ДВУХФОТОННАЯ ИОНИЗАЦИЯ ОДНОКРАТНО ЗАРЯЖЕННЫХ ВЫСТРОЕННЫХ ИОНОВ

Е.В. Грызлова[1], А.Н. Грум-Гржимайло[1], А.С. Битюцкая[2], С.И. Страхова[1]
[1] *Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцыеа Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова*
[2] *Физический факультет Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова*
E-mail: gryzlova@gmail.com

Abstract

A method of theoretical description of non-resonant ionization of aligned ions is proposed. This process is an important component of sequential multiple atomic ionization by a few photons, which is observed in current experiments with femtosecond intense VUV pulses of free-electron lasers.

Введение

Появление нового поколения лазеров на свободных электронах в режиме самоусиления (FLASH в Германии, SPring-8 в Японии, LCLS в США) сделало возможным наблюдение нелинейных многоэлектронных процессов в непрерывном спектре атомов и ионов. Достигнутые сейчас яркости источников и плотности атомных пучков позволили впервые наблюдать ионизацию атома с последующей ионизацией иона несколькими (двумя или тремя) фотонами. Теоретическое описание процесса последовательной двойной двухфотонной ионизации было предложено и апробировано нами в [1] для атомов неона и аргона, с последующими расчетами для атомов ксенона и криптона [2,3]. Альтернативный подход без учета тонкой структуры был предложен в работах [4,5].

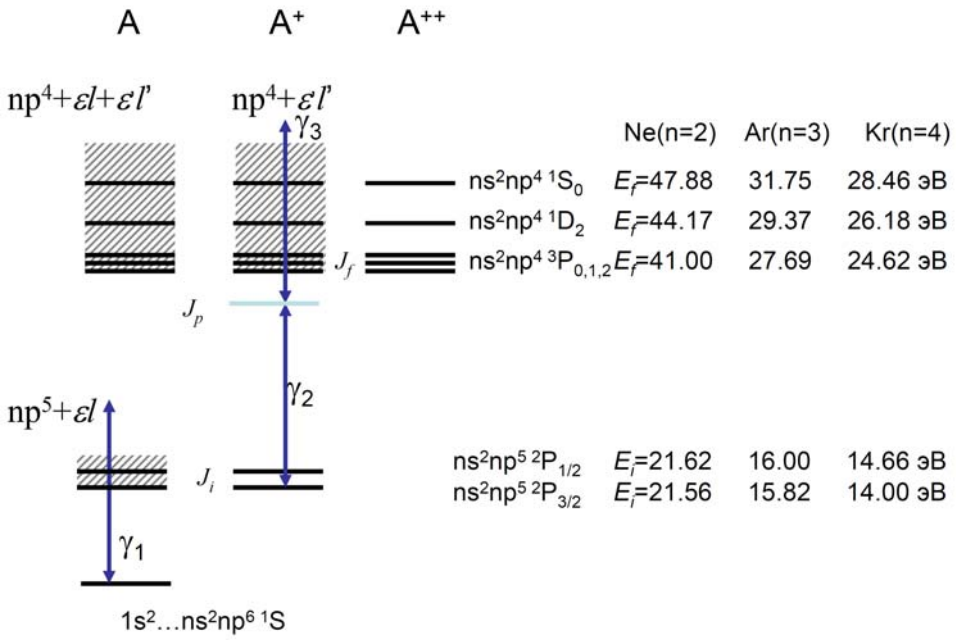

Рис. 1 Схема последовательной трехфотонной двойной ионизации для атомов инертных газов. Пороги однократной ионизации атомов E_i отсчитываются от энергии основного состояния атома; пороги ионизации однократно заряженного

иона E_f отсчитываются от энергии основного состояния иона $^2P_{3/2}$.

Если энергия фотонов выше порога ионизации атома, но ниже порога ионизации однократно заряженного иона (а такой диапазон энергии существует для любого атома), то вторая ступень - ионизация иона - может происходить при резонансном (т.е. через промежуточный уровень) или нерезонансном поглощении двух фотонов. Впервые процесс последовательной двойной ионизации атомов наблюдался именно для такого случая [6-8]. При этом ион, образуемый линейно поляризованным излучением лазера на свободных электронах, перед последующей ионизацией оказывается, вообще говоря, выстроенным. Теория резонансной трехфотонной двойной ионизации атомов была предложена в [9], где были проведены расчеты для атома аргона. В данной работе формализм развивается на случай, когда двухфотонная ионизация поляризованного (выстроенного) иона происходит нерезонансно (рис. 1). Насколько нам известно, эта задача ранее теоретически не исследовалась.

Формализм для описания угловых распределений и корреляционных функций в процессах последовательной многократной ионизации атомов

Мы будем описывать поляризацию атомов, ионов, электронов и фотонов в формализме статистических тензоров, связанных с элементами матрицы плотности:

$$\rho_{kq}(J;J') = \sum_{MM'} (-1)^{J'-M'} \left(JMJ'-M' \,|\, kq\right) \left\langle J'M' \middle| \hat{\rho} \middle| JM \right\rangle, \qquad (1)$$

где введено стандартное обозначение для коэффициентов Клебша-Гордона.

Как было показано в [1], поляризационное состояние иона после поглощения первого фотона определяется статистическими тензорами

$$\rho_{k_1 q_1}(J_i;\theta_1,\varphi_1) = \pi\alpha\omega \sum_{k_1 k_{\gamma 1}} B(k_1,k_i,k_{\gamma_1})\, \rho^{\gamma}_{k_{\gamma_1} 0} \left(k_1 q_i k_{\gamma_1} 0 \,|\, k_i q_i\right) \sqrt{\frac{4\pi}{2k_1+1}}\, Y^*_{k_1 q_i}(\theta_1,\varphi_1), \qquad (2)$$

где α – постоянная тонкой структуры, ω – энергия фотона (используется атомная система единиц), $Y_{kq}(\theta,\varphi)$ – сферическая гармоника, θ_1,φ_1 - углы вылета первого фотоэлектрона. В (2) мы зафиксировали ось квантования z вдоль направления вектора поляризации лазерного излучения; тогда $\rho^{\gamma}_{k_{\gamma 1} 0}$ - статистический тензор фотона - принимает значения $\rho^{\gamma}_{00} = 1/\sqrt{3}$ и $\rho^{\gamma}_{20} = -\sqrt{2/3}$. Обобщенные коэффициенты анизотропии $B(k_1,k_i,k_{\gamma_1})$ определяются дипольными матричными элементами (амплитудами) процесса однократной ионизации атома:

$$B(k_1,k_i,k_{\gamma_1}) = \hat{k}_i \hat{k}_1 \sum_{l_1 l'_1 j_1 j'_1} (-1)^{j'_1+1/2} \hat{l}_1 \hat{l}'_1 \hat{j}_1 \hat{j}'_1 \left(l_1 0 l'_1 0 \,|\, k_1 0\right) \begin{Bmatrix} j_1 & l_1 & 1/2 \\ l'_1 & j'_1 & k_1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_i & j_1 & 1 \\ J_i & j'_1 & 1 \\ k_i & k_1 & k_{\gamma_1} \end{Bmatrix} \times$$
$$\times \left\langle J_i, l_1 j_1 : 1 \middle\| \hat{D} \middle\| 0 \right\rangle \left\langle J_i, l'_1 j'_1 : 1 \middle\| \hat{D} \middle\| 0 \right\rangle^*, \qquad (3)$$

где введены стандартные обозначения для *6j*- и *9j*-символов и для приведенных матричных элементов дипольного оператора $\hat{D}$, а также $\hat{j}=\sqrt{2j+1}$; l_1, j_1 – орбитальный и полный угловые моменты фотоэлектрона. Выражение (3) имеет более простой вид, чем соотношение (6) в [1], поскольку в (3) учтено, что полный момент атома инертного газа $J_0=0$.

Однократно заряженный поляризованный ион продолжает взаимодействовать с фемтосекундным импульсом лазера и может ионизоваться еще раз. Чтобы получить угловое распределение второго фотоэлектрона (при заданных углах вылета первого фотоэлектрона), надо свернуть статистический тензор системы после нерезонансного поглощения двух фотонов с тензором эффективности детектора [10]. Если состояние конечного иона не регистрируется, то функция угловой корреляции представляется в виде

$$W(\theta_1,\varphi_1;\theta_2,\varphi_2)=\sum_{k_2q_2J_2J'_2}\rho_{k_2q_2}(J_2,J'_2;\theta_1,\varphi_1)\sqrt{\frac{4\pi}{2k_2+1}}Y_{k_2q_2}(\theta_2,\varphi_2)\,, \tag{4}$$

где поляризационное состояние системы после нерезонансного поглощения двух фотонов описывается статистическим тензором

$$\begin{gathered}\rho_{k_2q_2}(J_2,J'_2;\theta_1,\varphi_1)=\pi\alpha\omega\sum_{\substack{k_iq_ik_{\gamma_3}q_{\gamma_3}\\ k_pq_pk_{\gamma_2}q_{\gamma_2}}}\hat{k}_i\hat{k}_{\gamma_2}\hat{k}_p\hat{k}_{\gamma_3}\rho_{k_iq_i}(J_i;\theta_1,\varphi_1)\rho^{\gamma}_{k_{\gamma_2}q_{\gamma_2}}\rho^{\gamma}_{k_{\gamma_3}q_{\gamma_3}}\times\\ \times\left(k_iq_ik_{\gamma_2}q_{\gamma_2}\,|\,k_pq_p\right)\left(k_pq_pk_{\gamma_3}q_{\gamma_3}\,|\,k_2q_2\right)\widetilde{B}\{k_i,k_{\gamma_2},k_p,k_{\gamma_3},k_2\};\end{gathered} \tag{5}$$

с динамическими коэффициентами

$$\begin{gathered}\widetilde{B}\{k_i,k_{\gamma_2},k_p,k_{\gamma_3},k_2\}=\sum_{\substack{l_2l'_2j_2j'_2\\ j_pj'_p}}(-1)^{J_2+J_{i2}-1/2}\hat{l}_2\hat{l}'_2\,\hat{j}_2\hat{j}'_2\,\hat{J}_2\hat{J}'_2\left(l_20l'_20\,|\,k_20\right)\times\\ \times\begin{Bmatrix} j_2 & l_2 & 1/2\\ l'_2 & j'_2 & k_2\end{Bmatrix}\begin{Bmatrix} j_2 & J_2 & J_f\\ J'_2 & j'_2 & k_2\end{Bmatrix}\begin{Bmatrix} J_i & 1 & J_p\\ J_i & 1 & J'_p\\ k_i & k_{\gamma_2} & k_p\end{Bmatrix}\begin{Bmatrix} J_p & 1 & J_2\\ J_p & 1 & J'_2\\ k_p & k_{\gamma_3} & k_2\end{Bmatrix}\times\\ \times\sum_{pp'}\frac{\left\langle J_p\left\|\hat{D}\right\|J_i\right\rangle\left\langle J'_p\left\|\hat{D}\right\|J'_i\right\rangle^*\left\langle J_f,l_2j_2:J_2\left\|\hat{D}\right\|J_p\right\rangle\left\langle J_f,l'_2\,j'_2:J'_2\left\|\hat{D}\right\|J'_p\right\rangle}{(E_p-E_{J_i}-\omega)(E_{p'}-E_{J_i}-\omega)}\,.\end{gathered} \tag{6}$$

В соотношениях (4)-(6) l_2, j_2 – орбитальный и полный угловые моменты второго фотоэлектрона, J_f, J_2 и J_p - полные угловые моменты конечного дважды заряженного иона, конечного и промежуточного состояния системы, соответственно. Суммирование в (6) производится по всем возможным промежуточным состояниям *p, p'*, включая состояния непрерывного спектра. Интегрированием функции угловой корреляции (4) по углам вылета одного из фотоэлектронов можно получить угловые распределения первого или второго фотоэлектрона.

Расчет амплитуды перехода во втором порядке теории возмущений

В динамический параметр (6) входят суммы дипольных матричных элементов переходов во все стационарные состояния невозмущенного иона, включая интеграл по непрерывному спектру:

$$\sum_p \frac{\langle J_p \| \hat{D} \| J_i \rangle \langle J_2 \| \hat{D} \| J_p \rangle}{E_p - E_i - \omega} = \sum_d \frac{\langle J_d \| \hat{D} \| J_i \rangle \langle J_2 \| \hat{D} \| J_d \rangle}{E_d - E_i - \omega} + \int_c \frac{\langle J_c \| \hat{D} \| J_i \rangle \langle J_2 \| \hat{D} \| J_c \rangle}{E_c - E_i - \omega} dE_c \,. \qquad (7)$$

Расчет первого слагаемого в (7) является чисто технической проблемой. Проанализируем подробнее второе слагаемое. Состояние континуума определяется состояниями дважды заряженного иона и электрона: $|J_p\rangle = |J_f; l_p j_p : J_p\rangle$. Полагая, что радиальная волновая функция электрона в поле иона не зависит от квантовых чисел полных угловых моментов, и, учитывая, что дипольный оператор не действует на спиновые переменные, можно представить амплитуду ионизации в виде [10]

$$\langle J_f; l_p j_p : J_p \| \hat{D} \| L_i S_i : J_i \rangle = \sum_{L_p} \delta_{S_p S_i} \hat{J}_f \hat{j}_p \hat{J}_p \hat{J}_i \hat{S}_i \hat{L}_p (-1)^{L_p + S_p + J_i + 1} \times$$

$$\times \begin{Bmatrix} S_i & L_p & J_p \\ 1 & J_i & L_i \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_f & S_f & J_f \\ l_p & 1/2 & j_p \\ L_p & S_i & J_p \end{Bmatrix} \langle L_f; l_p : L_p \| \hat{D} \| L_i \rangle \quad . \qquad (8)$$

а матричный элемент континуум-континуум в виде

$$\langle J_f; l_2 j_2 : J_2 \| \hat{D} \| J_f; l_p j_p : J_p \rangle = \sum_{L_p} \delta_{S_2 S_p} \hat{j}_2 \hat{j}_p \hat{J}_f^2 \hat{S}_p \hat{S}_2 \hat{L}_p \hat{L}_2 \hat{J}_p \hat{J}_2 (-1)^{L_2 + S_2 + 1 + J_p} \times$$

$$\times \begin{Bmatrix} S_p & L_p & J_p \\ 1 & J_2 & L_2 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_f & S_f & J_{i_2} \\ l_p & 1/2 & j_p \\ L_p & S_i & J_p \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_f & S_f & J_f \\ l_2 & 1/2 & j_2 \\ L_2 & S_2 & J_2 \end{Bmatrix} \langle L_f l_2 : L_2 \| \hat{D} \| L_f l_p : L_p \rangle \quad . \qquad (9)$$

Дипольные амплитуды в (8) могут быть получены численно методом самосогласованного поля Хартри-Фока [11]. Например, для оптимизации основного состояния иона инертного газа может быть использован многоконфигурационный базис вида (np^5+$np^3(n+1)$s^2+$np^3(n+1)$p^2+$np^3(n+1)$d^2). В расчетах непрерывного спектра тогда можно использовать волновую функцию конфигурации $(np^4 L_f + \varepsilon l)\,^2L$ с замороженными из предыдущего расчета электронными орбиталями дискретных состояний. Расчет дипольного матричного элемента между состояниями континуума (9) требует особого внимания. Оригинальным способом такого расчета может стать использование численных волновых функций до выхода на кулоновскую асимптотику в сочетании со свободным от расходимостей методом, предложенным в [12] для асимптотической части.

Выводы

В работе предложен метод теоретического описания нерезонансной ионизации выстроенного иона в приложении к ионам инертных газов. Это процесс является важной составной частью в исследованиях последовательной кратной ионизации атомов малым числом фотонов.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 09-02-00516.

Литература

1. S. Fritzsche, A.N. Grum-Grzhimailo, E.V. Gryzlova and N.M. Kabachnik// Angular distributions and angular correlations in sequential two-photon double ionization of atoms, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **41,** 165601 (2008).
2. S. Fritzsche, A.N. Grum-Grzhimailo**,** E.V. Gryzlova and N.M. Kabachnik// Sequential two photon double ionization of Kr atoms, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **42**, 145602 (2009).
3. Е.В. Грызлова, А.Н. Грум-Гржимайло, Н.М. Кабачник, S. Fritzsche// Угловые распределения электронов в последовательной двойной двухфотонной ионизации атомов излучением лазера на свободных электронах, *Вестник Ужгородского университета*, серия «физика», **24**, стр. 73-77 (2009).
4. A.S. Kheifets// Sequential two-photon double ionization of noble gas atoms, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.,* **40**, F313 (2007).
5. A.S. Kheifets// Photoelectron angular correlation pattern in sequential two-photon double ionization of neon, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.,* **42,** 134016 (2009).
6. M. Braune et al.// XXV Int. Conf. on Photonic Electronic and Atomic Collisions (Freiburg, Germany, 2007), Abstracts, p. Fr034.
7. M. Kurka et al.// XI Int. Conf. on Multiphoton Processes (Heidelberg, Germany, 2008), Abstracts, p. Fr23.
8. M. Kurka, A. Rudenko, L. Foucar, K. U Kuhnel, Y. H Jiang, Th. Ergler, T. Havermeier, M. Smolarski, S. Schossler, K. Cole, M. Schoffler, R. Dorner, M. Gensch, S. Dusterer, R. Treusch, S. Fritzsche, A.N. Grum-Grzhimailo, E.V. Gryzlova, N. M Kabachnik, C.D. Schroter, R. Moshammer and J. Ullrich//Two-photon double ionization of Ne by free-electron laser radiation: a kinematically complete experiment, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **42**, 141002, (2009).
9. H. Fukuzawa, E.V. Gryzlova, K. Motomura, A. Yamada, K. Ueda, A.N. Grum-Grzhimailo, S.I. Strakhova, K. Nagaya, A. Sugishima, Y. Mizoguchi, H. Iwayama, M. Yao, N. Saito, P. Piseri, T. Mazza, M. Devetta, M. Coreno, M. Nagasono, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, T. Togashi and Y. Senba// Photoelectron spectroscopy of sequential three-photon double ionization of Ar irradiated by EUV free-electron laser pulses, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.,* **43,** 111001, (2010).
10. Balashov V.V., Grum-Grzhimailo A. N., Kabachnik N. M. // Polarization and Correlation Phenomena in Atomic Collisions. A Practical Theory Course, N.Y., (2000).
11. Froese Fischer C., Brage T. and Jönsson P.// Computational Atomic Structure. An MCHF Approach, Bristol: IOP Publishing 279 p. (1997).
12. van Enky S.J., Zhangy J. and Lambropoulos P.// On the free–free dipole moment, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **30**, L17 (1997).