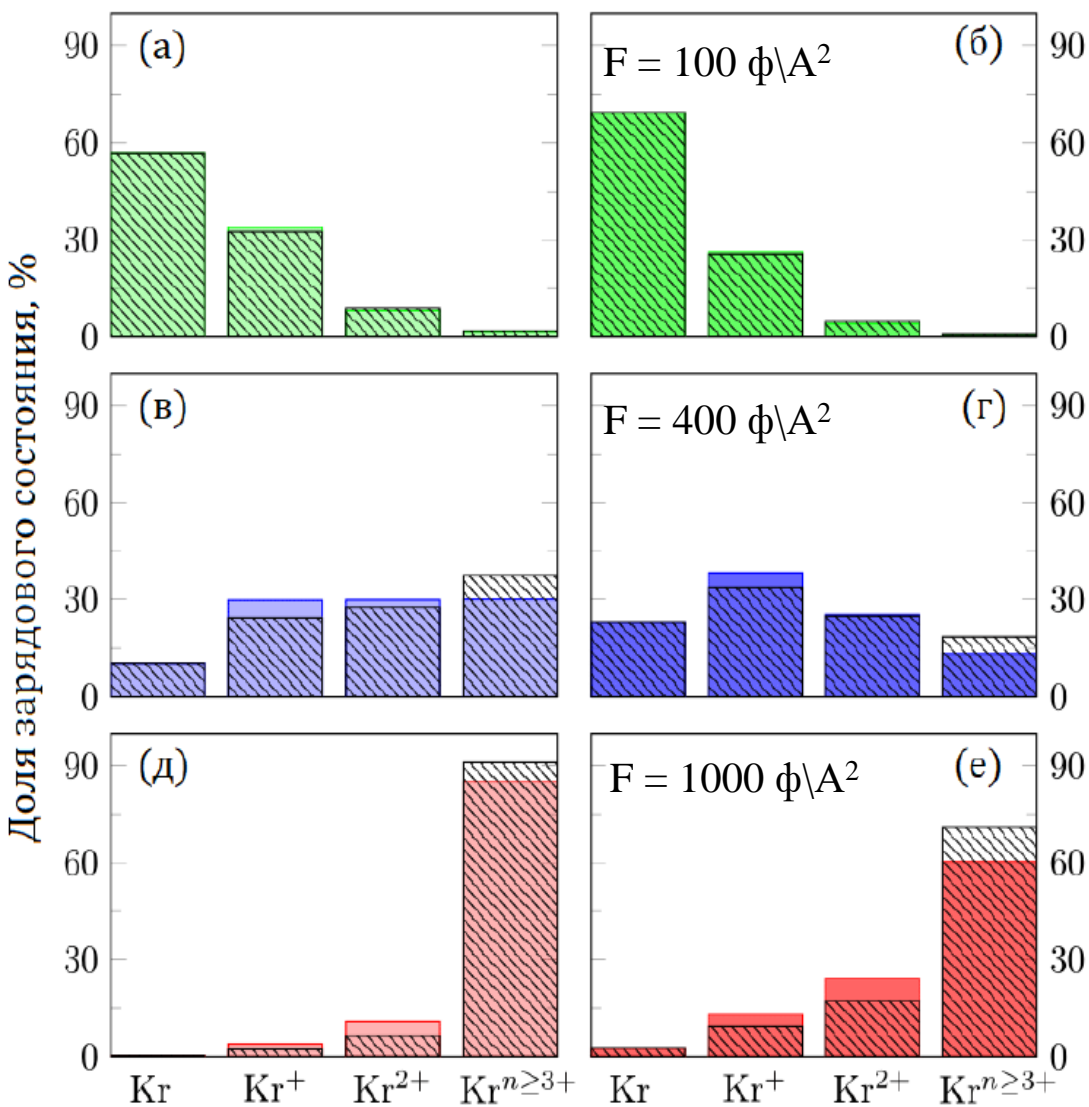
Интенсивность, произв. ед.



$$\gamma + \text{Kr}^{n+} 4s^k 4p^m \longrightarrow \begin{cases} \text{Kr}^{(n+1)+} 4s^{k-1} 4p^m + e_{ph} \\ \text{Kr}^{(n+1)+} 4s^k 4p^{m-1} + e_{ph} \end{cases}$$

$\omega = 65$ эВ

$\omega = 78$ эВ



Цвет – лин. поляризация излучения

Штриховка – неполяризованное излучение

**Образование корреляционных сателлитных линий в
криптоне при ионизации $3d$ -оболочки
(с привлечением данных экспериментов на MAX IV)**

Эксперимент

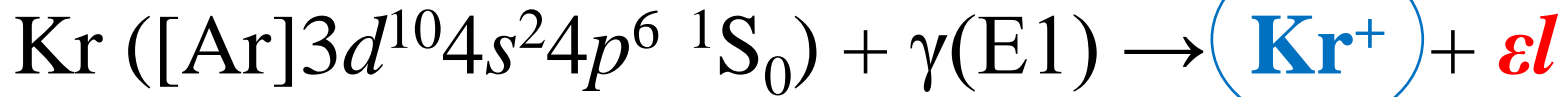


MAX IV (Lund, Sweden) – синхротрон 4го поколения.

Экспериментальная группа:
David Holland,
Minna Patanen *et al.*

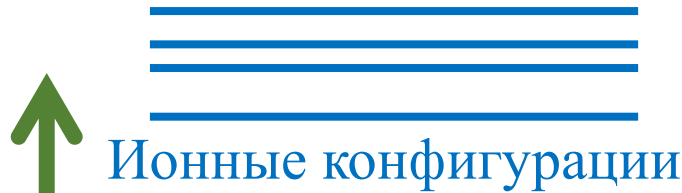
Первое измерение угловых распределений сателлитных линий, связанных с ионизацией $3d$ -оболочки в атоме криптона фотонами с энергией 127.5-200 эВ.

Теория



Теория: метод R-матрицы, BSR¹

¹ (O. Zatsarinny, *Comput. Phys. Comm.* **174** (2006) 273-356)



γ (E1)
80-210 eV

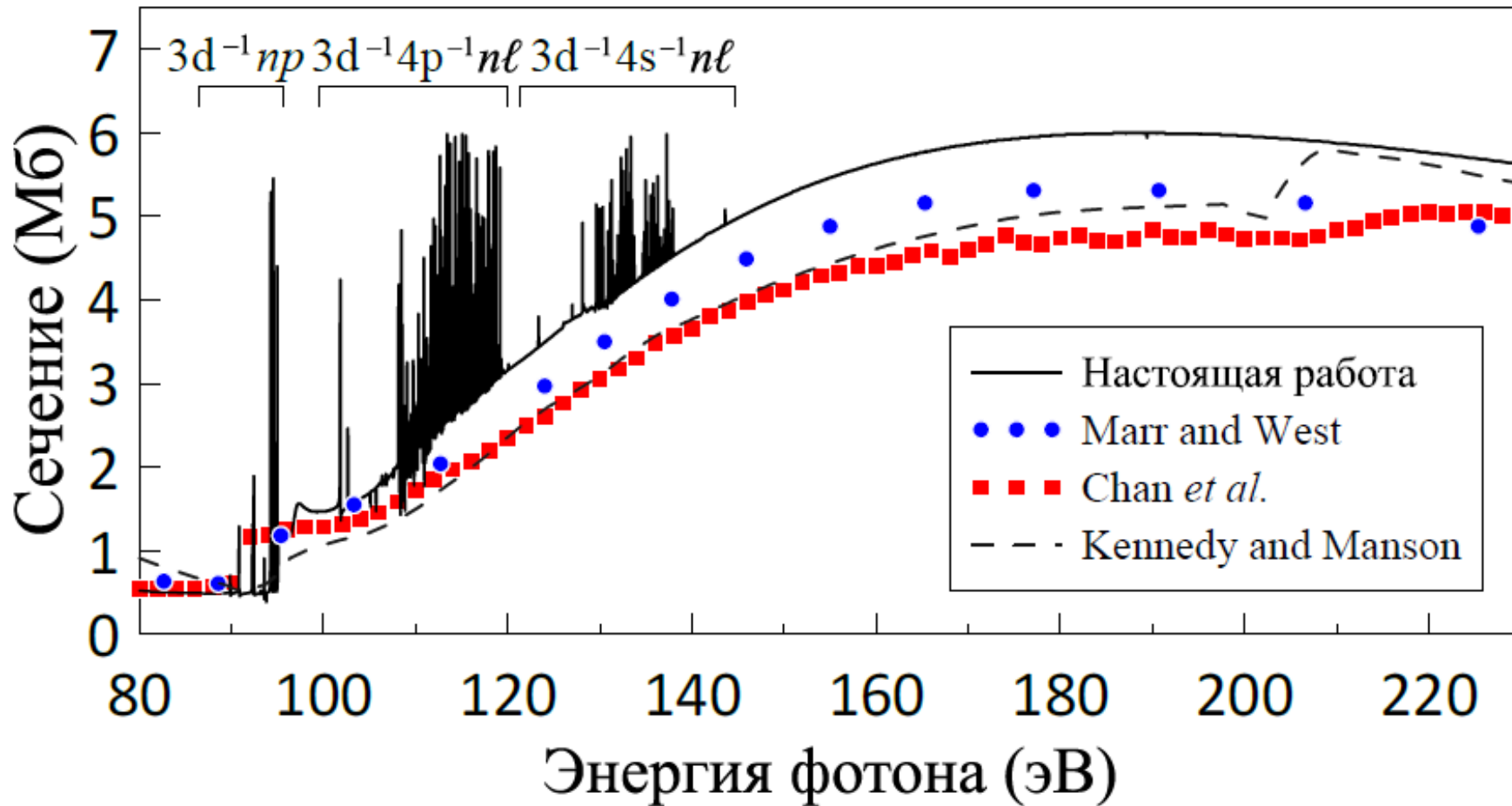
$[\text{Ar}]3d^{10}4s^24p^6 \ ^1S_0$

Базис Kr^+ : **244** состояния

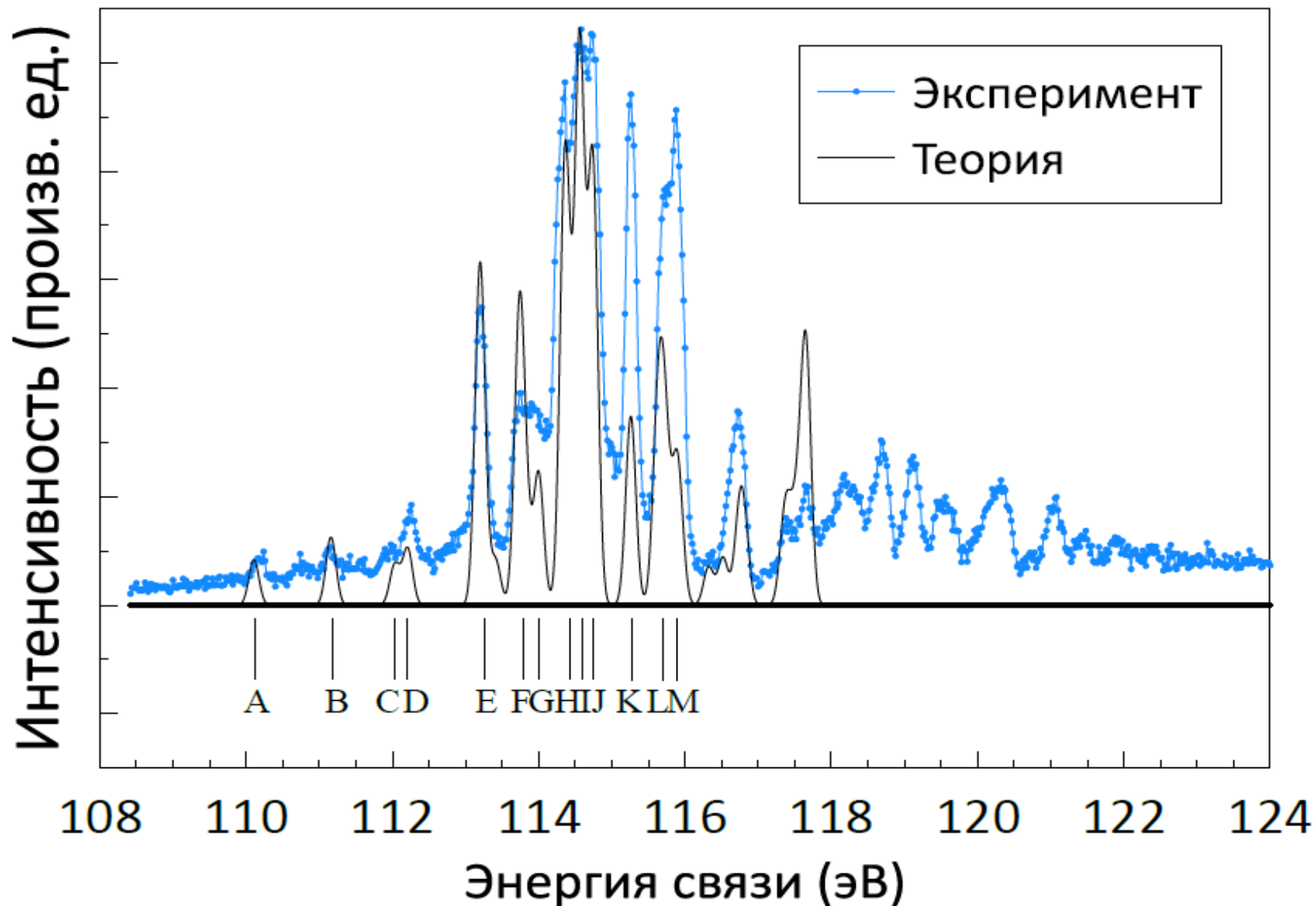
$3d^{10}4s^24p^5$, $3d^{10}4s^24p^44d$, $3d^{10}4s^14p^6$,
 $3d^94s^24p^6$, $3d^94s^24p^5np$, $3d^94s^24p^5ns$, $3d^94s^24p^5md$,
 $3d^94s^14p^6np$, $3d^94s^14p^6ns$, $3d^94s^14p^6md$,

$n = 5 - 7$ и $m = 4 - 5$

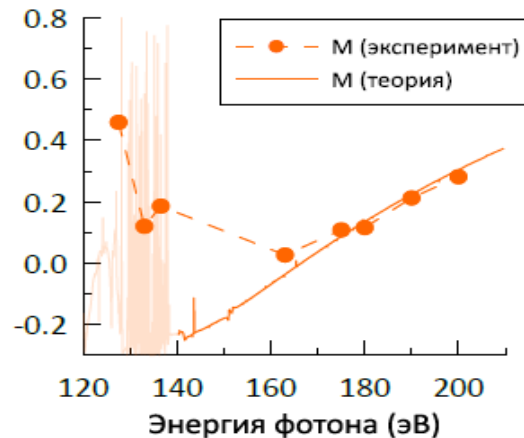
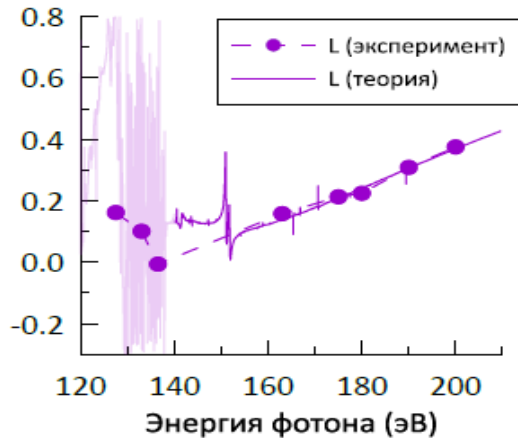
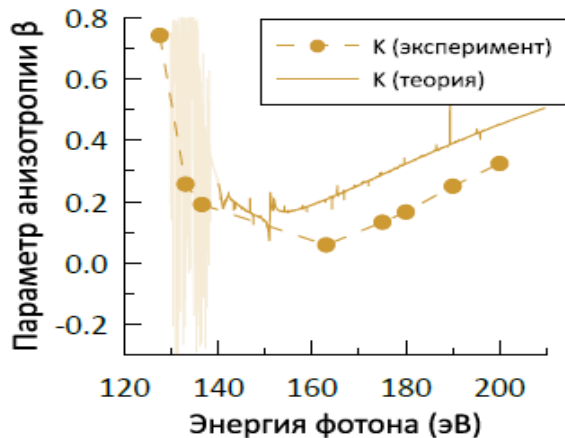
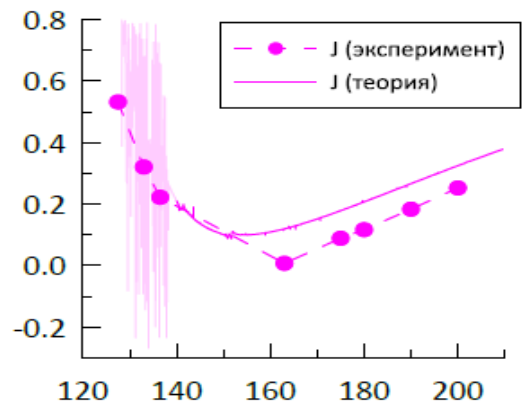
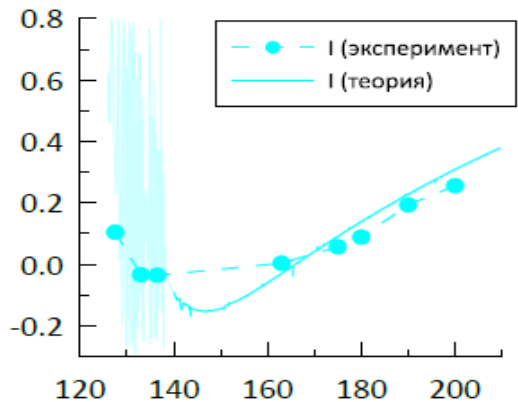
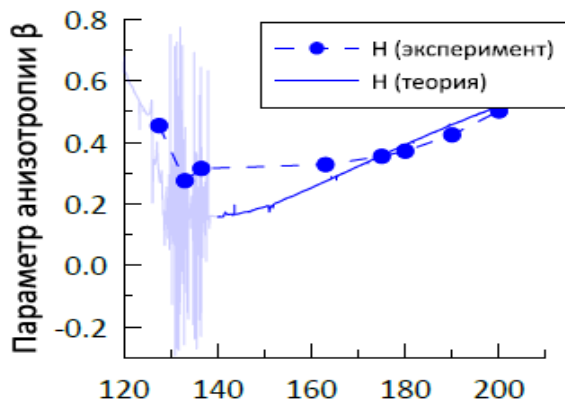
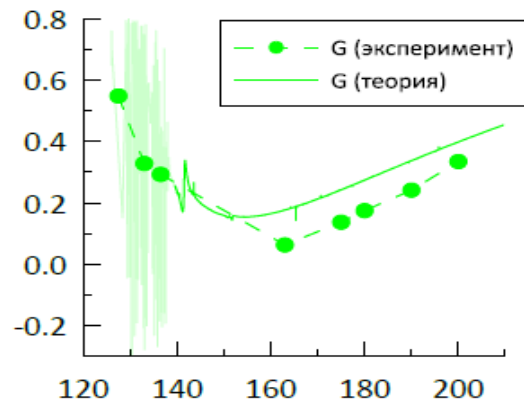
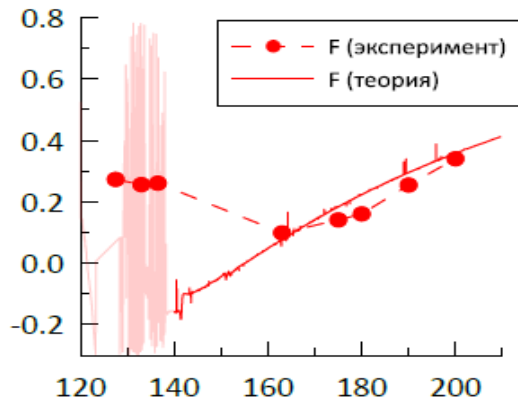
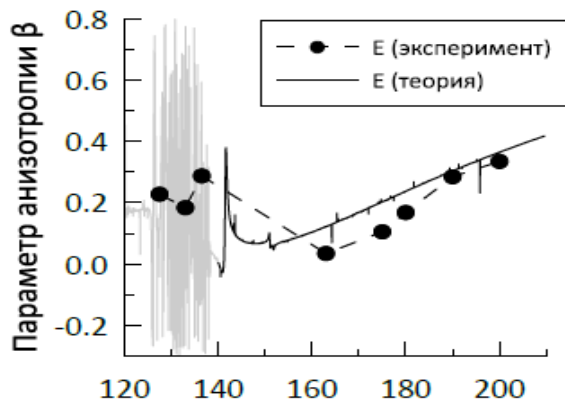
Полное сечение для атома криптона в области порога ионизации $3d$ -оболочки



Фотоэлектронный спектр, соответствующий сателлитным линиям типа $3d^{-1}4p^{-1}nl$



Параметр анизотропии угловых распределений



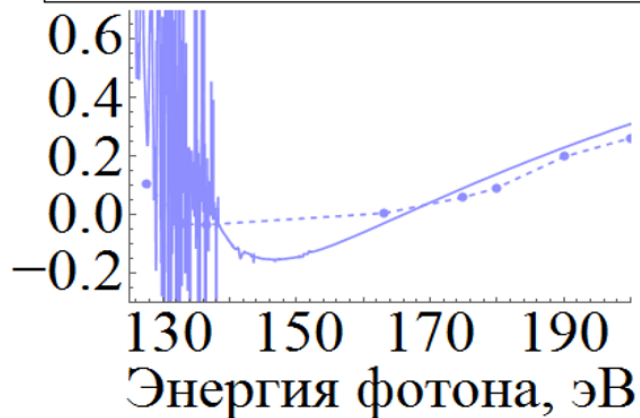
Определение механизма образования сателлитной линии

I: $3d^9 4s^2 4p^5 ({}^1F) 5p [{}^2D_{5/2}]$

$$J + l = K; K + 1/2 = J(\text{Kr}^+ + e^-) \quad \varepsilon l [K]$$

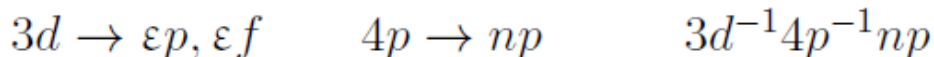
$$J(\text{Kr}^+ + e^-) = J_0 + J(\gamma) = 0 + 1 = 1$$

$$\pi_0 \cdot \pi(\gamma) = \pi \cdot (-1)^l$$

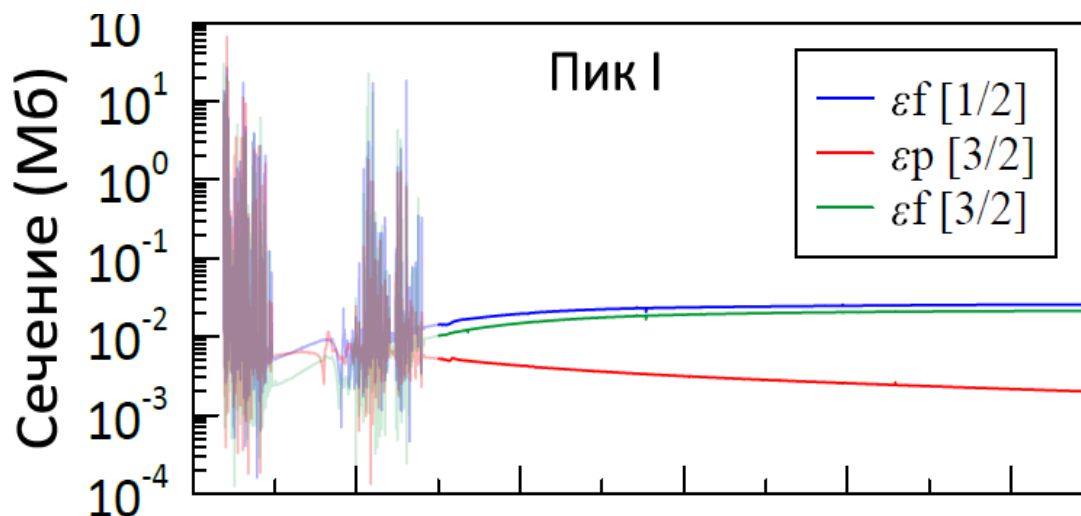
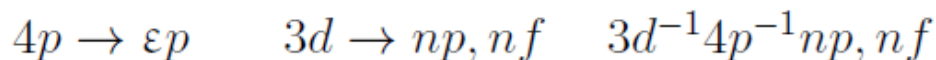


Ионизация	Возбуждение	Конфигурация конечного иона
-----------	-------------	--------------------------------

Механизм нормальной встряски (normal shake-up)



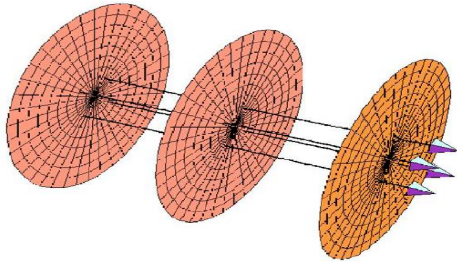
Механизм сопряженной встряски (conjugate shake-up)



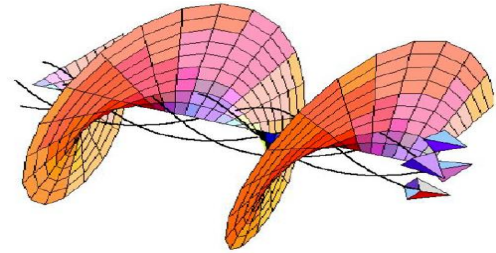
Резонансная фотоионизация закрученными пучками излучения

Сравнение плоской волны и закрученного света

Плосковолновое излучение



Закрученное излучение



Является решением волнового уравнения $\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t}\right) A(\mathbf{r}, t) = 0$

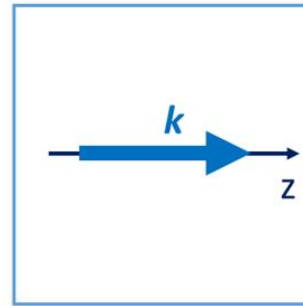
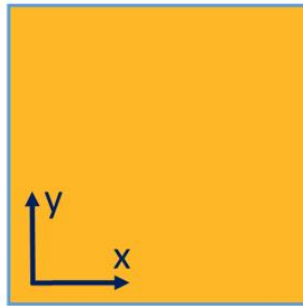
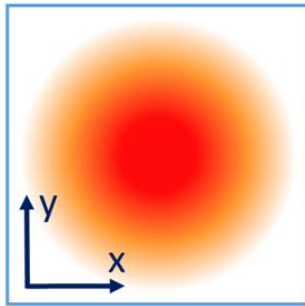
$$A(\mathbf{r}, t) \sim e^{-i\omega t + i\mathbf{k}r}$$

$$A(\mathbf{r}, t) \sim e^{-i\omega t + ik_z r} e^{im\varphi} J_m(k_{\perp} r)$$

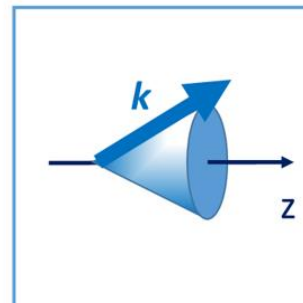
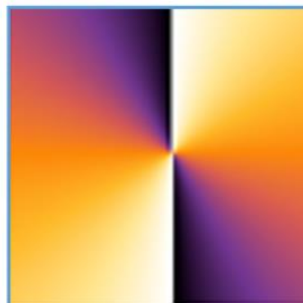
Профиль интенсивности

Фаза

Импульс



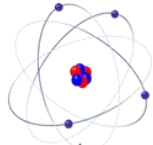
Плоская волна



Закрученный свет

Взаимодействие закрученного света с атомами

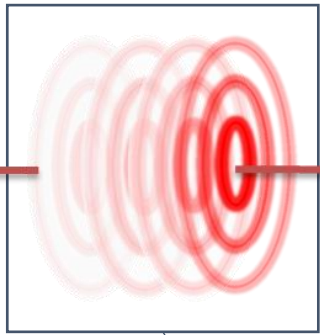
$$M_{M_i \lambda m_{\text{там}} M_f}^{(\text{tw})}(p; \theta_k, b) = \int \frac{d^2 \mathbf{k}_{\perp}}{(2\pi)^2} a_{\mathbf{k}_{\perp} m_{\text{там}}}(\mathbf{k}_{\perp}) e^{-i \mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{b}} M_{M_i \lambda M_f}^{(\text{pl})}(k, p)$$



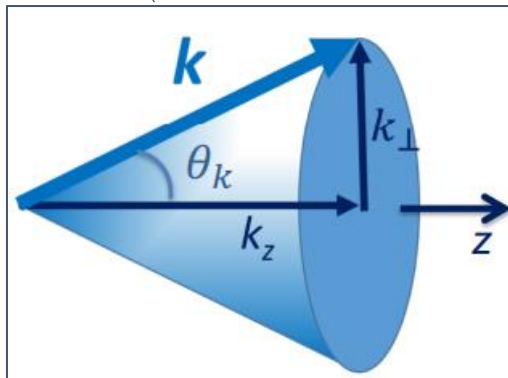
матричный элемент
фотоионизации атома
закрученным светом

матричный элемент
фотоионизации атома
плоской волной

На основе данного соотношения и с использованием квантовой теории углового момента можно получить выражение для **углового распределения фото-электронов**, образующихся при фотоионизации закрученным излучением.



\mathbf{b}



$$\theta_k = \arctg \left(\frac{k_{\perp}}{k_z} \right)$$

Мишень:

- однородная;
- макроскопическая;
- атомы распределены случайно и равномерно в плоскости xu ;
- начальное состояние атомов неполяризовано;

Взаимодействие закрученного света с атомами

Утверждение:

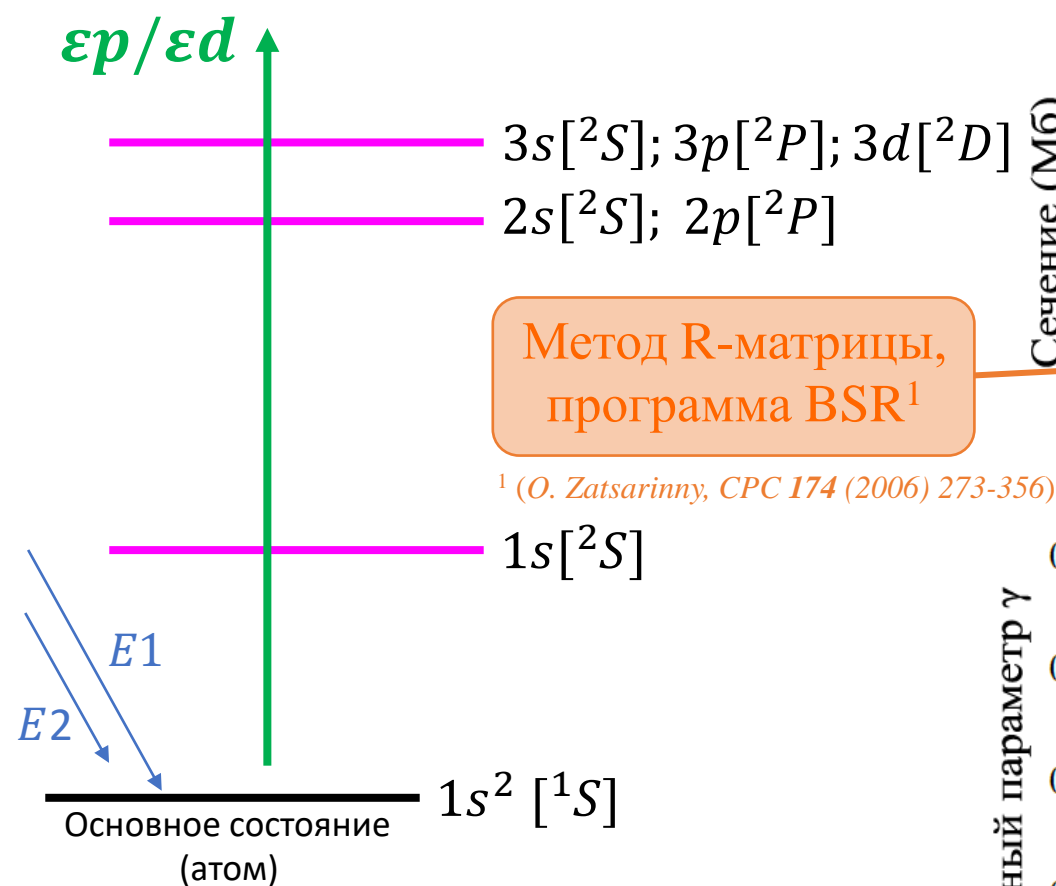
Чтобы учесть влияние эффекта закрученности света (в случае бесселевой волны) на угловое распределение фотоэлектронов при облучении мишени, состоящей из неполяризованных и равномерно распределённых атомов, необходимо домножить каждую сферическую гармонику Y_{KQ} в выражении для углового распределения фотоэлектронов, образованных под действием плоской электромагнитной волны, на малую D -функцию Вигнера вида $d_{QQ}^K(\theta_k)$.

Утверждение справедливо для произвольного числа учитываемых мультиполей, а также при любой рассматриваемой атомной структуре.

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_s = \frac{\sigma_0}{4\pi} \left(1 - \frac{\beta}{2} \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \left[Y_{20}(\theta_p, \varphi_p) - \frac{P\sqrt{6}}{2} (Y_{2-2}(\theta_p, \varphi_p) + Y_{2+2}(\theta_p, \varphi_p)) \right] + \left(\delta + \frac{\gamma}{5} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{3}} Y_{10}(\theta_p, \varphi_p) - \frac{\gamma}{5} \sqrt{\frac{4\pi}{7}} \left[Y_{30}(\theta_p, \varphi_p) - P\sqrt{\frac{5}{6}} (Y_{3-2}(\theta_p, \varphi_p) + Y_{3+2}(\theta_p, \varphi_p)) \right] \right)$$

$P = 1$ – линейная поляризация; $P = 0$ – циркулярная поляризация

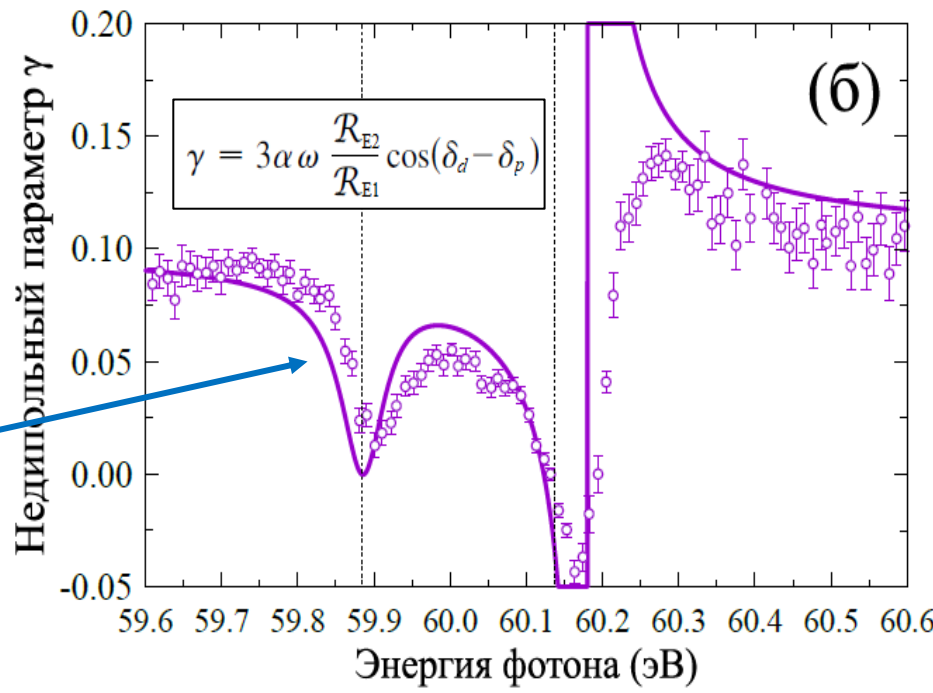
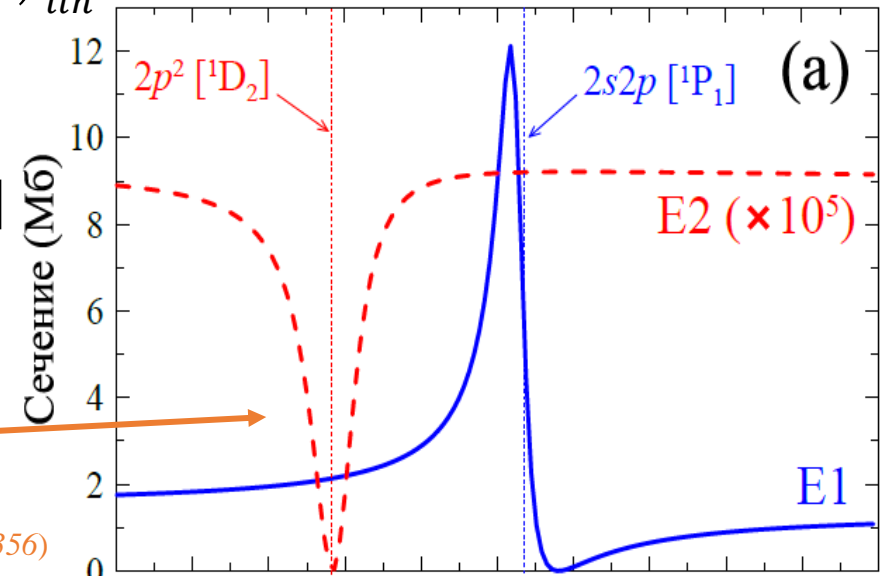
Ионизация гелия закрученным светом



$\beta = const, \delta \rightarrow 0$

$\gamma = \gamma(\omega)$

$$\left(\frac{d\Omega}{d\Omega}\right)_{lin} = \frac{\sigma_0}{4\pi} (3\cos^2\theta'_p + \gamma\cos^2\theta'_p\sin\theta'_p\cos\phi'_p)$$



Диагностика пучка закрученного излучения

$$\left(\frac{d\sigma^{(tw,circ)}}{d\Omega}\right)_S = \frac{\sigma_0}{4\pi} \left(1 - \frac{\beta}{2} P_2(\cos\theta_p) P_2(\cos\theta_c) + \left(\delta + \frac{\gamma}{5}\right) P_1(\cos\theta_p) P_1(\cos\theta_c) - \frac{\gamma}{5} P_3(\cos\theta_p) P_3(\cos\theta_c)\right)$$

If one put:

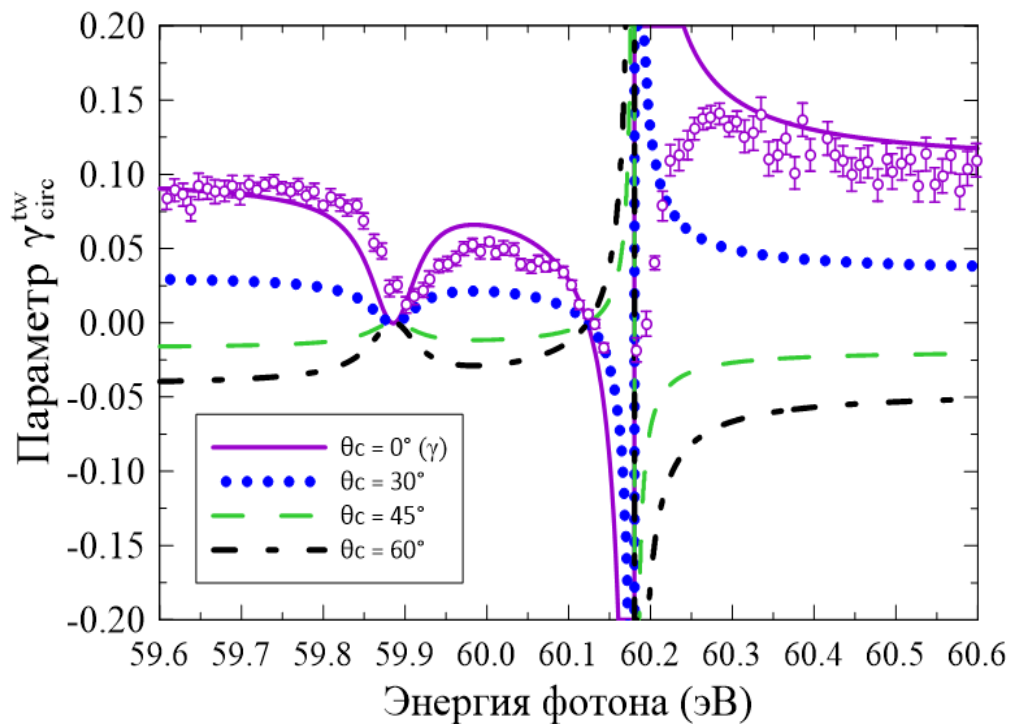
$$\beta_{circ}^{tw} = \beta P_2(\cos\theta_c),$$

$$\gamma_{circ}^{tw} = \gamma P_3(\cos\theta_c),$$

$$\delta_{circ}^{tw} = \left(\delta + \frac{\gamma}{5}\right) P_1(\cos\theta_c) - \frac{\gamma}{5} P_3(\cos\theta_c),$$



$$\left(\frac{d\sigma^{(tw,circ)}}{d\Omega}\right)_S = \frac{\sigma_0}{4\pi} \left(1 - \frac{\beta_{circ}^{tw}}{2} P_2(\cos\theta_p) + \left(\delta_{circ}^{tw} + \frac{\gamma_{circ}^{tw}}{5}\right) P_1(\cos\theta_p) - \frac{\gamma_{circ}^{tw}}{5} P_3(\cos\theta_p)\right)$$



Это означает, что если провести эксперимент по фотоионизации как плоским, так и закрученным (бесселевым) излучением с одним и тем же атомом и извлечь параметры анизотропии, то становится возможным диагностировать бесселев пучок.

Положения, выносимые на защиту

- Метод R-матрицы может успешно применяться для расчёта фотоионизации глубоких атомных оболочек в области мягкого рентгена. Учёт каналов распада экзотических автоионизационных резонансов неона типа $1s^{-2}np$ только с активным np -электроном (participator) приводит к серьёзной переоценке (до двух порядков) времени жизни соответствующего резонанса, в то время как дополнительный учёт каналов с пассивным np -электроном (spectator) позволяет корректно описать энергетические ширины и времена жизни резонансов. Угловая анизотропия соответствующих фотоэлектронных спектров различима для энергии фотона, настроенной в резонанс при $n = 3$, и исчезает для $n \geq 4$.
- Учёт автоионизационных резонансов типа $4s^24p^4(^1D)ns/nd$ и $4s^14p^5np$ в процессе двухфотонной двойной ионизации нейтрального криптона улучшает согласие между теоретическим прогнозом и измеренными экспериментально значениями параметров анизотропии угловых распределений фотоэлектронов β_2 и β_4 .
- Вследствие доминирования определённого типа электрона в континууме при фотоионизации криптона в области выше порога ионизации электронной $3d$ -оболочки механизм образования корреляционных сателлитных линий типа $3d^{-1}4p^{-1}nl$ в терминах нормальной (normal) и сопряжённой (conjugate) встряски может быть определён однозначно.

Положения, выносимые на защиту

- Эффекты поляризации падающего излучения и поляризации промежуточных ионных состояний при последовательной ионизации криптона могут выразиться в изменении наблюдаемых интегральных характеристик, таких как выходы ионов различной кратности, до 10%.
- Для однородной макроскопической мишени из неполяризованных атомов, равномерно распределённых в плоскости, перпендикулярной направлению распространения бесселева пучка циркулярной или линейной поляризации, влияние закрученности излучения на угловое распределение фотоэлектронов проявляется в домножении каждой сферической гармоники вида $Y_{kq}(\theta_p, \varphi_p)$ в выражении для случая ионизации плоской волной на малую D -функцию Вигнера вида $d_{qq}^k(\theta_c)$, где θ_c – угол раскрытия конуса закрученного света.
- При ионизации атома гелия закрученным бесселевым светом вероятность вылета электронов существенно перераспределяется в направлении «вперёд-назад» с образованием новых доминирующих направлений при увеличении угла раскрытия θ_c . Наиболее яркое проявление достигается в минимуме профиля дипольного $2s2p\ ^1P_1$ резонанса (60.18 эВ).

Публикации по теме диссертации

Основные результаты работы изложены в 9 публикациях, индексируемых в WoS/Scopus, а также рекомендуемых ВАК:

- [1] **Киселев М.Д.**, Грызлова Е.В., Грум-Гржимайло А.Н., Zatsarinny O. Экзотические дырочные состояния атомов, образуемые в поле рентгеновского лазера на свободных электронах: двойные К-вакансии в неоне // *Ученые Записки Физического Факультета МГУ*. — 2019. — Т. 1, № 3. — С. 1930410, **IF = 0.074 (РИНЦ).**
- [2] **Kiselev M.D.**, Gryzlova E.V., Burkov S.M., Zatsarinny O., Grum-Grzhimailo A.N. Mechanisms of 1s Double-Core-Hole Excitation and Decay in Neon // *ATOMS*. — 2021. — Vol. 9, no. 4. — P. 114, **IF = 1.8 (WoS).**
- [3] Mazza T., Ilchen M., **Kiselev M.D.** *et al.* Mapping Resonance Structures in Transient Core-Ionized Atoms // *Physical Review X*. — 2020. — Vol. 10, no. 4. — P. 041056, **IF = 12.5 (WoS).**
- [4] Gryzlova E.V., **Kiselev M.D.**, Popova M.M., Zubekhin A.A., Sansone G., Grum-Grzhimailo A.N. Multiple Sequential Ionization of Valence $n = 4$ Shell of Krypton by Intense Femtosecond XUV Pulses // *ATOMS*. — 2020. — Vol. 8, no. 4. — P. 80, **IF = 1.8 (WoS).**
- [5] Gryzlova E.V., **Kiselev M.D.**, Popova M.M., Grum-Grzhimailo A.N. Evolution of the ionic polarization in multiple sequential ionization: general equations and an illustrative example // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2023. — Vol. 107, no. 2. — P. 013111, **IF = 2.9 (WoS).**
- [6] **Kiselev M.D.**, Carpeggiani P.A., Gryzlova E.V. *et al.* Photoelectron spectra and angular distribution in sequential two photon double ionization in the region of autoionizing resonances of ArII and KrII // *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. — 2020. — Vol. 53, no. 3. — P. 244006, **IF = 1.6 (WoS).**
- [7] Varvarezos L., Düsterer S., **Kiselev M.D.** *et al.* Near-threshold two-photon double ionization of Kr in the vacuum ultraviolet // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2021. — Vol. 103, no. 2. — P. 022832, **IF = 2.9 (WoS).**
- [8] **Kiselev M.D.**, Reinhardt M., Patanen M. *et al.* An experimental and theoretical study of the Kr 3d correlation satellites // *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. — 2022. — Vol. 55, no. 5. — P. 055002, **IF = 1.6 (WoS).**
- [9] **Kiselev M.D.**, Gryzlova E.V., Grum-Grzhimailo A.N. Angular distribution of photoelectrons generated in atomic ionization by the twisted radiation // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2023. — Vol. 108, no. 2. — P. 023117, **IF = 2.9 (WoS).**

Апробация

Основные результаты работы были представлены в виде 21 доклада (в том числе 1 приглашённого) на российских и международных конференциях:

- **Ломоносовские чтения (2019, 2020, 2021, 2022, 2023);**
- **Ломоносов (2021);**
- **Концентрированные потоки энергии в космической технике, электронике, экологии и медицине (2021, 2022);**
- **Ядро (2022);**
- **The 5th International Symposium on Intense Short Wavelength Processes in Atoms and Molecules (2019);**
- **20th International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (2020);**
- **Science@FELs (2020);**
- **European XFEL Users' Meeting (2021, 2022);**
- **52nd Conference of the European Group on Atomic Systems (2021);**
- **32nd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (2021);**
- **33rd MAX IV User Meeting (2021);**
- **International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation (2022, 2023);**

а также на внутренних семинарах теоретических и экспериментальных групп.

Благодарности

- ✓ научному руководителю А.Н. Грум-Гржимайло;
- ✓ коллегам Е.В. Грызловой и М.М. Поповой;
- ✓ коллективу кафедры общей ядерной физики и ОЭПВАЯ;
- ✓ руководителям экспериментальных групп (M. Meyer, G. Sansone, J. Costello, D. Holland) и коллегам-теоретикам (A. Surzhykov и Д.В. Карловец);
- ✓ коллективу лаборатории МКП ТОГУ и ЦКП ДВО РАН;
- ✓ фондам: «Базис», РФФИ, РНФ, «Научный фонд А.Д. Сахарова».

Спасибо за внимание!