

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
ИМЕНИ М. В. ЛОМОНОСОВА

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ
ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ ИМЕНИ Д. В. СКОБЕЛЬЦЫНА

На правах рукописи

Попова Мария Михайловна

**Когерентный контроль при ионизации атомов
электромагнитными полями кратных частот**

Специальность:

1.3.6. Оптика

Диссертация на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
кандидат физико-математических наук
Грызлова Елена Владимировна

МОСКВА — 2024

Оглавление

	Стр.
Список сокращений и условных обозначений	4
Введение	6
Глава 1. Современное состояние исследований в области полихроматической ионизации	16
1.1 Когерентный контроль	17
1.2 Аттосекундная метрология	19
Глава 2. Методы	22
2.1 Формализм амплитуд перехода	22
2.1.1 Электромагнитное поле	22
2.1.2 Решение скоростных уравнений (PCY)	23
2.1.3 Нестационарная теория возмущений (ТВ)	25
2.1.4 Стационарная теория возмущений	26
2.2 Формализм статистических тензоров	27
2.2.1 Описание системы в терминах матрицы плотности	27
2.2.2 Статистический тензор электрона	29
2.2.3 Статистический тензор фотона (системы фотонов)	29
2.2.4 Построение наблюдаемых величин	31
Глава 3. Спектроскопия	36
3.1 MCHF	36
3.2 <i>R</i> -матрица	41
3.3 Метод устранения расходимости	47
3.4 Метод устойчивой вариации	50
Глава 4. Результаты	54
4.1 Когерентный контроль	54
4.1.1 Общие свойства угловых распределений фотоэлектронов при бихроматической ионизации	59
4.1.2 Когерентный контроль в области низших возбужденных состояний неона: расчеты и сравнение с экспериментом	65

	Стр.
4.1.3 Поляризация спина электрона при бихроматической ионизации	73
4.1.4 Одноэлектронное приближение в задаче когерентного контроля	81
4.2 Аттосекундная метрология	86
Заключение	94
Публикации автора по теме диссертации	96
Список литературы	102

Список сокращений и условных обозначений

ω	Частота света
τ	Задержка импульса
ϕ, ϕ_n	Относительная фаза/ы
e_n	Вектор поляризации электромагнитного излучения
λ	Спиральность фотона
ε	Энергия электрона
l	Орбитальный момент электрона
J, M	Полный момент системы и его проекция
L	Орбитальный момент системы
S	Спин системы
$P_k(\cos \vartheta)$	Полиномы Лежандра
$Y_{kq}(\vartheta, \varphi)$	Сферические Y-функции
\hat{a}	$\sqrt{2a + 1}$
$(a\alpha, b\beta c\gamma)$	Коэффициент Клебша–Гордана
$\begin{Bmatrix} a & b & c \\ d & e & f \end{Bmatrix}$	6j-символ Вигнера
$\begin{Bmatrix} a & b & c \\ d & e & f \\ g & h & i \end{Bmatrix}$	9j-символ Вигнера
$\langle f \rho f' \rangle$	Матрица плотности
$\rho_{ff'}$	Статистический тензор системы
$\varepsilon_{ff'}$	Статистический тензор детектора
$W(\vartheta, \varphi)$	Угловое распределение фотоэлектронов
$P_{x,y,z}$	Компоненты поляризации спина электрона
$C(\vartheta, \varphi)$	Степень когерентного контроля
β_k	Параметры угловой анизотропии
$a_f^{(n)}$	Амплитуда перехода в n-фотонном процессе
$A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f (n)}$	Приведенная амплитуда перехода в n-фотонном процессе

<i>LS</i> -схема	Схема связи, в которой орбитальный момент иона сначала связывается с орбитальным моментом электрона, а спин иона — со спином электрона, который затем образуют полный момент системы
<i>jK</i> -схема	Схема связи, в которой полный момент иона сначала связывается с орбитальным моментом электрона, а затем — в полный момент системы со спином фотоэлектрона
<i>JJ</i> -схема	Схема связи, в которой орбитальный момент и спин электрона сначала связывается в его полный момент, а орбитальный момент и спин иона — в полный момент иона, и, наконец, полный момент иона и электрона связывается в полный момент системы
ТВ	Нестационарная теория возмущений
PCU	Метод, основанный на решении скоростных уравнений
TDSE	Метод, основанный на численном решении уравнения Шредингера
“ $\omega + 2\omega$ ”	Схема бихроматической ионизации основной и второй гармоникой
“ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ”	Схема RABBITT
ВУФ	Электромагнитное излучение в диапазоне вакуумного ультрафиолета (200–10 нм)
FWHM	Full width half maximum, ширина на половине высоты
ЛСЭ	Лазер на свободных электронах
PAD	Photoelectron angular distribution, угловое распределение фотоэлектронов
RABBITT	Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions, метод в аттосекундной спектроскопии

Введение

Актуальность темы

Изучение динамики малых квантовых систем: атомов и/или небольших молекул, — в сверхбыстром масштабе активно развивается в связи с появлением интенсивных ($10^{11} - 10^{13}$ Вт/см²) источников когерентного излучения в вакуумном ультрафиолетовом (ВУФ) и рентгеновском диапазонах (порядка 10–20 эВ), как ультракоротких, так и с импульсами большой длительности (с FWHM от нескольких до сотни фемтосекунд). Существующие источники можно разделить на два типа: это лазеры на свободных электронах (ЛСЭ или FEL, free electron laser) со схемой затравки (seeding) [1] и установки, основанные на генерации гармоник высокого порядка (ГГВП или HHG, high harmonic generation) [2; 3]. Так как энергии фотонов достаточно для ионизации валентных оболочек атомов, доминирующим процессом является фотоэмиссия. Нередко в экспериментах с такими источниками на систему действуют поля, представляющее собой сумму нескольких кратных частот.

Отдельной задачей является исследование возможности управления динамикой протекающих при этом процессов с помощью независимо регулируемых *контролирующих параметров*. Оба направления: изучение динамики и управление ею — предполагают существенную нелинейность наблюдаемых явлений и с теоретической точки зрения представляют единую задачу, так как описание взаимодействия автоматически означает нахождение таких параметров, и поэтому эти направления нередко объединяют в единой концепции *когерентного контроля и мониторинга*. Когерентный контроль является мощным инструментом для демонстрации фундаментальных принципов квантовой механики и используется в атомной и молекулярной физике [A3; 4–13], физике твердого тела [14], а также химии и биологии [15]. Об эффективности его осуществления можно судить, используя понятие *степени когерентного контроля*, которое может быть сформулировано как наибольшее относительное изменение той или иной наблюдаемой при вариации контролирующих параметров.

Диссертация посвящена решению общей задачи об однократной ионизации атома A когерентным многочастотным электромагнитным полем “ $\omega + m\omega + n\omega +$

...”

$$A + \left\{ \begin{array}{c} \hbar\omega + \dots + \hbar\omega \\ \hbar(m\omega) + \dots + \hbar\omega \\ \hbar(n\omega) \end{array} \right\} \rightarrow A^+ + e^- .$$

в рамках нестационарной теории возмущений (ТВ) в дипольном приближении и исследованию чувствительности дифференциальных и интегральных фотоэлектронных спектров к изменению относительных фаз и интенсивностей спектральных компонент импульса излучения.

Простейшая реализация многочастотной ионизации — это ионизация бихроматическим полем, состоящим из двух компонент: основной гармоники частоты ω и второй гармоники частоты 2ω (в дальнейшем обозначаемая как схема “ $\omega + 2\omega$ ”). В такой системе контролируемыми параметрами являются фазы, интенсивности и поляризации гармоник. Зависимость от относительной фазы гармоник ϕ — основного контролирующего параметра — вследствие сохранения четности проявляется только в дифференциальных по углу характеристиках фотоэлектронного спектра. Поэтому степень когерентного контроля $C(\vartheta, \varphi)$ можно ввести либо как максимальную степень наблюдаемой асимметрии в угловых распределениях фотоэлектронов $W(\vartheta, \varphi)$ (PAD, photoelectron angular distribution) [A1; 16; 17], либо как наибольшее относительное изменение величины фотоэлектронного сигнала под фиксированным углом при изменении относительной фазы [A6]:

$$C(\vartheta, \varphi) = \left| \frac{W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{\max}} - W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{\max}+\pi}}{W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{\max}} + W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{\max}+\pi}} \right| \cdot 100\% .$$

Аналогично степени когерентного контроля для фотоэлектронного сигнала можно ввести степень когерентного контроля для величины поляризации спина фотоэлектронов. В оптическом диапазоне подобные эксперименты уже давно известны [18; 19], но в ВУФ-диапазоне впервые осуществить когерентный контроль по этой схеме удалось на ЛСЭ FERMI в 2016 году [9]. В силу того, что процесс является базовым для изучения интерференционных эффектов в полихроматической ионизации, и того, что эксперименты в этом направлении активно продолжаются [A3; 7; 11; 20], в диссертации выполнено доскональное исследование наиболее важных его аспектов и проведен анализ возможностей когерентного контроля над угловыми распределениями и поляризацией спина фотоэлектронов. Как сам сформулированный подход, так и непосредственно полученные результаты, во-первых, будут полезны для анализа проведенных и подготовки новых экспериментов на ЛСЭ, а во-вторых, определяют направления дальнейшего

теоретического изучения поведения атомов и молекул в интенсивных полихроматических полях. Актуальность проведенного исследования дополнительно подтверждается возросшим в последнее время интересом к задаче “ $\omega + 2\omega$ ” со стороны теоретиков [21—25].

В настоящий момент лишь ЛСЭ FERMI обладает требуемым временем пространственной и временной когерентности, поэтому наиболее широко используемыми в экспериментах, связанных с изучением динамики электронов на (суб)-фемтосекундной шкале, остаются ГГВП-источники. Само появление *аттосекундной метрологии* связано с созданием источников, основанных на генерации гармоник. Один из основных методов аттосекундной спектроскопии — это RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions) [4—6; 8], основанный на применении последовательности ВУФ импульсов для ионизации мишени совместно с затравочным ИК или оптическим импульсом ω [26]. Варьирование времени задержки ИК-импульса относительно ВУФ-компонент τ , являющегося в данном случае контролирующим параметром, приводит к осцилляции интенсивности фотоэлектронных спектров $W(\vartheta, \varphi)$:

$$dW(\vartheta, \varphi) \sim \cos(2\omega\tau - \phi).$$

Для достаточно длинных импульсов, содержащих 10 оптических циклов и более, время задержки эквивалентно изменению фазы ИК-поля ($\omega\tau = \phi_{\text{ir}}$), и эти осцилляции могут быть использованы для извлечения информации об относительных фазах амплитуд переходов. Во втором порядке теории возмущений эти осцилляции могут быть объяснены интерференцией между переходами, вызванными поглощением и испусканием инфракрасного фотона, приводящими к появлению фотоэлектронов с одной энергией. Для описания и интерпретации RABBITT использовались подходы, основанные на различных вариациях теории возмущений [27—29], приближении сильного поля [13], решении нестационарного уравнения Шредингера [30—34], и наконец, нестационарной версии R-матрицы [35]. Два последних метода, несомненно, эффективны для моделирования, но практически не позволяют анализировать вклады различных процессов, то есть являются, по сути, разновидностью численного эксперимента. В развитом автором настоящей диссертации подходе RABBITT-спектроскопия может быть описана как несколько более сложный по сравнению с “ $\omega + 2\omega$ ” процесс “ $\omega + n\omega + (n+2)\omega + \dots, n \in \text{odd}$ ” и является еще одним частным случаем общей задачи. Подход позволяет до

проведения численных расчетов предсказывать основные особенности фотоэлектронных спектров и поэтому может быть использован для валидации других методов. Например, он был использован для проверки метода, основанного на решении скоростных уравнений (PCU), который сочетает в себе преимущества аналитических и численных подходов, и, насколько известно, ранее для решения этой задачи не применялся.

Цель и задачи работы

Целью данной работы является исследование возможностей когерентного контроля над ионизацией атомов электромагнитными полями кратных частот и ее мониторинга.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи:

1. Создать математическую модель на основе алгебры углового момента [36] и метода статистических тензоров [37] для описания процесса взаимодействия атома с электромагнитными полями кратных частот в рамках нестационарной теории возмущений.
2. Разработать программное обеспечение для расчетов по этой модели на языке MATLAB.
3. Создать спектроскопические модели, адекватные для описания интересующих эффектов с помощью программных пакетов MCHF [38] и BSR [39].
4. Описать в рамках созданной модели процесс “ $\omega + 2\omega$ ” бихроматической ионизаций атомов и, пользуясь данными расчетов, исследовать возможность осуществления когерентного контроля над ним.
5. Описать в рамках созданной модели процесс “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ”, исследовать границы применимости сделанных приближений и возможности определения относительных фаз гармоник.

Объект и предмет исследования

Объектом исследования являются атомы инертных газов неона и гелия, взаимодействующих с электромагнитным полем двух различных сочетаний частот: “ $\omega + 2\omega$ ” для описания общих особенностей когерентного контроля и “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ” для применения развитого подхода к описанию задач аттосекундной интерферометрии. Предметом исследования являются возникающие в результате взаимодействия спектры и угловые распределения фотоэлектронов и их чувствительность к структуре поля.

Методология и методы исследования

Теоретическая модель была получена в рамках нестационарной теории возмущений в дипольном приближении на основе алгебры углового момента [36] и метода статистических тензоров [37]. Были выведены выражения для статистических тензоров электромагнитного поля и электрона после акта ионизации в предположении, что остаточный ион не детектируется, для различных схем связи угловых моментов: LS , LSJ и jK , а также в одноэлектронном приближении. На основе этих выражений получены формулы, позволяющие сконструировать различные наблюдаемые в рассматриваемых процессах: спектры фотоэлектронов, их угловые распределения и поляризацию спина, — в виде, приспособленном для численных расчетов на современных компьютерах. Численные расчеты проводились с помощью программного обеспечения, написанного на языке программирования MATLAB. Спектроскопические данные, необходимые в качестве входных параметров, были взяты из базы данных NIST [40] и/или получены с помощью программных пакетов MCHF [38], RADIAL [41] и BSR [39], в том числе с использованием вычислительных ресурсов ЦКП “Центр данных ДВО РАН”. При нахождении амплитуд переходов было сделано приближение, что они факторизуются на часть, зависящую от свойств мишени, и часть, зависящую от характеристик электромагнитного поля.

Экспериментальные данные в работах, опубликованных в соавторе с диссертантом, были получены на лазере на свободных электронах FERMI и установках генерации гармоник высокого порядка в лаборатории аттосекундой спектроскопии в Фрайбургском университете имени Альберта и Людвига.

Научная новизна

Научная новизна связана как с применением оригинального подхода статистических тензоров, так и с уникальностью выбранных мишеней.

1. Был создан оригинальный аппарат для работы с электромагнитными полями кратных частот [A6]. Он позволяет делать аналитические выводы о некоторых ключевых особенностях процесса до выполнения численного расчета.
2. Впервые для “ $\omega + 2\omega$ ”-процесса были изучены геометрии, в которых вектора напряженностей полей не лежат в одной плоскости, в частности, геометрии, создаваемые совместным действием полей линейной и круговой поляризации.

3. Впервые была описана поляризация спина фотоэлектронов в “ $\omega + 2\omega$ ”-процессе в инертных газах [A2] и объяснен механизм ее появления. Ранее считалось, что в неоне в силу слабого спин-орбитального расщепления получить высокую степень поляризации не представляется возможным.
4. Впервые для количественного описания RABBITT-спектроскопии вблизи порога (задача “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ”) [A8] был включен в рассмотрение третий порядок теории возмущений и учтены дискретные состояния в приближении jK -связи. Показана стабильность процедуры многократного интегрирования по состояниям континуума.
5. Впервые полученные теоретические результаты были использованы для описания экспериментальных данных на сложной мишени, которую из себя представляет атом неона [A3; A5].

Практическая значимость

Помимо фундаментального теоретического интереса к изучению особенностей когерентного контроля как проявления интерференции — ключевого квантомеханического феномена, — методы, развитые в диссертации, позволят решать и некоторые практические задачи. В частности, когерентный контроль в RABBITT-спектроскопии позволяет проводить диагностику пучка на ЛСЭ [13], а в экспериментах с бихроматическим полем наподобие “ $\omega + 2\omega$ ” — оценивать характеристики излучения, такие как интенсивность и степень когерентности гармоник, и получать информацию об относительных фазах различных парциальных волн [A5; 11], а при подходящих условиях проводить и *полные эксперименты* [A23].

Положения, выносимые на защиту:

Для бихроматической ионизации полем двух частот “ $\omega + 2\omega$ ” в ВУФ-диапазоне:

1. Обнаружены две выделенные геометрии: (а) обе компоненты обладают круговой поляризацией в одной плоскости и (б) одна поляризованная циркулярно, а вторая линейно в перпендикулярном направлении, — для которых симметрия приводит к вырождению понятия фазы, и когерентный контроль сводится к вращению углового распределения и поляризации спина.

2. Эффективность когерентного контроля над угловыми распределениями фотоэлектронов максимальная для линейно и циркулярно поляризованных полей и при определенных условиях достигает 100%.
3. Степень спиновой поляризации в дифференциальных по углу спектрах при энергиях основной гармоники, вызывающей резонансные переходы в расщепленные по полному моменту атомные состояния, может достигать 80%.
4. За счет интерференции между одно- и двухфотонной ионизацией возможны как изменение абсолютной величины вектора поляризации, так и его переориентация вплоть до появления новых компонент.
5. Степень когерентного контроля над абсолютной величиной вектора спиновой поляризации может превышать 50%.

Для полихроматической ионизации полем нескольких частот “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ” при интенсивности ИК-поля до $\sim 10^{12}$ Вт/см²:

6. Теория возмущений применима для описания спектров и угловых распределений фотоэмиссии вблизи порога ионизации.
7. В низкоэнергетической области спектра, в которой энергия фотоэлектрона по порядку величины равна энергии ИК-фотона $\varepsilon_e \approx \omega_{\text{ir}}$, величина осциллирующей вероятности фотоэмиссии от фазы ИК-поля увеличивается с ростом энергии.
8. Зависимость параметров угловой анизотропии от фазы ИК-поля является периодической функцией, и амплитуда ее изменений в первой боковой линии у порога уменьшается за счет влияния переходов через дискретные состояния.

Достоверность

Достоверность полученных результатов обеспечивается использованием классических, апробированных многолетней практикой методов квантовой физики и подтверждается согласием с экспериментальными данными при максимальной интенсивности ВУФ-полей порядка 10^{13} Вт/см²: [A3; A5; A14] (для процесса “ $\omega + 2\omega$ ”), и интенсивности ИК-поля 10^{12} Вт/см² [A25; A28] (для “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ”). Эти сочетания частот и интенсивностей находятся в пределах области применимости дипольного приближения, т.н. “Дипольного оазиса” [42], а параметр Келдыша [43] $\gamma \gg 1$, что позволяет считать режим многофотонным и использовать теорию возмущений. Результаты находятся в согласии с результатами, полученными другими авторами методами решения нестационарного уравнения

Шредингера, вариационным методом ([A1; 16] для процесса “ $\omega + 2\omega$ ”), а также методом нестационарной R-матрицы и решения системы скоростных уравнений [A28] (для “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ”).

Апробация работы

Основные результаты работы докладывались на множестве международных конференций, из которых стоит отметить International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC) [A22; A25], International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (COPIAMC) [A14; A17; A18], и International Symposium on Intense Short Wavelength Processes in Atoms and Molecules (ISWAMP) [A16].

Также автор неоднократно докладывал о своих результатах на научном семинаре ОЭПВАЯ, конференции “Концентрированные потоки энергии в космической технике, электронике, экологии и медицине” [A13; A26] и на “Ломоносовских чтениях” [A24], проводимых в НИИЯФ МГУ им. Д. В. Скобельцына, и международной научной конференция студентов, аспирантов и молодых учёных “Ломоносов” [A21; A23; A27], проводимой в МГУ им. М. В. Ломоносова.

Публикации

Основные результаты диссертации изложены в 31 печатной работе, в том числе в 10 статьях в рецензируемых научных журналах, удовлетворяющих Положению о присуждении учёных степеней в МГУ имени М.В. Ломоносова, 1 статье в рецензируемом научном журнале из перечня ВАК РФ и 20 публикациях в сборниках тезисов конференций. Список работ автора приведен в конце диссертации перед списком литературы.

Личный вклад

Все представленные в диссертационной работе результаты получены автором лично либо при его определяющем участии. Диссертант лично создал математическую модель на основе алгебры углового момента [36] и метода статистических тензоров [37] и разработал необходимое программное обеспечение на языке MATLAB для всех расчетов в теории возмущений, представленных в настоящей диссертации. Автор лично создал спектроскопические модели в программных пакетах MCHF [38] для расчетов в нестационарной теории возмущений, RADIAL [41] для расчетов в стационарной теории возмущений с помощью вариационного метода [44] и принимал активное участие в спектроскопических расчетах в пакете BSR [39] для использования в нестационарной теории возмуще-

ний и решении скоростных уравнений. Вклад автора в исследования был высоко оценен соавторами, что подтверждается тем, что из 9 чисто теоретических публикаций в рецензируемых научных журналах она является первым автором в 5 публикациях и вторым — в 4.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и библиографии. Общий объем работы составляет 120 страниц, включая 27 рисунков и 7 таблиц. Список литературы состоит из 147 источников.

Краткое содержание диссертации

Во введении обосновывается актуальность исследований, проводимых в рамках дан-ной диссертационной работы, формулируется цель, описывается объект исследования, ставятся задачи работы, излагается научная новизна и практическая значимость представляемой работы. Отмечается личный вклад автора. Приводятся основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе приводится обзор современного состояния исследований, относящихся к аттосекундной интерферометрии. Основное внимание уделено двум направлениям, кото-рым посвящена диссертация: когерентному контролю в бихроматической ионизации (“ $\omega + 2\omega$ ”) и методу RABBITT аттосекундной метрологии (“ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ”).

Во второй главе описываются используемые методы. Описаны необходимые приближения и показан переход от решения нестационарного уравнения Шредингера, в котором взаимодействие с электромагнитным полем рассматривается в качестве возмущения, к решению системы скоростных уравнений и далее к нестационарной и стационарной теории возмущений. Обсуждаются различия между двумя последними подходами. Далее делается переход к формализму статистических тензоров углового момента, обладающим рядом преимуществ по сравнению с формализмом амплитуд перехода: он позволяет (а) исключить зависимость от проекций моментов и (б) факторизовать динамическую (спектроскопическую) и геометрическую части. Обсуждены различные схемы связи в многоэлектронном атоме и для них записаны выражения компонент статистического тензора спина фотоэлектрона, из которых можно получить наблюдаемые: спектр, угловое распределение и спиновую поляризацию фотоэлектронов.

В третьей главе представлены используемые спектроскопические данные. Для однофотонных дипольных переходов между различными состояниями дискретного спектра и состояниями дискретного спектра и состояниями континуума

были произведены расчеты в программных пакетах MCHF и BSR в приближениях jK - и LS -связи, исследована сходимость методов при увеличении числа конфигураций и термов. Для нахождения дипольных матричных элементов перехода между состояниями континуума использовался метод устранения расходимости. Двухфотонные амплитуды переходов в одноэлектронном приближении были получены методом устойчивой вариации. Результаты расчетов сравниваются с имеющимися экспериментальными данными.

В четвертой главе изложены результаты исследований, посвященных двум задачам аттосекундной метрологии: когерентного контроля в процессе “ $\omega + 2\omega$ ” и RABBITT-спектроскопии при участии дискретных состояний. Обе задачи были решены в рамках единого подхода, так как являются, по сути, частными случаями модели, описанной во второй главе. Для задачи когерентного контроля в процессе “ $\omega + 2\omega$ ” рассмотрены различные геометрии полей, и для них получены угловые и спиновые распределения фотоэлектронов. Для некоторых геометрий исследована зависимость эффективности когерентного контроля над ионизацией в зависимости от длины импульса, относительной напряженности, разности фаз и энергии гармоник. Для полей линейной поляризации результаты моделирования были сопоставлены с экспериментальными данными, полученными на ЛСЭ FERMI для максимального значения интегральной по полусфере асимметрии. Исследовано применение схема “ $\omega + 2\omega$ ” для задач аттосекундной метрологии, и результаты моделирования также были использованы для описания экспериментальных данных. Для задачи RABBITT-спектроскопии было развито два подхода: основанный на нестационарной теории возмущений (ТВ) и на решении скоростных уравнений (PCU). Были рассчитаны спектры и угловые распределения фотоэлектронов, прослежена зависимость величины динамического штарковского сдвига от интенсивности поля, и определены вклады отдельных процессов с поглощением/испусканием различного числа фотонов.

В Заключение сформулированы основные результаты и выводы диссертационной работы.

Глава 1. Современное состояние исследований в области полихроматической ионизации

Практически все методы описания взаимодействия атомарных мишеней с электромагнитным полем основаны на решении нестационарного уравнения Шредингера или Дирака. Первым ключевым отличием является базис, на который проецируется решение: это может быть атомный базис, когда считается, что собственные энергии и функции системы не меняются электромагнитным полем, и базис «одетых» состояний. Для полей с высокой интенсивностью применяют метод Флоке [45—47] и теорию Келдыша-Файзала-Райса (KFR) [48—52], являющуюся развитием описания ионизации постоянным полем в терминах квантового туннелирования [43; 53; 54]. При численном решении нестационарного уравнения Шредингера используют как базис модельного потенциала, так и численные (например, состояния R -матрицы) [55; 56]. Следующим ключевым моментом является разложение электромагнитного поля в ряд по мультиполям [37] и ограничение на число членов этого ряда.

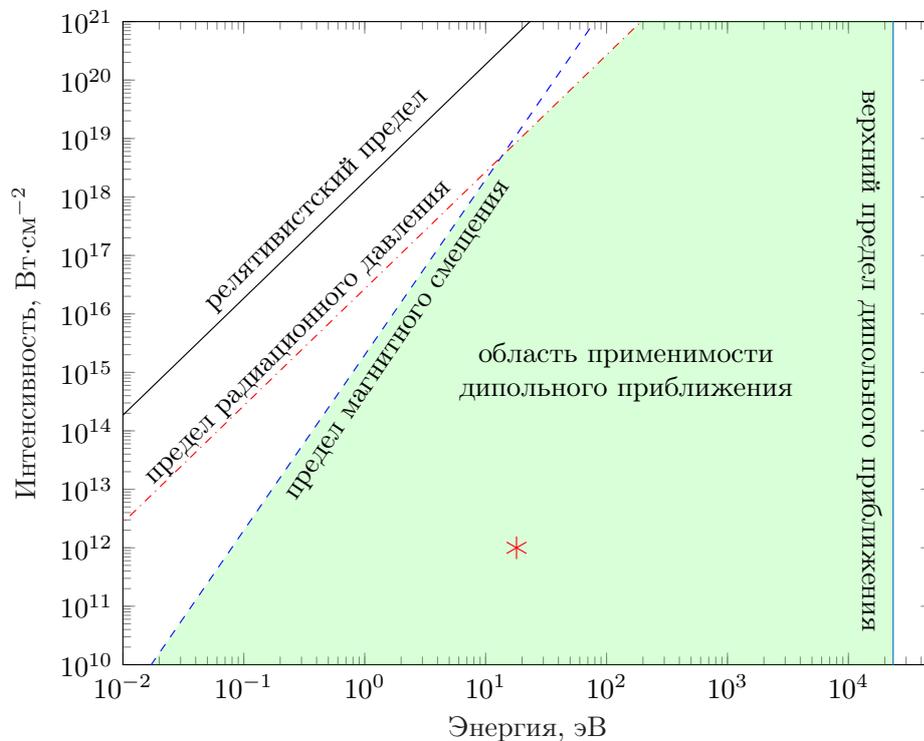


Рисунок 1.1 — Границы применимости дипольного приближения (адаптировано из [42]). Звездочка * указывает сочетание интенсивности, характерной для современных ЛСЭ, и энергии фотонов, соответствующие исследуемым процессам.

В атомной физике чаще всего используется электрическое дипольное приближение и, даже при учете высших мультиполей, крайне редко рассматриваются вклады выше, чем электрический квадрупольный и магнитный дипольный. Наконец, третьим ключевым отличием является рассмотрение электромагнитного поля (не обязательно в дипольном приближении) как возмущения и применение нестационарной теории возмущений [57; 58].

Сочетания частот и интенсивностей, рассматриваемые в рамках настоящей диссертации, находятся в пределах области применимости дипольного приближения, т.н. “Дипольного оазиса” [42] (см. рис. 1.1), а параметр Келдыша $\gamma \ll 1$, что позволяет считать режим многофотонным и использовать теорию возмущений.

1.1 Когерентный контроль

Впервые на возможность осуществления когерентного контроля над фотоионизацией атомов и молекул с помощью полихроматического электромагнитного поля было указано в работах [59; 60]. Отличие этого метода от фазового контроля с помощью одночастотного поля [15; 61] состоит в том, что для осуществления последнего используется последовательность импульсов, а управление системой осуществляется за счет осцилляций Раби между заселенностями начального и конечного состояний. Когерентный контроль полихроматическим полем осуществляется за счет создания нескольких различных путей перехода в одно конечное состояние и управления интерференцией между ними, а импульсы различных частот не разделены по времени.

Вскоре были проведены первые эксперименты по осуществлению когерентного контроля над атомной ионизацией бихроматическим излучением “ $\omega + 3\omega$ ” [18] и “ $\omega + 2\omega$ ” [19; 62; 63] в оптическом диапазоне в газовой и твердой средах. Для атомов отличие схем “ $\omega + 3\omega$ ” и “ $\omega + 2\omega$ ” состоит в том, что в первой интерференция между двумя путями ионизации вносит вклад в интегральное сечение ионизации, а во второй проявляется в нарушении характерных для монохроматической ионизации групп симметрии угловых распределений.

Изучение процесса “ $\omega + 2\omega$ ” в различных геометриях, помимо исключительно теоретического, представляет так же и практический интерес. Например, подобные поля оптического/инфракрасного диапазона могут быть использованы

для генерации гармоник высокого порядка (high harmonic generation, HHG) [64; 65]. Так, использование линейно поляризованных в одном направлении гармоник уже в течение долгого времени используется для стабильной генерации гармоник [4; 26]; использование линейно поляризованных перпендикулярно друг другу гармоник позволяет получать эллиптически-поляризованное излучение [66—68], а использование циркулярно поляризованных гармоник инфракрасного лазера противоположных спиральностей позволяет получать гармоники высокого порядка произвольной поляризации [64; 69; 70]. Сгенерированное с помощью процесса “ $\omega + 2\omega$ ” излучение примечательно еще и тем, что оно представляет из себя последовательность ультракоротких импульсов длительностью вплоть до нескольких сотен аттосекунд [3; 4], что позволило исследовать динамику электронов в атомах, молекулах и твердых телах в естественной временной шкале [10], то есть привело к возникновению *аттосекундной метрологии* (см. раздел 1.2). Схема “ $\omega + 2\omega$ ” в диапазоне вакуумного ультрафиолета позволяет непосредственно изучать поведение электронов в процессе многофотонной ионизации [A3; 71; 72], а также является эффективным методом когерентного контроля над ионизацией в атомах [9; 11; 16; 73], молекулах [17; 74] и твердых телах. Еще одна область применения схемы “ $\omega + 2\omega$ ” — генерация, напротив, терагерцового излучения инфракрасными/субинфракрасными полями круговой поляризации [75—77].

Развитие теории процесса “ $\omega + 2\omega$ ” в оптическом диапазоне началось с работ [62; 78], описывающих его в рамках теории возмущений для линейно поляризованных в одном направлении гармоник. Большая часть современной теории продолжает использовать методы сильного поля для разнообразных геометрий: линейно поляризованных в одном [79] и перпендикулярных направлениях [72; 80; 81], полей круговой поляризации противоположных спиральностей [82], в том числе в исследованиях спиновой поляризации [83; 84], а так же были сделаны обобщения на поля произвольной поляризации [85]. Такое внимание к процессу “ $\omega + 2\omega$ ” в сильном поле связано с увеличением мощности доступных лазерных источников, и множеству практических применений, о которых было упомянуто выше, хотя продолжают исследования и в рамках теории возмущений [86].

В ВУФ диапазоне подобные исследования начались недавно в связи с появлением подходящих источников, а именно лазеров на свободных электронах [1]. В основном, использовалась теория возмущений, как стационарная, так и нестационарная [16; 21; 22; 73], в том числе с учетом релятивистских эффектов [87], и

численное решение уравнения Шредингера (TDSE) [A3; 11; 16; 73; 88], хотя были работы, основанные и на методе численного решения скоростных уравнений [89].

Первые измерения в этом диапазоне были выполнены в работе [9], которые исследовали фотоинозацию Ne под действием линейно поляризованного $\omega + 2\omega$ излучения с частотой несущей гармоники, соответствующей $2p^5(^2P_{3/2})4s[3/2]_1$ возбужденному состоянию неона. Позднее той же группой экспериментаторов были проведены дополнительные измерения в диапазоне энергий, покрывающей широкую резонансную область, образованную близкорасположенными уровнями возбуждения $2p^5(^2P_{3/2})4s[3/2]_1$, $2p^5(^2P_{1/2})4s'[1/2]_1$, $2p^5(^2P_{3/2})3d[1/2]_1$, $2p^5(^2P_{3/2})3d[3/2]_1$ и $2p^5(^2P_{1/2})3d[1/2]_1$ [A5], а также в нерезонансной области [A3]. Так же были получены экспериментальные данные для атома Ne в той же области частот [11].

1.2 Аттосекундная метрология

Изучение динамики малых квантовых систем в сверхбыстром масштабе активно развивается в связи с появлением интенсивных и ультракоротких импульсных источников света в вакуумном ультрафиолетовом (ВУФ) и рентгеновском режимах. Развитие источников излучения, основанных на генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) [2; 3], привело к возникновению аттосекундной метрологии, что позволило исследовать динамику электронов в атомах, молекулах и твердых телах в естественной временной шкале [4; 10; 12; 90; 91]. Прогресс в технике генерации позволяет получать импульсы короче 100 аттосекунд [92–95].

Методы аттосекундной интерферометрии в присутствии одевающего оптического поля, основанные на фотоэмиссии, можно разделить на streaking-спектроскопию [96–100] с использованием единичного импульса с одной центральной частотой, на основе которой получили свое развитие также методы FROG-CRAB [92; 101; 102], SPIDER [103–105] и некоторые другие [106], и RABBITT, в котором используется несколько импульсов близких частот, являющихся ГГВП лазерного поля (*цуг аттосекундных импульсов*) [4–6]. Метод FROG-CRAB так же может использоваться для характеристики последовательности импульсов [107], однако это не является обязательным условием

его применимости. Наиболее современный обзор существующий методов представлен в [108].

Ключевым фактором появления методов стал тот факт, что в настоящее время интенсивности ВУФ-излучения при ГГВП невелики по сравнению с интенсивностями, доступными в оптическом диапазоне, поэтому для большей точности корреляционных измерений и используется порождающее их низкочастотное поле [108]. ВУФ-компонента/ы ионизируют мишень, а присутствие оптического или ИК-поля модифицирует фотоэлектронные спектры, причем степень этой модификации зависит от фазового сдвига между этими полями, которую можно варьировать. Важным является то, что интенсивность лазерного поля при этом не настолько велика, чтобы ионизировать мишень в режиме туннельной ионизации.

Упомянутые методы применяются как для измерения самих аттосекундных импульсов, так и для получения информации об свойствах атомов и молекул. Их сравнительные преимущества и недостатки RABBITT и streaking-спектроскопии обсуждаются в [8].

Недавние успехи в развитии более интенсивных источников ВУФ-излучения, в частности, лазеров на свободных электронах, позволило развить методы аттосекундной метрологии без необходимости использования мощного оптического поля. Они, как правило, основаны на измерении спектров фотоэлектронов при двухфотонной ионизации, как резонансной [A5], так и нерезонансной [A3; 11]. Некоторые из них используют схему “ $\omega + 2\omega$ ”, которая уже обсуждалась в разделе 1.1.

Существуют также попытки объединить принципы, лежащие в основе перечисленных методов и “ $\omega + 2\omega$ ” / “ $\omega + 3\omega$ ” экспериментов [13].

Впервые метод RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions) был предложен в работе [4]. С его помощью были успешно измерены характеристики цуга аттосекундных импульсов от ГГВП и показано, что они имеют постоянную во времени разность фаз с порождающим их полем. После этого появились множество работ, в которых RABBITT-схема применялась для исследования свойств излучения [5], вещества [109] и их взаимодействия [6; 12; 91].

С теоретической точки зрения, для описания и интерпретации RABBITT использовались подходы, основанные на различных вариациях теории возмущений [A8; A9; 27—29], приближении сильного поля [13], решении нестационарного уравнения Шредингера [30—34], и наконец, нестационарной версии R-матрицы

[35]. Два последних метода, несомненно, эффективны для моделирования, но практически не позволяют анализировать вклады различных процессов, то есть являются, по сути, разновидностью численного эксперимента. Недавно при участии диссертанта были проведены расчеты методом численного решения скоростных уравнений [A8; A9].

Глава 2. Методы

В данной главе используются материалы, опубликованные в статьях [A6; A8].

2.1 Формализм амплитуд перехода

В этом параграфе будет дано описание классического электромагнитного поля 2.1.1 и используемых методов определения амплитуд переходов: метод решения скоростных уравнений 2.1.2, и метод нестационарной теории возмущений 2.1.3.

2.1.1 Электромагнитное поле

В рамках настоящей диссертации электромагнитное поле удобно представить в форме суммы n импульсов с различными несущими частотами ω_n :

$$\mathbf{E}(t) = \sum_n \mathbf{e}_n E_n(t) e^{-i(\omega_n t + \phi_n)}, \quad (2.1)$$

где $E_n(t)$ — медленно меняющаяся огибающая n -ного импульса, \mathbf{e}_n — единичный вектор поляризации, а ϕ_n — фаза.

Тогда векторный потенциал поля по определению равен:

$$\mathbf{A}(t) = -c \int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t') dt' = \sum_n \mathbf{e}_n A_n(t) e^{-i(\omega_n t + \phi_n)}. \quad (2.2)$$

Для возможности многократного аналитического интегрирования форму огибающей лучше выбрать в виде квадрата косинуса вместо стандартной гауссовой:

$$E_n(t) = \sum_n E_n \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma^2}\right) \rightarrow \sum_n E_n \cos^2\left(\frac{t}{\sqrt{2}\sigma}\right). \quad (2.3)$$

Для импульса с такой огибающей ширина на половине высоты (full width half maximum, FWHM) равна $\pi\sigma/\sqrt{2}$, а полная длина — в два раза больше. Поведение импульса гауссовой формы и косинуса отличается несущественно (см. рис. 2.1а).

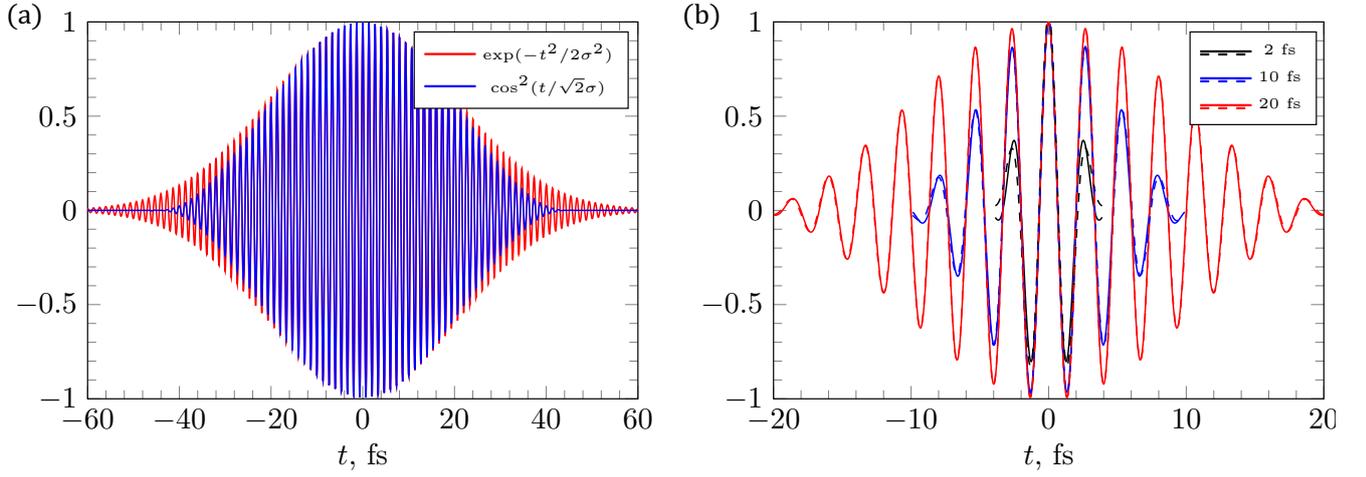


Рисунок 2.1 — (а) Сравнение вектора напряженности электрического поля $\text{Re}\mathbf{E}(t)$ с огибающей $E_n(t)$ гауссовой формы и с огибающей в форме квадрата косинуса; (б) сравнение формы напряженности $\text{Re}E_n(t)$ (сплошные линии) и векторного потенциала $\text{Re}[-iA_n(t)\omega/c]$ (пунктирные) электрического поля при различных FWHM огибающей σ .

Тогда векторный потенциал n -ой компоненты поля будет равен:

$$A_n(t) = -ic \frac{\left(\omega\sigma (\omega\sigma + \sqrt{2}) e^{\frac{i\sqrt{2}t}{\sigma}} + 2(\omega^2\sigma^2 - 2) e^{\frac{i\sqrt{2}t}{\sigma}} + \omega^2\sigma^2 - \sqrt{2}\omega\sigma \right) e^{-i\frac{\sqrt{2}t}{\sigma}}}{4\omega(\omega^2\sigma^2 - 2)}. \quad (2.4)$$

Если импульс достаточно длинный (т.е. больше нескольких циклов поля), то разницы в поведении напряженности и векторного потенциала поля нет (см. рис. 2.1б).

2.1.2 Решение скоростных уравнений (PCY)

Представим полный гамильтониан \hat{H} атома в поле электромагнитного излучения как:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{at}} + \hat{H}_{\text{int}}(t), \quad (2.5)$$

где \hat{H}_{at} — атомный (невозмущенный) гамильтониан:

$$\hat{H}_{\text{at}} = \sum_{i=1}^{N_e} \left(\frac{\mathbf{p}_i^2}{2} - \frac{Z}{r_i} \right) + \sum_{i<j}^{N_e} \frac{1}{r_i - r_j}, \quad (2.6)$$

здесь N_e — число электронов в атоме, \mathbf{r}_i и \mathbf{p}_i — координата и импульс i -го электрона, соответственно. Гамильтониан взаимодействия с электромагнитным полем $\hat{H}_{\text{int}}(t)$ в электрическом дипольном приближении имеет вид [110]:

$$\hat{H}_{\text{int}}^{\text{V}}(t) = \frac{1}{c} \sum_{i=1}^N \mathbf{A}(t) \mathbf{p}_i \equiv \frac{1}{c} \mathbf{A}(t) \mathbf{D}_V, \quad (2.7)$$

$$\hat{H}_{\text{int}}^{\text{L}}(t) = \sum_{i=1}^N \mathbf{r}_i \mathbf{E}(t) \equiv \mathbf{E}(t) \mathbf{D}_L. \quad (2.8)$$

Многочастичная волновая функция электронов в атоме $\Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N t) \equiv \Psi(\mathbf{r}, t)$ подчиняется уравнению Шредингера:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left(\hat{H}_{\text{at}} + \hat{H}_{\text{int}}(t) \right) \Psi(\mathbf{r}, t). \quad (2.9)$$

Если возмущение, создаваемое электромагнитным полем, достаточно мало ($E(t) \ll E_{\text{at}}$), то $\Psi(\mathbf{r}, t)$ представима в виде разложения по собственным функциям $\{\psi_k\}(\mathbf{r})$ невозмущенного гамильтониана \hat{H}_{at} :

$$\hat{H}_{\text{at}} \psi_k(\mathbf{r}) = \varepsilon_k \psi_k(\mathbf{r}), \quad (2.10)$$

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_k a_k(t) \psi_k(\mathbf{r}) e^{-i\varepsilon_k t} + \int d\varepsilon_k a_e(t) \psi_e(\mathbf{r}) e^{-i\varepsilon_k t}. \quad (2.11)$$

Здесь индекс k обозначает полный набор квантовых чисел, необходимых для описания состояний дискретного и непрерывного спектров, в частности, энергию состояния ε_k .

Для коэффициентов разложения $a(t)$ можно получить систему дифференциальных уравнений первого порядка, определяющих эволюцию заселенности атомных состояний (каналов непрерывного спектра):

$$\frac{da_f(t)}{dt} = -i \sum_i e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t} \langle \psi_f | \hat{H}_{\text{int}}(t) | \psi_i \rangle a_i(t), \quad (2.12)$$

где индексы f и i обозначают совокупность квантовых чисел состояний f и i , соответственно.

Раскладывая вектор поляризации электромагнитного поля 2.1 по базису состояний с определенной спиральностью λ и воспользовавшись теоремой Вигнера-Эккарта для отделения проекций M_i, M_f начального и конечного момента системы J_i, J_f , можно записать в форме длины

$$\frac{da_f(t)}{dt} = -i \sum_i E_n(t) e^{-i\omega_n t + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t} \frac{1}{\hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f) \langle \psi_f || \mathbf{D}_L || \psi_i \rangle a_i(t), \quad (2.13)$$

или скорости

$$\frac{da_f(t)}{dt} = -i \sum_i A_n(t) e^{-iw_n t + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t} \frac{1}{\hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f) \langle \psi_f || \mathbf{D}_V || \psi_i \rangle a_i(t). \quad (2.14)$$

Здесь введены стандартные обозначения для коэффициентов Клебша–Гордана и приведенного матричного элемента $\langle \psi_f || \mathbf{D}_V || \psi_i \rangle$, а $\hat{a} = \sqrt{2a + 1}$.

Систему уравнений 2.12 можно решать численно с использованием приведенных матричных элементов, полученных методами, описанными в разделе 3.

2.1.3 Нестационарная теория возмущений (ТВ)

В рамках нестационарной теории возмущений коэффициенты $a_f(t)$ в системе уравнений (2.12) раскладываются в ряд:

$$a_f(t) = a_f^{(0)}(t) + a_f^{(1)}(t) + a_f^{(2)}(t) + \dots, \quad (2.15)$$

где $a_f^{(0)}(t) = \delta_{fi}$ — решение в отсутствие возмущения (i — начальное состояние системы). В первом порядке ТВ в уравнении (2.12) остается только одно слагаемое:

$$\frac{da_f^{(1)}(t)}{dt} = -i e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t} \langle \psi_f | \hat{H}_{\text{int}}(t) | \psi_i \rangle. \quad (2.16)$$

Воспользовавшись теоремой Вигнера–Экарта, можно записать формальное решение уравнения (2.16) в виде:

$$a_f^{(1)} = \frac{1}{\hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f) \langle \psi_f || \mathbf{D}_L || \psi_i \rangle \left(-i \sum_n \int_{-\infty}^{\infty} E_n(t) e^{-iw_n t + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t} dt \right), \quad (2.17)$$

если используются матричные элементы перехода в форме длины, или

$$a_f^{(1)} = \frac{1}{\hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f) \left(-i \langle \psi_f || \mathbf{D}_V || \psi_i \rangle c \sum_n \int_{-\infty}^{\infty} A_n(t) e^{-iw_n t + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t} dt \right), \quad (2.18)$$

если используются матричные элементы в форме скорости. Выражения в форме длины и скорости связаны очевидной заменой напряженности электрического поля на потенциал и $\mathbf{D}_L \rightarrow \mathbf{D}_V$, и ниже для двух- и трехфотонных переходов они

будут приведены только в форме длины. Во втором порядке ТВ решение (2.17) является начальным условием для (2.16), и для $a_f^{(2)}(t)$ при поглощении второго фотона имеем:

$$a_f^{(2)} = \sum_k \frac{1}{\hat{J}_k \hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_k M_k) (J_k M_k, 1\lambda' | J_f M_f) \langle \psi_k || \mathbf{D}_L || \psi_i \rangle \langle \psi_f || \mathbf{D}_L || \psi_k \rangle$$

$$(-i)^2 \sum_{nn'} \int_{-\infty}^{\infty} E_{n'}(t) e^{-i\omega_{n'} t + \Phi_{n'}} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_k) t} \int_{-\infty}^t E_n(t') e^{-i\omega_n t' + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_k - \varepsilon_i) t'} dt' dt. \quad (2.19)$$

В случае вынужденного перехода с излучением фотона $\omega_{n'}$ амплитуда равна:

$$a_f^{(2)} = \sum_k \frac{1}{\hat{J}_k \hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_k M_k) (J_k M_k, 1 - \lambda' | J_f M_f) \langle \psi_k || \mathbf{D}_L || \psi_i \rangle \langle \psi_f || \mathbf{D}_L || \psi_k \rangle$$

$$(-i)^2 \sum_{nn'} \int_{-\infty}^{\infty} E_{n'}(t) e^{i\omega_{n'} t - \Phi_{n'}} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_k) t} \int_{-\infty}^t E_n(t') e^{-i\omega_n t' + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_k - \varepsilon_i) t'} dt' dt. \quad (2.20)$$

Амплитуда в третьем порядке теории возмущений для поглощения фотонов $\omega_{n'}$ и $\omega_{n''}$:

$$a_f^{(3)} = \sum_{kk'} \frac{1}{\hat{J}_k \hat{J}_{k'} \hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_k M_k) (J_k M_k, 1\lambda' | J_{k'} M_{k'}) (J_{k'} M_{k'}, 1\lambda'' | J_f M_f)$$

$$(-i)^3 \langle \psi_k || \mathbf{D}_L || \psi_i \rangle \langle \psi_{k'} || \mathbf{D}_L || \psi_k \rangle \langle \psi_f || \mathbf{D}_L || \psi_{k'} \rangle \sum_{nn'n''} \int_{-\infty}^{\infty} E_n(t) e^{-i\omega_n t + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_{k'}) t}$$

$$\int_{-\infty}^t E_{n'}(t') e^{-i\omega_{n'} t' + \Phi_{n'}} e^{i(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k) t'} \int_{-\infty}^{t'} E_{n''}(t'') e^{-i\omega_{n''} t'' + \Phi_{n''}} e^{i(\varepsilon_k - \varepsilon_i) t''} dt'' dt' dt. \quad (2.21)$$

Изменение выражения 2.21 при вынужденном испускании $\omega_{n'}$ и/или $\omega_{n''}$ делается аналогично 2.20.

2.1.4 Стационарная теория возмущений

Стационарная теория возмущений в настоящей диссертации применяется только для нахождения амплитуд перехода в одноэлектронном приближении во втором порядке теории возмущений при ионизации монохроматическим полем с напряженностью E_0 , поэтому в этом разделе будет рассмотрены только такие амплитуды.

Если импульс бесконечно длинный (в уравнении (2.3) $E_n(t) \rightarrow E_0$), то двойной интеграл в амплитуде второго порядка (2.19) перестает зависеть от времени:

$$\begin{aligned} \sum_{n,n'} \int_{-\infty}^{\infty} E_n(t) e^{-i\omega_n t + \Phi_n} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_n)t} \int_{-\infty}^t E_{n'}(t') e^{-i\omega_{n'} t' + \Phi_{n'}} e^{i(\varepsilon_{n'} - \varepsilon_i)t'} dt' dt \\ \rightarrow E_0^2 \sum_n \frac{1}{\varepsilon_i - \varepsilon_n + \omega + i0} \end{aligned} \quad (2.22)$$

и тогда в одноэлектронном приближении амплитуда второго порядка становится равной

$$\begin{aligned} a_f^{(2)} = N_e E_0^2 \sum_k \frac{1}{\hat{l}_k \hat{l}_f} (l_i m_i, 1\lambda | l_k l_k) (l_k m_k, 1 - \lambda' | l_f m_f) \\ \hat{l}_i \hat{l}_k (l_i 0, 10 | l_k 0) (l_k 0, 10 | l_0) \sum_n \frac{\langle \psi_f | \mathbf{r} | \psi_{kn} \rangle \langle \psi_{kn} | \mathbf{r} | \psi_i \rangle}{\varepsilon_i - \varepsilon_{kn} + \omega + i0}, \end{aligned} \quad (2.23)$$

где N_e — число электронов в рассматриваемой оболочке атома, l_i, l_k и l_f — начальный, промежуточный и конечный орбитальный момент электрона с проекциями m_i, m_k и m_f , при переходе к радиальным интегралам было использовано соотношение $\langle l' || \mathbf{D} || l \rangle = \hat{l}(l_0, 10 | l' 0) \langle l' | \mathbf{r} | l \rangle$ и явно отделена сумма по состояниям с одинаковым значением промежуточного момента l_k , но разными энергиями состояний.

2.2 Формализм статистических тензоров

В параграфе 2.2.1 будет дано описание взаимодействия атома с электромагнитным полем в терминах матрицы плотности, а в последующих будет осуществлен переход к формализму статистических тензоров.

2.2.1 Описание системы в терминах матрицы плотности

Пусть набор собственных векторов $\{\psi_k\}$ и собственных значений $\{\varepsilon_k\}$ невозмущенного гамильтониана известен, в момент времени t_0 система находится в начальном состоянии $\psi_i \in \{\psi_k\}$, а взаимодействие с электрическим полем

$\hat{H}_{\text{int}}(t)$ переводит систему из состояния ψ_i в состояние $\psi_f \in \{\psi_k\}$. За время взаимодействия от начального момента времени t_i до конечного t_f система перейдет в состояние, описываемое матрицей плотности:

$$\langle f | \rho | f' \rangle = |\psi_f\rangle\langle\psi_f | \hat{H}_{\text{int}} | \psi_i\rangle\langle\psi_i | \hat{H}_{\text{int}} | \psi_{f'}\rangle\langle\psi_{f'}|. \quad (2.24)$$

Начальное 'нейтральный атом' ψ_i характеризуется его полным моментом J_i и проекцией M_i , а конечное 'ион+свободный электрон' — полным моментом J_f и проекцией M_f , полным моментом остаточного иона J и проекцией M , импульсом фотоэлектрона p_e и проекцией его спина m_s . В дальнейшем для однозначной идентификации состояний могут потребоваться и другие квантовые числа, например, орбитальный момент электрона l . Отметим, что рассматриваемая нами матрица плотности диагональна только по импульсу фотоэлектрона (и, следовательно, полному моменту остаточного иона).

Если остаточный ион не детектируется, то для нахождения матрицы плотности фотоэлектрона нужно взять след матрицы плотности (2.24) по состояниям $|J_c M_c\rangle$ ионного остова. Матрица плотности электрона, как и любой частицы со спином $\frac{1}{2}$, представляется в следующем виде:

$$\langle \frac{1}{2}m_s | \rho | \frac{1}{2}m'_s \rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}. \quad (2.25)$$

Необходимо подчеркнуть, что и матрица плотности (2.25), и параметры поляризации спина электрона $\mathbf{P} = (P_x, P_y, P_z)$ являются функциями энергии фотоэлектрона и направления электронной эмиссии $\{\vartheta, \varphi\}$. Свертка (2.25) по проекции спина электрона дает угловое распределение $W = W(\vartheta, \varphi)$ — вероятность регистрации электрона в соответствующем направлении.

Построение наблюдаемых из (2.24) может быть довольно громоздким из-за большого числа комбинаций проекций моментов M_i, M_f и др. Удобнее воспользоваться формализмом статистических тензоров [37], с помощью которых можно (а) сразу исключить зависимость от проекций моментов и (б) факторизовать динамическую (спектроскопическую) и геометрическую части.

2.2.2 Статистический тензор электрона

Статистический тензор спина электрона получается из матрицы плотности (2.25) по определению:

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{m_s m'_s} (-1)^{\frac{1}{2} - m'_s} \left(\frac{1}{2} m_s, \frac{1}{2} - m'_s \mid k_s q_s \right) \left(\frac{1}{2} m_s \mid \rho \mid \frac{1}{2} m'_s \right). \quad (2.26)$$

Полезно представить обратное к (2.26) преобразование к угловому распределению и компонентам спина фотоэлектронов в явном виде:

$$W = \sqrt{2} \rho_{00}, \quad (2.27)$$

$$P_z = \rho_{10} / \rho_{00}, \quad (2.28)$$

$$P_x = -(\rho_{11} - \rho_{1-1}) / (\sqrt{2} \rho_{00}), \quad (2.29)$$

$$P_y = -i(\rho_{11} + \rho_{1-1}) / (\sqrt{2} \rho_{00}). \quad (2.30)$$

2.2.3 Статистический тензор фотона (системы фотонов)

Вектор поляризации электрического поля e_γ удобно представить в виде разложения по базису циклических ковариантных ортов $\mathbf{n}_{\pm 1,0}$ [36]:

$$\mathbf{e}_\gamma = \sum_{\lambda} e_\gamma^\lambda \mathbf{n}_\lambda, \quad (2.31)$$

а состояние фотона $|\gamma\rangle$ — по базису соответствующих состояний:

$$|\gamma\rangle = \sum_{\lambda} e_\gamma^\lambda |1\lambda\rangle. \quad (2.32)$$

В системе координат, в которой ось квантования z^0 параллельна импульсу фотона \mathbf{k}_γ (*собственная система фотона*), состояния с $\lambda = \pm 1$ соответствуют фотонам, обладающим спиральностью $h = \frac{(\mathbf{e}_\gamma \mathbf{k}_\gamma)}{e_\gamma k_\gamma} = \pm 1$. Фотоны с $h = 1$ соответствуют классическому правополяризованному электромагнитному полю, а фотоны с $h = -1$ — левополяризованному [37].

Следует отметить связь между используемой в диссертации параметризацией и параметризацией в собственной системе фотона ($|\gamma^0\rangle = e_0^+ \mathbf{n}_+^0 + e_0^- \mathbf{n}_-^0$).

Она определяется соответствующим поворотом системы координат и выражается через D-функции Вигнера: $|\gamma^0\rangle = \sum_{\lambda} e^{\lambda} D_{\lambda^0\lambda}^1(\varphi_{k_{\gamma}}, \vartheta_{k_{\gamma}}, 0) |1\lambda\rangle$ [37]. В собственной системе можно определить степени циркулярной и линейной поляризации $P_c = |e_0^+|^2 - |e_0^-|^2$ и $P_l = \sqrt{1 - P_c^2}$, эллиптичность поля $\varepsilon = \sqrt{(1 - P_l)/(1 + P_l)}$, и спиральность $h = \text{sign}(P_c)$.

Система из двух фотонов, согласно общим правилам алгебры углового момента [36], может быть представлена как:

$$|2\gamma\rangle = \sum_{M_{\gamma}\lambda\lambda'} e_{\gamma}^{\lambda}(e_{\gamma}^{\lambda'}(1\lambda, 1\lambda' | J_{\gamma}M_{\gamma}) + e_{\gamma}^{\lambda'*}(1\lambda, 1 - \lambda' | J_{\gamma}M'_{\gamma}))|1\lambda\rangle|1\lambda'\rangle, \quad (2.33)$$

где J_{γ} , M_{γ} , M'_{γ} — суммарный момент и проекция момента фотонов, первый член суммы отвечает за последовательное поглощение двух фотонов, а второй — за поглощение первого и вынужденное испускание второго фотона. Система для трёх поглощенных фотонов получается следующим образом:

$$|3\gamma\rangle = \sum_{M_{\gamma}m_{\gamma}\lambda\lambda'\lambda''} e_{\gamma}^{\lambda}e_{\gamma}^{\lambda'}e_{\gamma}^{\lambda''}(1\lambda, 1\lambda' | j_{\gamma}m_{\gamma})(j_{\gamma}m_{\gamma}, 1\lambda'' | J_{\gamma}M_{\gamma})|1\lambda\rangle|1\lambda'\rangle|1\lambda''\rangle, \quad (2.34)$$

где j_{γ} , m_{γ} — промежуточный момент и проекция момента двух фотонов, а для описания испускания необходимо провести изменения, аналогичные 2.33.

По аналогии можно построить состояние, описывающее любое количество дипольных фотонов, но в рамках диссертации требуются только одно-, двух- и трехфотонные вектора. Для описания недипольных эффектов единичный момент фотона в 2.32 следуют заменить на момент L соответствующей мультипольности и провести необходимую нормировку [37].

Статистический тензор одного дипольного фотона получается согласно общим правилам [37]:

$$\rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}(1,1) = \sum_{\lambda,\lambda'} (-1)^{1-\lambda'} (1\lambda, 1 - \lambda' | k_{\gamma}q_{\gamma}) \langle 1\lambda | \gamma \rangle \langle \gamma | 1\lambda \rangle. \quad (2.35)$$

Построение статистического тензора системы из нескольких фотонов является чуть более нетривиальным:

$$\rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}(J_{\gamma}, J'_{\gamma}) = \sum_{M_{\gamma}M'_{\gamma}} (-1)^{J'_{\gamma}-M'_{\gamma}} (J_{\gamma}M_{\gamma}, J'_{\gamma} - M'_{\gamma} | k_{\gamma}q_{\gamma}) \langle J_{\gamma}M_{\gamma} | m_{\gamma} + n_{\gamma} \rangle \langle m_{\gamma} + n_{\gamma} | J'_{\gamma}M'_{\gamma} \rangle. \quad (2.36)$$

2.2.4 Построение наблюдаемых величин

В представлении статистических тензоров углового момента наблюдаемые \mathcal{O} конструируются сверткой тензора конечной системы $\rho_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f)$ с тензором эффективности детектора $\varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f)$ [37]:

$$\begin{aligned} \mathcal{O} &= \text{Tr} [\rho(J_f, J_{f'}) \varepsilon(J_f, J'_f)^*] \equiv \\ &\equiv \sum_{k_f q_f} \sum_{J_f J'_f} \sum_{\zeta_f \zeta'_f} \rho_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) \varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f)^*. \end{aligned} \quad (2.37)$$

Здесь ζ_f означает суммирование по всем остальным квантовым числам, характеризующим конечное состояние системы.

Тензор конечной системы имеет вид:

$$\begin{aligned} \rho_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) &= \sum_{\substack{J_i J_\gamma J'_\gamma \\ k_{i,\gamma} q_{i,\gamma}}} \hat{k}_i \hat{k}_\gamma (k_i q_i, k_\gamma q_\gamma | k_f q_f) \left\{ \begin{array}{c} J_i \ J_\gamma \ J_f \\ J_i \ J'_\gamma \ J'_f \\ k_i \ k_\gamma \ k_f \end{array} \right\} \\ &\rho_{k_i q_i}(\zeta_i J_i, \zeta_i J_i) \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma J'_\gamma) A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f} A_{J_i J'_\gamma J'_f}^{\zeta_i \zeta_f^*}. \end{aligned} \quad (2.38)$$

Здесь конструкция в фигурных скобках — это стандартное обозначение 9j-символа Вигнера, а под $A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f}$ понимается приведенная амплитуда перехода. В рамках настоящей диссертации нас будут интересовать амплитуды перехода, связанные с последовательным поглощением одного, двух или трёх дипольных фотонов. Выражения для них могут быть получены стандартными методами:

$$A_{J_i 1 J_f}^{\zeta_i \zeta_f(1)} = \langle J_f || \hat{H}_{\text{int}} || J_i \rangle, \quad (2.39)$$

$$A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f(2)} = (-1)^{J_i + J_f + J_\gamma} \hat{J}_\gamma \sum_{J_n} \left\{ \begin{array}{c} 1 \ 1 \ J_\gamma \\ J_i \ J_f \ J_n \end{array} \right\} \langle J_f || \hat{H}_{\text{int}} || J_n \rangle \langle J_n || \hat{H}_{\text{int}} || J_i \rangle, \quad (2.40)$$

$$\begin{aligned} A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f(3)} &= (-1)^{J_i + J_f + J_\gamma} \hat{J}_\gamma \sum_{J_k} \left\{ \begin{array}{c} 1 \ j_\gamma \ J_\gamma \\ J_i \ J_f \ J_k \end{array} \right\} (-1)^{J_i + J_k + j_\gamma} \hat{j}_\gamma \sum_{J_n} \left\{ \begin{array}{c} 1 \ 1 \ k \\ J_i \ J_k \ J_n \end{array} \right\} \\ &\langle J_f || \hat{H}_{\text{int}} || J_k \rangle \langle J_k || \hat{H}_{\text{int}} || J_n \rangle \langle J_n || \hat{H}_{\text{int}} || J_i \rangle, \end{aligned} \quad (2.41)$$

где введено стандартное обозначение 6j-символа Вигнера, а J_n и J_k — промежуточные моменты системы.

Отметим связь между приведенными амплитудами 2.39–2.41 и амплитудами 2.17–2.21:

$$a_f^{(1)} \equiv \frac{1}{\hat{J}_f} (J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f) A_{J_i 1 J_f}^{\zeta_i \zeta_f^{(1)}}, \quad (2.42)$$

$$a_f^{(2)} \equiv (-1)^{2J_f} \frac{1}{\hat{J}_f \hat{J}_\gamma^2} (1\lambda, 1\lambda' | J_\gamma M_\gamma) (J_i M_i, J_\gamma M_\gamma | J_f M_f) A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f^{(2)}}, \quad (2.43)$$

$$a_f^{(3)} \equiv \frac{1}{\hat{J}_f \hat{J}_\gamma^2 \hat{j}_\gamma^2} (1\lambda, 1\lambda' | j_\gamma m_\gamma) (j_\gamma m_\gamma, 1\lambda'' | J_\gamma M_\gamma) (J_i M_i, J_\gamma M_\gamma | J_f M_f) A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f^{(3)}}. \quad (2.44)$$

Если система в начальном состоянии не поляризована, то статтензор начального состояния $\rho_{k_i q_i}(\zeta_i J_i, \zeta_i J_i)$ имеет единственную ненулевую компоненту $\rho_{00}(\zeta_i J_i, \zeta_i J_i) = \frac{1}{\hat{J}_i}$.

Наблюдаемые определяются видом тензора эффективности регистрации частиц в конечном состоянии $\varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta_f J_f')$. Рассматривается *идеальный детектор*, регистрирующий фотоэлектроны любых энергий в любом направлении независимо от проекции спина m_s с одинаковой вероятностью. Полагая, что конечный ион не детектируется, в тензоре эффективности можно выделить часть, соответствующую регистрации электронов с определенной проекцией спина m_s на выбранную ось и импульсом $\frac{p}{p} = \{\vartheta, \varphi\}$.

Компоненты тензора эффективности регистрации спина электрона $\varepsilon_{k_s q_s}(\frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ в лабораторной системе координат равны

$$\varepsilon_{k_s q_s}(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}) = \sum_{m_s m'_s} (-1)^{\frac{1}{2} - m'_s} (\frac{1}{2} m_s, \frac{1}{2} - m'_s | k_s q_s) \langle \frac{1}{2} m_s | \varepsilon | \frac{1}{2} m'_s \rangle, \quad (2.45)$$

где $\langle \frac{1}{2} m_s | \varepsilon | \frac{1}{2} m'_s \rangle$ — матрица эффективности регистрации спина фотоэлектронов. В идеальном детекторе матрицей эффективности детектора, регистрирующего только электроны с компонентой спина $P_{x(y,z)}$, является соответствующая матрица Паули. Если детектор нечувствителен к спину, то единственная ненулевая компонента тензора эффективности регистрации спина электрона $\varepsilon_{k_s q_s}(\frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ равна $\varepsilon_{00}(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}) = \sqrt{2}$.

Компонента, связанная с наблюдением электронов в определенном направлении $\{\vartheta, \varphi\}$:

$$\varepsilon_{k_l q_l}(l, l') = (-1)^l \hat{l}' (l 0, l' 0 | k_l 0) \frac{\sqrt{4\pi}}{\hat{k}_l} Y_{k_l q_l}^*(\vartheta, \varphi) \quad (2.46)$$

Компоненты статтензора эффективности $\varepsilon_{k_f q_f}$, связанного с наблюдением электронов в определенном направлении $\{\vartheta, \varphi\}$, зависят от порядка связи моментов:

1. В LS -схеме связи, в которой орбитальный момент иона сначала связывается с орбитальным моментом электрона $L_c + l = L$, а спин иона — со спином электрона $S_c + \frac{1}{2} = S$, который затем образуют полный момент системы $L + S = J$, статтензор эффективности равен:

$$\varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) = \sum_{\substack{k_s q_s \\ k_l q_l}} \varepsilon_{k_l q_l}(L_f, L'_f) \varepsilon_{k_s q_s}(S_f, S'_f) \hat{k}_l \hat{k}_s \hat{J}_f \hat{J}'_f(k_l q_l, k_s q_s | k_f q_f) \left\{ \begin{array}{ccc} L_f & S_f & J_f \\ L'_f & S'_f & J'_f \\ k_l & k_s & k_f \end{array} \right\}. \quad (2.47)$$

Где компоненты $\varepsilon_{k_l q_l}(L_f, L'_f)$ и $\varepsilon_{k_s q_s}(S_f, S'_f)$, связанные с детектированием орбитального момента и спина фотоэлектрона, равны:

$$\varepsilon_{k_l q_l}(L_f, L'_f) = \sum (-1)^{L_c + k_l + l' + L} \hat{L} \hat{L}' \left\{ \begin{array}{ccc} l & l' & k \\ L' & L & L_c \end{array} \right\} \varepsilon_{k_l q_l}(l, l'), \quad (2.48)$$

$$\varepsilon_{k_s q_s}(S_f, S'_f) = \sum (-1)^{S_c + k_s + \frac{1}{2} + S} \hat{S} \hat{S}' \left\{ \begin{array}{ccc} \frac{1}{2} & \frac{1}{2} & k_s \\ S' & S & S_c \end{array} \right\} \varepsilon_{k_s q_s}\left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right). \quad (2.49)$$

2. В jK -схеме связи, в которой полный момент иона сначала связывается с орбитальным моментом электрона $J_c + l = K$, а затем — в полный момент системы со спином фотоэлектрона $K + \frac{1}{2} = J$, статтензор эффективности равен:

$$\varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) = \sum_{\substack{k_s q_s \\ k_l q_l}} \varepsilon_{k_s q_s}\left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right) \varepsilon_{k_l q_l}(K_f, K'_f) \hat{k}_l \hat{k}_s \hat{J}_f \hat{J}'_f(k_l q_l, k_s q_s | k_f q_f) \left\{ \begin{array}{ccc} K_f & \frac{1}{2} & J_f \\ K'_f & \frac{1}{2} & J'_f \\ k_l & k_s & k_f \end{array} \right\}. \quad (2.50)$$

где $\varepsilon_{k_l q_l}(K_f, K'_f)$ — компонента, связанная с наблюдением электронов в определенном направлении $\{\vartheta, \varphi\}$:

$$\varepsilon_{k_l q_l}(K_f, K'_f) = (-1)^{K_f + J_c + k_l + l} \hat{K}_f \hat{K}'_f \left\{ \begin{array}{ccc} k_l & l & l' \\ J_c & K'_f & K_f \end{array} \right\} \varepsilon_{k_l q_l}(l, l'). \quad (2.51)$$

Необходимо отметить, что jK -схема связи применима только для неэквивалентных электронов [111].

3. В JJ -схеме связи, в которой орбитальный момент и спин электрона сначала связывается в его полный момент $l + \frac{1}{2} = j$, а орбитальный момент и спин иона — в полный момент иона $L_c + S_c = J_c$, и, наконец, полный момент иона и электрона связывается в полный момент системы $J_c + j = J$, статтензор эффективности равен

$$\varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) = \sum_{\substack{k_s q_s \\ k_l q_l}} (-1)^{k+J_c+j'+J} \hat{J} \hat{J}' \left\{ \begin{array}{ccc} j & j' & k \\ J' & J & J_c \end{array} \right\} \varepsilon_{k_j q_j}(j, j'), \quad (2.52)$$

где $\varepsilon_{k_j q_j}(j, j')$ — компонента, связанная с наблюдением электронов в определенном направлении $\{\vartheta, \varphi\}$:

$$\varepsilon_{k_j q_j}(j, j') = \sum_{\substack{k_s q_s \\ k_l q_l}} \hat{k}_l \hat{k}_s \hat{j} \hat{j}'(k_l q_l, k_s q_s | k_j q_j) \left\{ \begin{array}{ccc} l & \frac{1}{2} & j \\ l' & \frac{1}{2} & j' \\ k_l & k_s & k_j \end{array} \right\} \varepsilon_{k_s q_s}(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}) \varepsilon_{k_l q_l}(l, l'). \quad (2.53)$$

Для анализа угловой зависимости эмиссии электронов и их поляризации P в (2.37) удобно выделить динамические параметры $B_{k_i k_\gamma k_l k_s k_f}(J_i J_\gamma, J_i J'_\gamma)$, зависящие от характеристик мишени, энергии фотона и параметров импульса, и геометрический фактор, определяемый поляризациями полей и направлением эмиссии $\{\vartheta, \varphi\}$. Их явный вид можно получить прямой подстановкой выражений (2.38) и выражений для статистического тензора эффективности детектора в (2.37). Тогда статистический тензор спина электрона, детектируемого в направлении $\{\vartheta, \varphi\}$, представляется в виде:

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_i, \gamma, f, l, q_i, \gamma, f} B_{k_i k_\gamma k_l k_s k_f}(J_i J_\gamma, J_i J'_\gamma) \rho_{k_i q_i}(J_i, J_i) \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma J'_\gamma) (k_i q_i, k_\gamma q_\gamma | k_f q_f)(k_l q_l, k_s q_s | k_f q_f) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi). \quad (2.54)$$

Для мишени с $J_i = 0$ полный момент системы $J_f = J_\gamma$, $k_i = 0$ и $k_f = k_\gamma = k$:

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_l, \gamma q_l, \gamma} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) (k_l q_l, k_s q_s | k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi). \quad (2.55)$$

Здесь для краткости мы положили $B_{0k_\gamma k_l k_s k_\gamma}(J_i J_\gamma, J_i J'_\gamma) \equiv B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma)$. Если спин фотоэлектрона не регистрируется, то выражение становится еще проще:

$$\rho_{00} = \sum_{k_\gamma q_\gamma} B_{k_\gamma 0 k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) Y_{k_\gamma q_\gamma}(\vartheta, \varphi). \quad (2.56)$$

И с учетом выражения 2.27 угловое распределение фотоэлектронов может быть записано в виде:

$$W(\vartheta, \varphi) = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \sum_{kq} \beta_{kq} Y_{kq}(\vartheta, \varphi) \right). \quad (2.57)$$

Для статистических тензоров фотона и спина электрона справедливы перестановочные соотношения

$$\rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) = (-1)^{J_\gamma - J'_\gamma + q_\gamma} \rho_{k_\gamma - q_\gamma}^*(J'_\gamma, J_\gamma), \quad (2.58)$$

$$\rho_{k_s q_s} = (-1)^{q_s} \rho_{k_s - q_s}^*, \quad (2.59)$$

а для динамического параметра —

$$B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) = (-1)^{J_\gamma - J'_\gamma + k_l + k_s + k_\gamma} B_{k_l k_s k_\gamma}^*(J'_\gamma, J_\gamma). \quad (2.60)$$

Для анализа самых общих свойств часто полезно рассматривать *одноэлектронное приближение*. В одноэлектронном приближении отсутствует спиновая поляризация фотоэлектронов, а выражение для углового распределения имеет следующий вид:

$$W(\vartheta, \varphi) = \sum_{k l l' J_\gamma J'_\gamma} (-1)^{l_i + l + l' + J_\gamma + k} \frac{\hat{l} \hat{l}'}{\hat{l}_i^2} (l 0, l' 0 | k 0) \frac{\sqrt{4\pi}}{\hat{k}_l} \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \begin{Bmatrix} l & l' & k \\ J_\gamma & J_\gamma & l_i \end{Bmatrix} A_{l_i J_\gamma l}^{\varepsilon_i \varepsilon_f} A_{l_i J'_\gamma l'}^{\varepsilon_i \varepsilon_f *} Y_{kq}^*(\vartheta, \varphi), \quad (2.61)$$

где l_i — орбитальный момент электрона в начальном состоянии, а выражения для амплитуд вида $A_{l_i J_\gamma l}^{\zeta_i \zeta_f}$ могут быть получены из выражений (2.39)–(2.41) формальной заменой $J, M \rightarrow l, m$ и умножением на число электронов в рассматриваемой оболочке N_e .

Глава 3. Спектроскопия

В данной главе используются материалы, опубликованные в статьях [A1; A4; A5; A7; A8; A10].

В этой главе будет дано краткое описание методов, которыми были получены приведенные матричные элементы амплитуд переходов, представлены и обсуждены созданные спектроскопические модели.

3.1 МСНФ

Метод Хартри — Фока (HF) — приближённый метод решения уравнения Шрёдингера путём сведения многочастичной задачи к одночастичной в предположении, что каждая частица движется в некотором усреднённом самоогласованном поле, создаваемом всеми остальными частицами системы. Метод был впервые предложен Д. Хартри [112] и был впоследствии улучшен В. А. Фоком [113], предложившим использовать многочастичную волновую функцию в виде слэтеровского детерминанта вместо произведения одночастичных волновых функций.

Стационарное состояние N -электронного атома описывается волновой функцией $\psi(q_1, \dots, q_N)$, где $q_i = \{r_i, \sigma_i\}$ — расстояние i -го электрона от атомного ядра и его спин, которая является собственной функцией атомного гамильтониана \hat{H}_{at} :

$$\hat{H}_{\text{at}}\psi(q_1, \dots, q_N) = E\psi(q_1, \dots, q_N), \quad (3.1)$$

$$\hat{H}_{\text{at}} = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\mathbf{p}_i^2}{2} - \frac{Z}{r_i} \right) + \sum_{i>j}^N \frac{1}{r_i - r_j}. \quad (3.2)$$

В приближении центрального поля гамильтониан \hat{H} заменяется сепарабельным гамильтонианом \hat{H}_0 :

$$\hat{H} \approx \hat{H}_0 = \sum_{i=1}^N \left(-\frac{1}{2} \nabla_i^2 - \frac{Z}{r_i} + V(r_i) \right), \quad (3.3)$$

и детерминант Слетера $\Phi(q_i, \dots, q_N)$, составленный из одночастичных волновых функций

$$\phi(q) = \frac{1}{r} P(nl; r) Y_{lm_l}(\vartheta, \varphi) \chi_{m_s}(\sigma), \quad (3.4)$$

являющихся решениями соответствующих одноэлектронных задач, будет представлять собой собственную функцию гамильтониана \hat{H}_0 и удовлетворять принципу Паули. Линейные комбинации всех таких детерминантов, обладающих определенными значениями полного орбитального момента $\mathbf{L} = \sum_i^N \mathbf{l}_i$ и спина $\mathbf{S} = \sum_i^N \mathbf{s}_i$, называются конфигурационными функциями состояния (configuration state functions, CSF) $\Phi(\gamma_i LS)$, где γ обозначает определенную электронную конфигурацию.

Многоконфигурационный метод Хартри-Фока (MCHF) отличается от HF тем, что в нем есть возможность включать различные конфигурации электронов:

$$\Psi(\gamma LS) = \sum_{i=1}^M c_i \Phi(\gamma_i LS), \quad (3.5)$$

что позволяет получать более точные решения для полного атомного гамильтониана \hat{H} и находить волновые функции состояний, которые принципиально не могут быть описаны единственным CSF.

В спектроскопических расчетах методом многоконфигурационного Хартри-Фока использовалась хорошо известная его программная реализация MCHF, созданная Ш. Фрезе-Фишер [38], позволяющая также проводить ограниченные полурелятивистские расчеты с помощью гамильтониана Брейта-Паули, собственные волновые функции которого ищутся в виде разложения по нерелятивистским волновым функциям:

$$\Psi(\gamma J) = \sum_{i=1}^M c_i \Phi(\gamma_i L_i S_i J). \quad (3.6)$$

В это программном пакете волновые функции дискретных состояний и состояний непрерывного спектра являются действительными. Дополнительный сдвиг δ_l волновых функций непрерывного спектра $P(kl; r)$, вызванный близкодействующей частью потенциала 3.2, определяется как:

$$P(kl; r) \rightarrow \left(\frac{2}{\pi k} \right) \sin \left(kr - \frac{1}{2} l \pi + \frac{Z - N}{k} \log(2kr) + \sigma_l + \delta_l \right), \quad (3.7)$$

где $k = \sqrt{\varepsilon_e}$, $\sigma_l = \arg(l+1 - iZ/k)$ — кулоновский фазовый сдвиг. Таким образом, на больших радиусах волновая функция континуума может быть представлена как

$$P(kl; r) \rightarrow \cos \delta_l F(Z, k, l; r) + \sin \delta_l G(Z, k, l; r), \quad (3.8)$$

где $F(Z, k, l; r)$ и $G(Z, k, l; r)$ представляют из себя кулоновскую регулярную и нерегулярную волновые функции.

Приведенные матричные элементы перехода $DME = \langle \psi_f || \mathbf{D}_{L/V} || \psi_i \rangle$ так же являются действительными. Для переходов в состояния непрерывного спектра сечение находится как:

$$\sigma = \frac{4\pi^2}{3c(2L_i + 1)} (\varepsilon_f - \varepsilon_i) |\langle \psi_f || \mathbf{D}_{L/V} || \psi_i \rangle|^2, \quad (3.9)$$

где L_i — полный орбитальный момент начального состояния. Для переходов между состояниями дискретного спектра сила осциллятора перехода определяется как:

$$f_{if} = \frac{2}{3} (\varepsilon_f - \varepsilon_i) |\langle \psi_f || \mathbf{D}_{L/V} || \psi_i \rangle|^2. \quad (3.10)$$

Нахождение атомных орбиталей происходило следующим образом:

1. Сначала орбитали $1s$, $2s$ и $2p$ были оптимизированы, чтобы минимизировать энергию основного состояния иона $1s^2 2s^2 2p^5$.
2. Атомные орбитали $3s$, $4s$, $3d$ оптимизированы как средние по терму с замороженным остовом $1s^2 2s^2 2p^5$ на конфигурациях $2p^5 nl$.
3. Основное состояние было получено с участием $\overline{3p}$, $3s$, $3d$ и $4s$ орбиталей, где $\overline{3p}$ — виртуальная атомная орбиталь, необходимая для оптимизации энергии основного состояния на ионных $1s$, $2s$ и $2p$ волновых функциях.
4. Все конфигурации вида $2p^5 nl$ и $2p^4 nln'l'$ смешивались и диагонализировались с учетом первых релятивистских поправок (гамильтониан Брейта-Паули).
5. Орбитали непрерывного спектра были получены в приближении LS -связи с учетом зависимости от терма с замороженным остовом $1s^2 2s^2 2p^5$.

Затем были получены дипольные матричные элементы в jK -схеме связи для переходов из основного в возбужденные состояния (см. таб. 1) и в LS -схеме связи из дискретных состояний в состояния континуума (см. рис. 3.1). Выбор LS -схемы связи обусловлен ограничениями МСНФ. Для согласования схем связи

приведенные матричные элементы $\langle J' || \hat{H}_{\text{int}} || J \rangle$ в амплитудах 2.39–2.41 представляются как:

$$\langle J' || \hat{H}_{\text{int}} || J \rangle = \sum_{LS} c_{LS} (-1)^{L'+S'+J+1} \hat{j}_{J'} \left\{ \begin{matrix} S & L & J \\ 1 & J' & L' \end{matrix} \right\} \langle L'S' || \hat{H}_{\text{int}} || LS \rangle. \quad (3.11)$$

Таблица 1 — Нижние дипольно-разрешенные возбужденные состояния атома неона, их энергия, приведенный матричный элемент возбуждения из основного состояния и лидирующие конфигурации, полученные в МСНФ.

Состояние	Е, эВ	DME	Лидирующие конфигурации
$2p^5(^2P_{3/2})3s[\frac{3}{2}]$	16.67	-0.21	$0.94 2p^53s^3P\rangle - 0.33 2p^53s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})3s[\frac{1}{2}]$	16.85	0.62	$0.33 2p^53s^3P\rangle + 0.94 2p^53s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})4s[\frac{3}{2}]$	19.69	-0.18	$-0.70 2p^54s^3P\rangle + 0.71 2p^54s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})4s[\frac{1}{2}]$	19.78	0.19	$0.71 2p^54s^3P\rangle + 0.70 2p^54s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})3d[\frac{1}{2}]$	20.03	-0.11	$0.88 2p^53d^3P\rangle + 0.46 2p^53d^1P\rangle + 0.09 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})3d[\frac{3}{2}]$	20.04	-0.17	$-0.31 2p^53d^3P\rangle + 0.72 2p^53d^1P\rangle - 0.62 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})3d[\frac{3}{2}]$	20.14	-0.12	$-0.35 2p^53d^3P\rangle - 0.52 2p^53d^1P\rangle + 0.78 2p^53d^3D\rangle$

Таблица 2 — Коэффициенты смешивания термов в чистой jK -связи [114].

Состояние	Коэффициенты смешивания
$(^2P_{3/2})ns[\frac{3}{2}]$	$\sqrt{\frac{2}{3}} ns^3P\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} ns^1P\rangle$
$(^2P_{1/2})ns[\frac{1}{2}]$	$\sqrt{\frac{2}{3}} ns^3P\rangle - \sqrt{\frac{1}{3}} ns^1P\rangle$
$(^2P_{3/2})nd[\frac{1}{2}]$	$-\sqrt{\frac{2}{3}} nd^3P\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}} nd^1P\rangle + 0 nd^3D\rangle$
$(^2P_{3/2})nd[\frac{3}{2}]$	$\sqrt{\frac{1}{6}} nd^3P\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}} nd^1P\rangle - \sqrt{\frac{1}{2}} nd^3D\rangle$
$(^2P_{1/2})nd[\frac{3}{2}]$	$\sqrt{\frac{1}{6}} nd^3P\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}} nd^1P\rangle + -\sqrt{\frac{1}{2}} nd^3D\rangle$

Анализ лидирующих конфигураций в таб. 1 показывает, что

1. Состояния конфигурации $2p^5(^2P_{3/2})3s$ хорошо описываются в приближении чистой LS -связи: примесь синглета в триплетное состояние и наоборот небольшая.
2. Состояния конфигурации $2p^5(^2P_{3/2})3d$ хорошо описываются в приближении чистой jK -связи: коэффициенты смешивания термов 3P , 1P , 3D соответствуют ожидаемым (см. таб. 2).

3. Состояния конфигурации $2p^5(2P_{3/2})4s$ плохо описываются как в приближении чистой LS -связи, так и в приближении чистой jK -связи: смешивание $3P$ и $1P$ велико, однако не соответствуют ожидаемым.

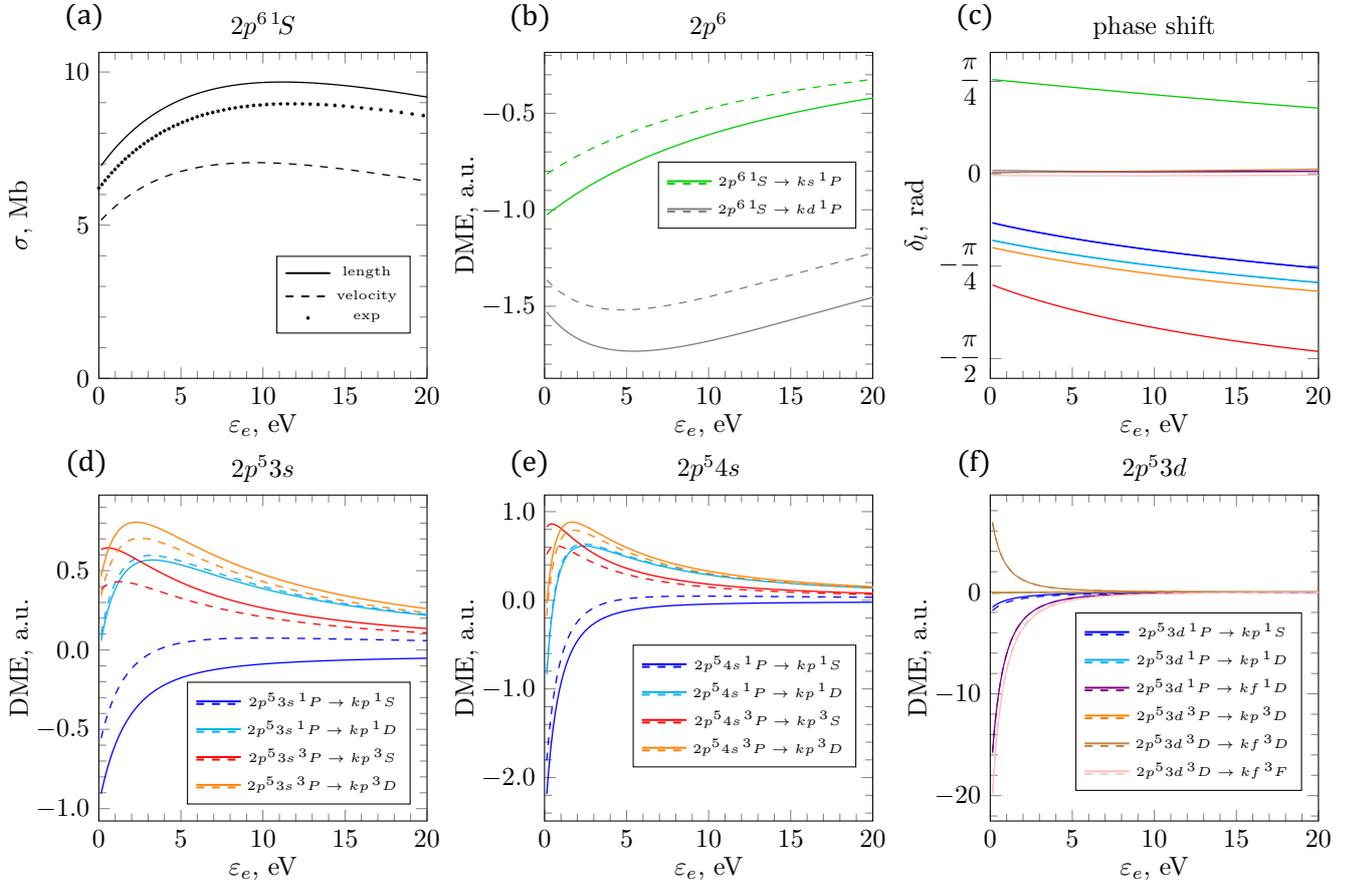


Рисунок 3.1 — (a) Сечение фотоионизации $2p$ -оболочки неона из основного состояния. Здесь и далее в этой главе, если не указано иное, сплошные линии — результаты в форме длины, штриховые — в форме скорости. Экспериментальные данные взяты из [115]. (b) Приведенные дипольные матричные элементы перехода при фотоионизации основного состояния неона. (d)–(f) Приведенные дипольные матричные элементы перехода при фотоионизации нижних возбужденных состояний неона. (c) Фазовые сдвиги (относительно кулоновских) соответствующих волн.

Анализ матричных элементов перехода в состояния непрерывного спектра (рис. 3.1) позволяет заключить, что

1. Расчитанное сечение ионизации из основного состояния не противоречит экспериментальным данным (рис. 3.1a), которые находятся между значениями, полученными в калибровке длины и скорости.
2. Поведение дипольных матричных элементов перехода из $2p^5 3s$ и $2p^5 4s$ возбужденных состояний в одинаковые конечные волны подобно. Наи-

большая разница между расчетами в калибровках длины и скорости наблюдается в области куперовского минимума амплитуды перехода в kp^1S -волну.

3. Для $2p^53d$ -состояний в области низких энергий доминирует ионизация в f -волну, что подчиняется тенденции Фано (Fano's propensity rule) [article](#).
4. Для волн с $l \geq 2$ фазовый сдвиг относительно кулоновского становится пренебрежимо мал.

3.2 R -матрица

Метод R -матрицы, описывающий рассеяние электронов и фотонов в сложных атомах и ионах, был введен в атомную физику Берком [116; 117] и в настоящее время является наиболее часто применяемым методом для определения различных свойств атомов. Идея метода состоит в том, что конфигурационное пространство разделяется на внутреннюю часть $r < a$ (a — некоторый радиус), в которой решается уравнение Шредингера для всей системы “мишень N + налетающий электрон 1 ” с соответствующими граничными условиями и внешнюю часть $r > a$, в которой решается задача для электрона в одночастичном кулоновском потенциале. Затем на границе производится сшивка решений. Однако, если вычислительные мощности позволяют выбрать радиус достаточно большим, то можно ограничиться только решением задачи в ограниченном пространстве $r < a$. Для волновой функции всей системы $\Psi_\alpha(\Gamma X, x_{N+1})$ во внутренней области решается стационарное уравнение Шредингера:

$$(\hat{H}_{\text{at}} - E)\Psi_\alpha(\Gamma X, x_{N+1}) = 0, \quad (3.12)$$

где α обозначает конкретный возможный канал реакции, X, x_{N+1} — пространственные координаты и спины всех электронов системы, а Γ — полный набор квантовых чисел конфигурации,

Так как во внутренней области волновая функция $\Psi_\alpha(\Gamma X, x_{N+1})$ раскладывается по полностью антисимметризованному набору базисных функций, являющихся решениями уравнения Шредингера в коробке $r < a$, то в этой области присутствует сильная связь каналов. Сильная связь каналов в континууме приводит к тому, что матричные элементы переходов в состояния непрерывного

спектра могут быть комплексными, а их фаза может отличаться от фазы рассеяния в МСНФ. Более того, сильная связь каналов приводит к возникновению переходов, запрещенных в МСНФ.

К настоящему времени было предложено множество модификаций R -матрицы. Реализация метода, выполненная О. Зацаринным BSR [39] для области $r < a$, отличается двумя существенными новшествами по сравнению с другими программами:

- для представления одноэлектронных орбиталей как дискретного, так и непрерывного спектра могут использоваться неортогональные орбитали;
- базисные функции в R -матрице представляются набором B -сплайнов.

Использование неортогональных орбиталей для описания связанных состояний в общем случае позволяет добиться гораздо большей точности: начальное и конечные состояния можно оптимизировать в отдельных расчетах, что является существенным преимуществом для описания переходов, при которых электронная оболочка претерпевает серьезную перестройку. Также благодаря неортогональности состояния могут быть описаны с помощью более компактных конфигурационных разложений. Использование же неортогональных орбиталей для описания состояний континуума может значительно уменьшить проблему появления псевдорезонансов. Использование B -сплайнов обладает тем преимуществом, что из них можно эффективно с вычислительной точки зрения сформировать базис R -матрицы.

Комплекс BSR был успешно применен для описания большого количества задач атомной физики, начиная с демонстративных расчетов сечения фотоионизации лития [118] и заканчивая действительно сложными системами [119; 120].

Для нахождения дискретных состояний в BSR используется модифицированная версия МСНФ, позволяющая проводить расчеты с большим количеством возбуждений. Полученные состояния используются далее в качестве входных файлов: начальных состояний и порогов (для построения континуума).

Основное состояние Ne было получено полным самосогласованным вычислением конфигурации $1s^2 2s^2 2p^6$. Затем к этому состоянию были примешаны все возможные одно- и двухчастичные возбуждения из $2s$ из $2p$ оболочек в $3l$ и $4l$.

Для возбужденных состояний типа $1s^2 2s^2 2p^5 nl$ были проведены отдельные вычисления для каждой из конфигураций $2s^2 2p^5 3s$, $2s^2 2p^5 4s$, $2s^2 2p^5 5s$, $2s^2 2p^5 6s$, $2s^2 2p^5 3d$, $2s^2 2p^5 4d$, $2s^2 2p^5 5d$, $2s^2 2p^4 3s 3p$, $2s^2 2p^4 3p 4s$, $2s^1 2p^5 3s 3d$ со всеми возмож-

Таблица 3 — Нижние дипольно-разрешенные возбужденные состояния атома неона, их энергия, приведенный матричный элемент возбуждения из основного состояния и лидирующие конфигурации, полученные в BSR.

Состояние	Е, эВ	DME	Лидирующие конфигурации
$2p^5(^2P_{3/2})3s[\frac{3}{2}]$	16.67	-0.25	$-0.92 2p^53s^3P\rangle - 0.39 2p^53s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})3s[\frac{1}{2}]$	16.85	0.60	$-0.38 2p^53s^3P\rangle + 0.92 2p^53s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})4s[\frac{3}{2}]$	19.69	-0.19	$-0.69 2p^54s^3P\rangle - 0.71 2p^54s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})4s[\frac{1}{2}]$	19.78	-0.18	$0.71 2p^54s^3P\rangle - 0.69 2p^54s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})3d[\frac{1}{2}]$	20.03	0.10	$0.89 2p^53d^3P\rangle - 0.43 2p^53d^1P\rangle - 0.12 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})3d[\frac{3}{2}]$	20.04	-0.17	$0.27 2p^53d^3P\rangle + 0.72 2p^53d^1P\rangle - 0.64 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})3d[\frac{3}{2}]$	20.14	0.13	$-0.36 2p^53d^3P\rangle - 0.54 2p^53d^1P\rangle - 0.76 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})5s[\frac{3}{2}]$	20.57	-0.12	$-0.62 2p^55s^3P\rangle - 0.78 2p^55s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})5s[\frac{1}{2}]$	20.66	0.08	$-0.76 2p^55s^3P\rangle + 0.60 2p^55s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})4d[\frac{1}{2}]$	20.70	0.09	$0.87 2p^54d^3P\rangle - 0.39 2p^54d^1P\rangle - 0.16 2p^54d^3D\rangle -$ $-0.20 2p^55s^3P\rangle + 0.17 2p^55s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})4d[\frac{3}{2}]$	20.71	-0.12	$0.18 2p^54d^3P\rangle + 0.73 2p^54d^1P\rangle - 0.66 2p^54d^3D\rangle -$ $-0.05 2p^55s^3P\rangle + 0.05 2p^55s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})4d[\frac{3}{2}]$	20.81	-0.10	$0.39 2p^54d^3P\rangle + 0.57 2p^54d^1P\rangle + 0.73 2p^54d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})6s[\frac{3}{2}]$	20.95	0.06	$-0.80 2p^56s^3P\rangle + 0.60 2p^56s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})5d[\frac{1}{2}]$	21.01	0.05	$0.90 2p^55d^3P\rangle - 0.40 2p^55d^1P\rangle - 0.18 2p^55d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{3/2})5d[\frac{3}{2}]$	21.02	-0.09	$0.18 2p^55d^3P\rangle + 0.72 2p^55d^1P\rangle - 0.67 2p^55d^3D\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})6s[\frac{1}{2}]$	21.04	0.09	$0.60 2p^56s^3P\rangle + 0.80 2p^56s^1P\rangle$
$2p^5(^2P_{1/2})5d[\frac{3}{2}]$	21.11	-0.07	$0.40 2p^55d^3P\rangle + 0.57 2p^55d^1P\rangle + 0.72 2p^55d^3D\rangle$

ными термами и учетом взаимодействия Брейта-Паули, после чего все полученные конфигурации были смешаны между собой.

В таблице 3 приведены энергии возбужденных состояний, полученные в BSR приведенные дипольные матричные элементы перехода из основного состояния и лидирующие конфигурации.

Неортогональность орбиталей позволяет оптимизировать все волновые функции на каждом отдельном состоянии, и степень влияния ее учета на расчет возбуждения/ионизации дискретных состояний неона можно оценить, сравнивая конфигурационные смешивания, полученные в BSR (таблица 3), со смешиваниями, полученными в MCHF (таблица 1). Сравнение позволяет сделать вывод, что это влияние для дискретных состояний не столь существенно: лидирующие конфигу-

рации в смешиваниях одинаковы, а их веса похожи между собой даже при том, что модель в 3.1 минимальная (смешивались три конфигурации), а в 3.2 — достаточно сложная (смешивались десять конфигураций). Однако, в спектроскопических расчетах даже небольшие дополнительные примеси могут существенно влиять на конечный результат, как было показано нами для ионизации $2p^5(^2P_{3/2})3s$ состояний неона в [A7]. Отметим, знаки перед весами зависят исключительно от согласования общей фазы состояния и не являются значимыми.

Для получения конечных ионных состояний Ne^+ (порогов) мы сначала индивидуально оптимизировали каждую конфигурацию из списка (опять же со всеми возможными членами и учетом взаимодействия Брейта-Паули):

(а) нечетные: $2s^22p^5$, $2s^22p^43p$, $2s^22p^33s^2$, $2s^22p^34s^2$, $2s^22p^33p^2$, $2s^22p^33d^2$, $2s^12p^53s$, $2s^12p^53d$, $2s^12p^54s$, $2s^02p^53s^2$, $2s^02p^53d^2$, $2s^02p^54s^2$, $2s^02p^53p^2$;

(б) четные: $2s^12p^6$, $2s^12p^53p$, $2s^12p^43s^2$, $2s^12p^44s^2$, $2s^12p^43d^2$, $2s^12p^43p^2$, $2s^22p^43s$, $2s^22p^43d$, $2s^22p^44s$, $2s^02p^63s$, $2s^02p^63d$, $2s^02p^64s$.

Затем все конфигурации были смешаны, и полученные смешивания для состояний (названных по лидирующей конфигурации) $2s^22p^5 [^2P_{3/2;1/2}]$, $2s^12p^6 [^2S_{1/2}]$, $2s^22p^43s [^2S_{1/2}, ^2P_{3/2;1/2}, ^2D_{5/2;3/2}, ^4P_{5/2;3/2;1/2}]$ были использованы в качестве порогов.

На рис. 3.2 приведено сечение ионизации из основного состояния в сравнении с экспериментальными данными [115], приведенные дипольные матричные элементы перехода, их фазовые сдвиги относительно кулоновских, а также параметр угловой анизотропии β_2 при ионизации линейно поляризованным излучением, так же в сравнении с экспериментальными данными [121]. Согласие (рис. 3.1a,c) представляется приемлемым для целей исследования. R -матрица, в отличие от МСНФ 3.1b, позволяет рассчитывать переходы в состояния континуума в jK -схеме связи. И, как видно из рис. 3.2b,d, если для переходов в d -волну нет никакой зависимости от тонкой структуры, то для переходов в s -волну наблюдается небольшая разница между ионизацией в конечные состояния иона $2p^5(^2P_{3/2})$ и $2p^5(^2P_{1/2})$, что не может не оказать влияния на дифференциальные по углу характеристики фотоэлектронов (рис. 3.2c).

Здесь мы приводим только некоторые дипольные матричные элементы перехода ионизации из возбужденных $2p^54s$ - (на рис. 3.3) и $2p^53d$ -состояний (на рис. 3.4), так как (1) они обсуждались в работах, включенных в настоящую диссертацию, и (2) остальные матричные элементы ведут себя похожим образом и не несут новой информации.

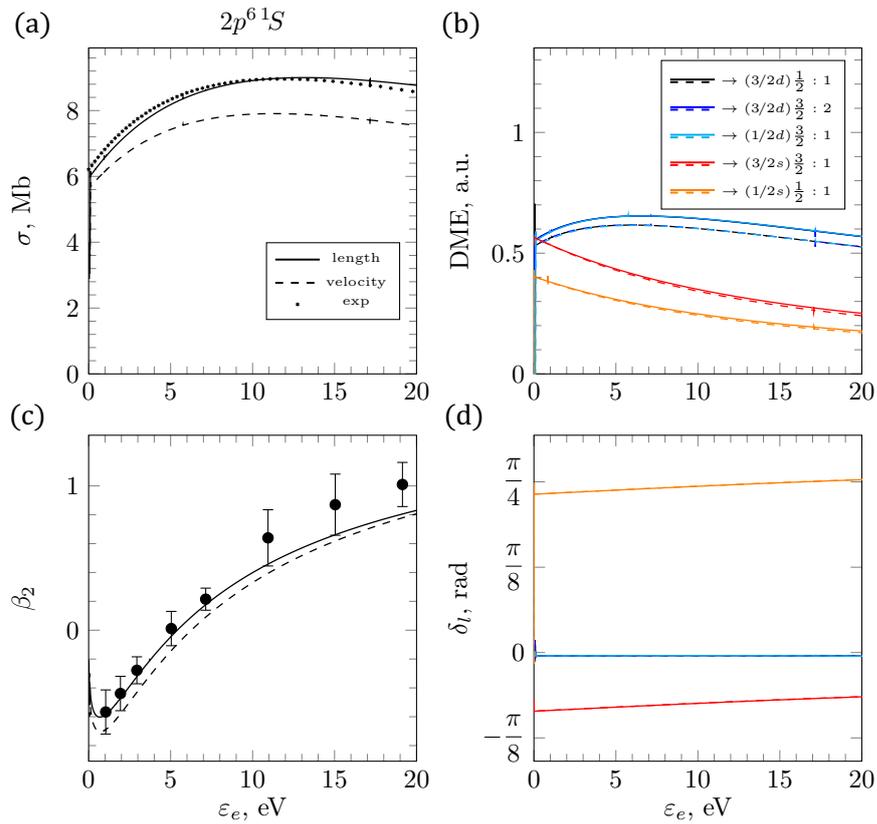


Рисунок 3.2 — (а) Сечение фотоионизации $2p$ -оболочки неона из основного состояния. Экспериментальные данные взяты из [115]. (б) Параметр анизотропии β_2 для ионизации $2p$ -оболочки неона из основного состояния линейно поляризованным излучением. Экспериментальные данные взяты из [121]. (в) Модули приведенных дипольных матричных элементов перехода при фотоионизации $2p$ -оболочки неона из основного состояния (д) Фазовые сдвиги (относительно кулоновских) для амплитуд на панели (б). Везде сплошные линии — результаты расчетов в калибровке длины, а пунктирные — в калибровке скорости.

При ионизации $2p^5 4s$ -состояний, в отличие от расчетов в МСНФ, присутствуют каналы в f -волну (рис. 3.3б). Эти каналы запрещены в схеме чистой LS -связи и появляются за счет сильной связи каналов, которой присутствует в R -матрице. Однако, для $2p^5 4s$ -состояний неона их вклад в общее сечение невелик по сравнению с переходами в разрешенную p -волну (рис. 3.3а). Для разрешенных (в LS -связи) каналов поведение матричных элементов перехода, в целом, аналогично, но положение/наличию куперовского минимума оказывается сильно зависящим от деталей расчета, что является естественной ситуацией в атомной спектроскопии.

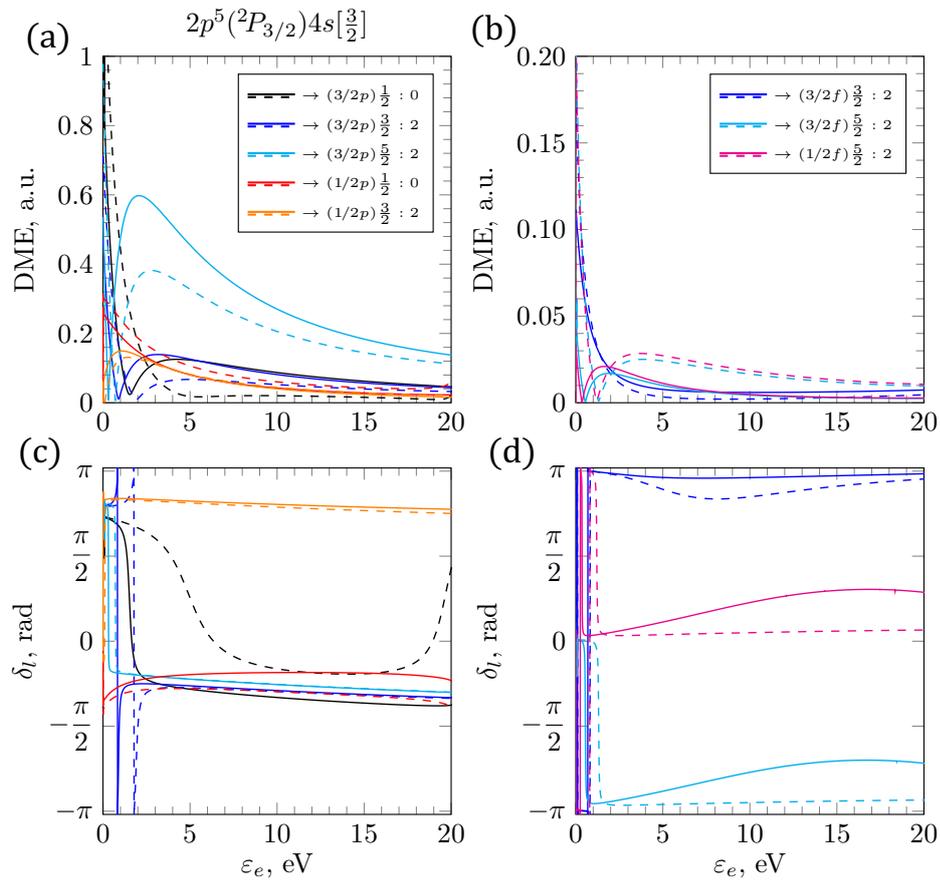


Рисунок 3.3 — Модули (верхний ряд) и фазовые сдвиги (относительно кулоновских, нижний ряд) приведенных дипольных матричных элементов перехода при фотоионизации нижних возбужденного состояния неона $2s^2 2p^5 (P_{3/2}) 4s [3/2]$. Сплошные линии — результаты расчетов в калибровке длины, а пунктирные — в калибровке скорости. Каналы реакции обозначены на рисунке как $(J_f l) k : J$.

Расчеты ионизация $2p^5 3d$ -состояний, напротив, представляются более стабильными, о чем свидетельствует лучшее совпадение калибровок длины и скорости, особенно при переходах в доминирующую при небольших энергиях фотоэлектронов f -волну (рис. 3.4b). При более высоких энергиях переходы в p - и f -волну становятся сопоставимы. Так же для амплитуд разрешенных переходов наблюдается соответствие коэффициентам смешивания для чистой jK -связи [114].

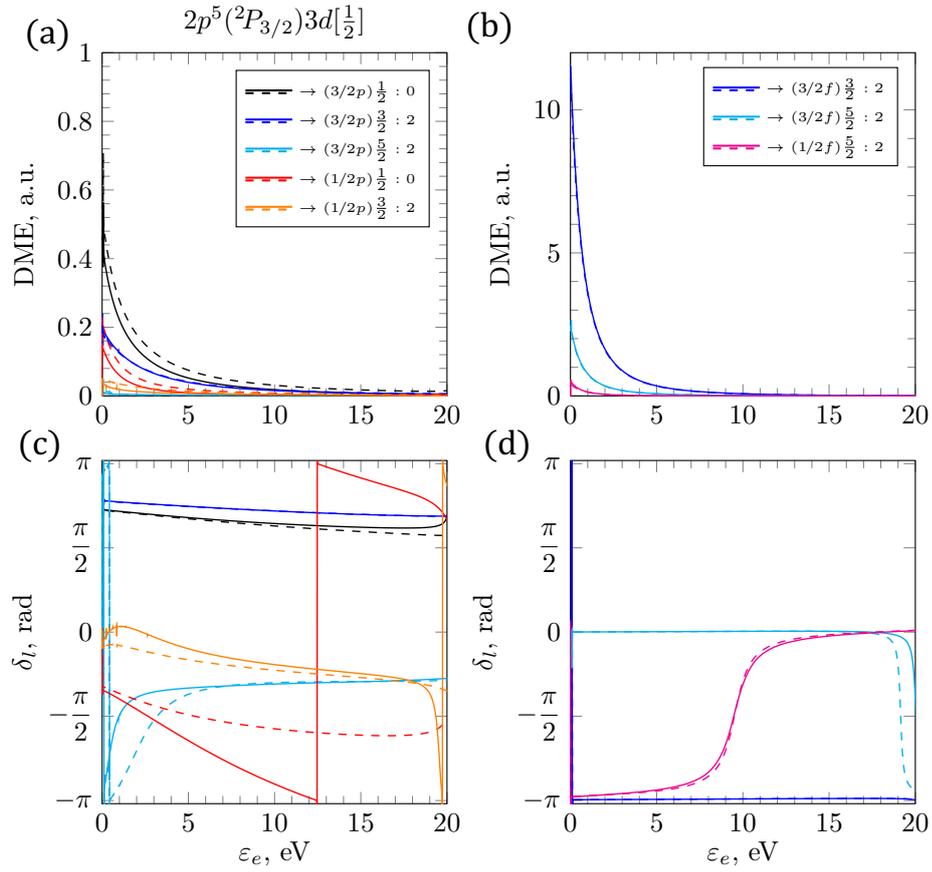


Рисунок 3.4 — Модули (верхний ряд) и фазовые сдвиги (относительно кулоновских, нижний ряд) приведенных дипольных матричных элементов перехода при фотоионизации нижних возбужденного состояния неона $2s^2 2p^5(P_{3/2})3d[1/2]$. Сплошные линии — результаты расчетов в калибровке длины, а пунктирные — в калибровке скорости. Каналы реакции обозначены на рисунке как $(J_f l)k : J_i$.

3.3 Метод устранения расходимости

Для нахождения дипольных матричных элементов перехода между состояниями континуума использовался метод устранения расходимости, предложенный в работе [122] с волновыми функциями непрерывного спектра, полученными в МСНФ способом, описанном в разделе 3.1.

Согласно [122], радиальный матричный элемент перехода между состояниями континуума равен:

$$R_{\epsilon l, \epsilon' l'} = \mathcal{F}_1(\epsilon l, \epsilon' l') \delta(\epsilon - \epsilon') + \mathcal{P} \frac{\mathcal{F}_2(\epsilon l, \epsilon' l')}{(\epsilon - \epsilon')}, \quad (3.13)$$

где \mathcal{P} означает интегрирование в смысле главного значения и

$$\mathcal{F}_1(\varepsilon l, \varepsilon' l') = \text{sign}(l - l') \cos(\sigma_l + \delta_l - \sigma_{l'} - \delta_{l'}) \sqrt{2\varepsilon}, \quad (3.14)$$

$$\mathcal{F}_2(\varepsilon l, \varepsilon' l') = I_{\varepsilon, \varepsilon'}(0, R_c) + S_{\varepsilon, \varepsilon'}(R_c) + O_{\varepsilon, \varepsilon'}(R_c, \infty). \quad (3.15)$$

В последнем выражении R_c означает радиус, после которого потенциал можно считать кулоновским, а член $\mathcal{F}_2(\varepsilon l, \varepsilon' l')$ делится на внутреннюю часть до этого радиуса $I_{\varepsilon, \varepsilon'}(0, R_c)$, внешнюю часть $O_{\varepsilon, \varepsilon'}(R_c, \infty)$ и поверхностный член $S_{\varepsilon, \varepsilon'}(R_c)$, их разделяющий:

$$I_{\varepsilon, \varepsilon'}(0, R_c) = (\varepsilon' - \varepsilon) \int_0^{R_c} P_{\varepsilon l} Q P_{\varepsilon' l'} dr, \quad (3.16)$$

$$S_{\varepsilon, \varepsilon'}(R_c) = \frac{1}{2} P_{\varepsilon l} \frac{d^2 P_{\varepsilon' l'}}{dr^2} - \frac{1}{2} \frac{dP_{\varepsilon' l'}}{dr} \frac{dP_{\varepsilon l}}{dr} + \frac{C}{4R_c} \left(P_{\varepsilon l} \frac{dP_{\varepsilon' l'}}{dr} - \frac{dP_{\varepsilon l}}{dr} P_{\varepsilon' l'} \right) - \frac{C}{4R_c^2} P_{\varepsilon' l'} P_{\varepsilon l}, \quad (3.17)$$

$$O_{\varepsilon, \varepsilon'}(R_c, \infty) = \int_{R_0}^{\infty} P_{\varepsilon l} \frac{Z}{r^2} P_{\varepsilon' l'} dr, \quad (3.18)$$

где $Q = \frac{d}{dr} + \frac{c}{2r}$, $C = l'(l' + 1) - l(l + 1)$, а $P_{\varepsilon l} \equiv P(kl; r)$ (выражение 3.7) для краткости.

Функция 3.13 представляет собой по сути радиальную часть матричного элемента в калибровке скорости, а функция 3.15 — в калибровке ускорения. Последняя является гладкой функции промежуточной и конечной энергии электрона и имеет точку перегиба $\varepsilon = \varepsilon'$. Расходимость матричных элементов континуум-континуум переходов в калибровке длины долгое время была препятствием для теоретиков и была преодолена переходом к калибровкам скорости и ускорения [123—125].

Результаты расчета в представлении ускорения приведены на рис. 3.5.

Представляет интерес сравнение с аналитическими матричными элементами перехода, полученными В. Гордоном [126], формула для которых в современном виде приведена в работе [127] (рис. 3.6). Тогда как для переходов между состояниями с низкими моментами аналитические и численные матричные элементы сильно отличаются, для высоких моментов полученные результаты совпадают с аналитикой. Совпадение с аналитическим результатом является следствием малого фазового сдвига (см. рис. 3.1с) и служит подтверждением применимости метода.

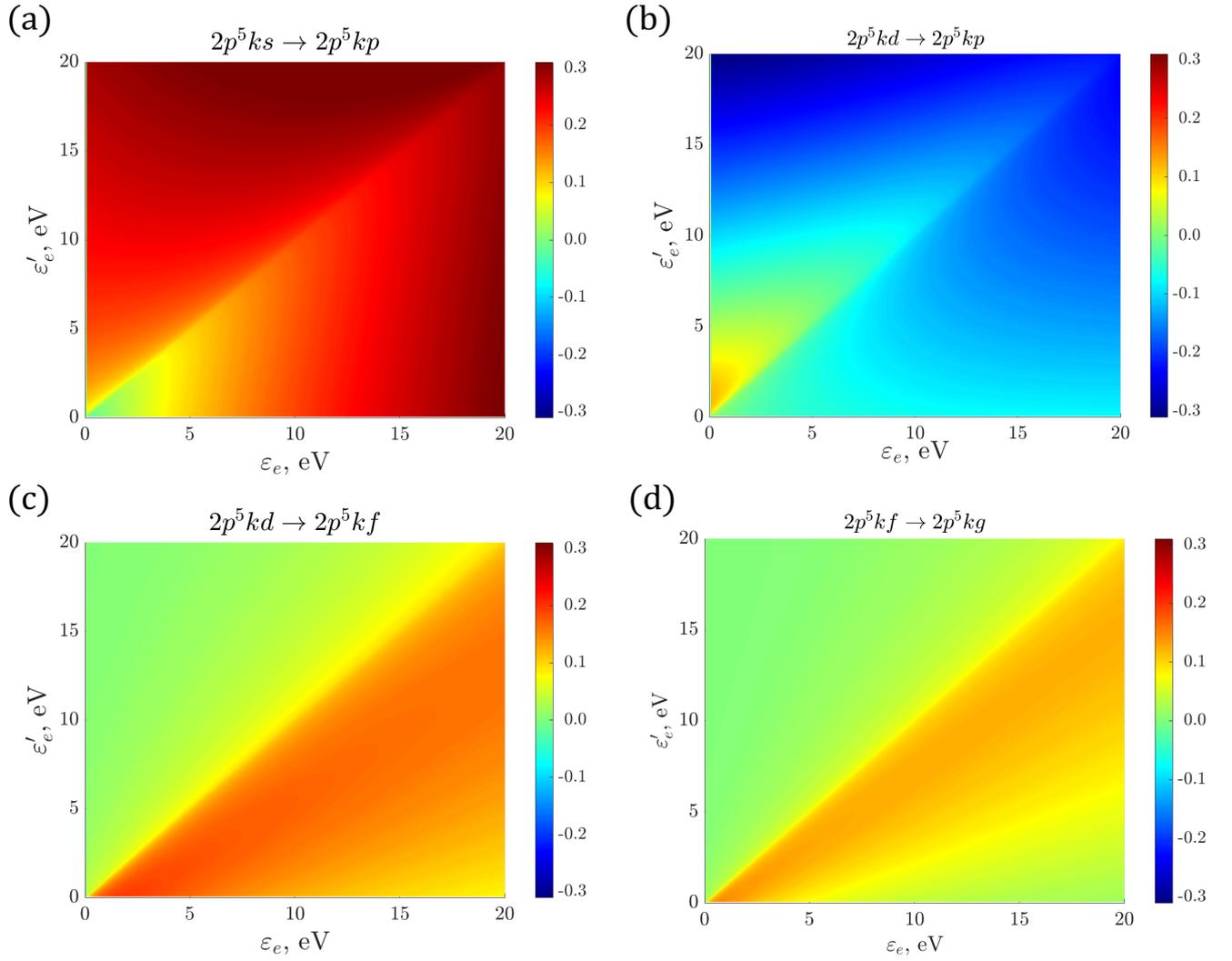


Рисунок 3.5 — Радиальные части матричных элементов переходов между состояниями континуума: (a) из s-волны в p-волну; (b) из d в p; (c) из d в f; (d) из f в g. По вертикальной оси отложена энергия промежуточного электрона, а по горизонтальной — конечного.

Связь между одноэлектронным интегралом $R_{\epsilon l, \epsilon' l'}$ и приведенным матричным элементом в jK -схеме связи [37]:

$$\langle (J_c l') k', \frac{1}{2} : J' \parallel \hat{D} \parallel (J_c l) k, \frac{1}{2} : J \rangle = (-1)^{J_c + l - J - \frac{1}{2}} \hat{k} \hat{k}' \hat{J} \hat{J}' \begin{Bmatrix} J_c & l & k \\ 1 & k' & l' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} \frac{1}{2} & J & J' \\ 1 & k' & k \end{Bmatrix} \langle l' \parallel \hat{D} \parallel l \rangle,$$

$$\langle l' \parallel \hat{D} \parallel l \rangle = \hat{l}(l0, 10 \mid l'0) R_{l'l}. \quad (3.19)$$

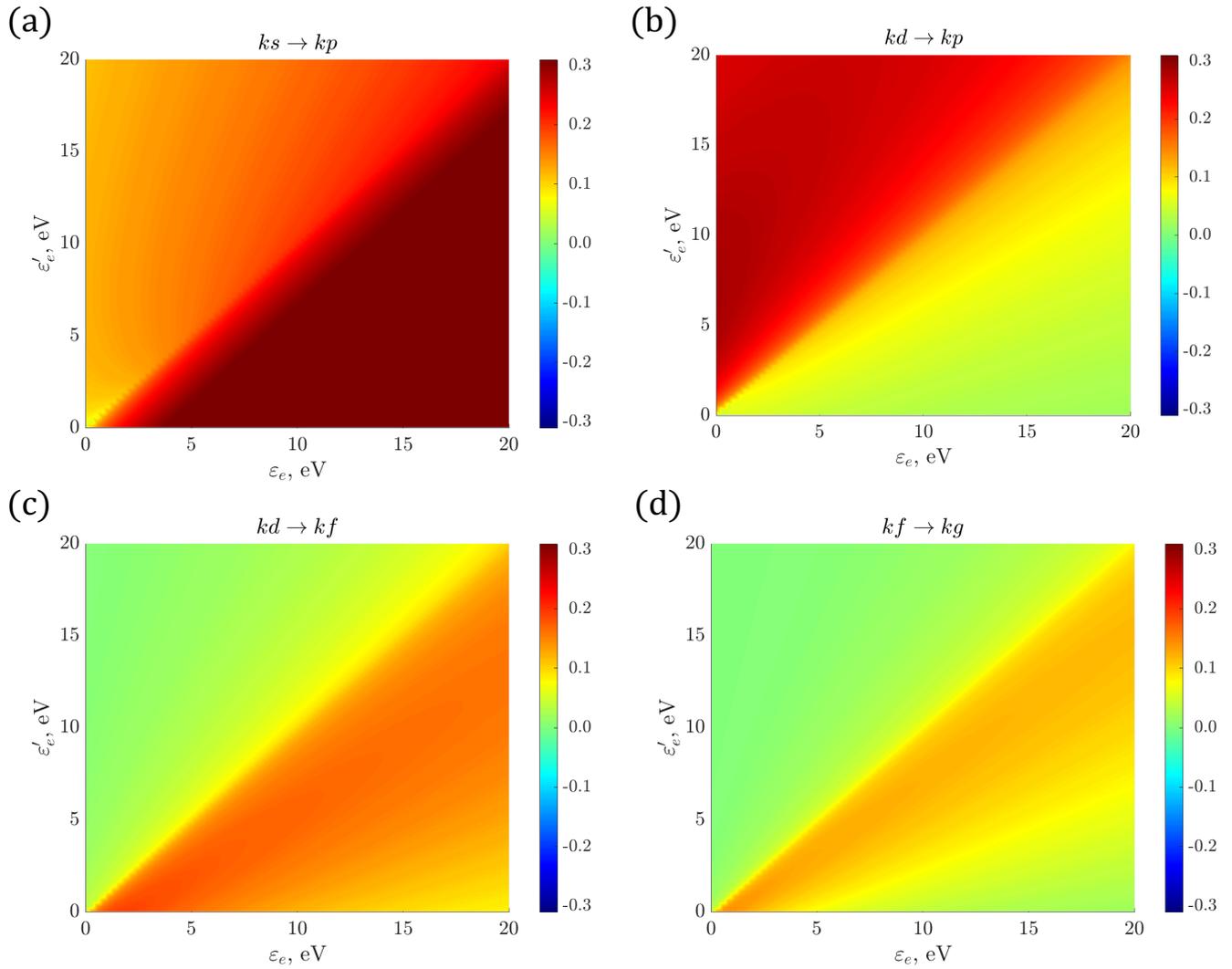


Рисунок 3.6 — Радиальные части матричных элементов переходов между состояниями континуума, рассчитанные по формуле Гордона: (а) из s-волны в р-волну; (b) из d в p; (c) из d в f; (c) из f в g. По вертикальной оси отложена энергия промежуточного электрона, а по горизонтальной — конечного.

3.4 Метод устойчивой вариации

Амплитуду 2.23 можно вычислить с помощью метода устойчивой вариации (variationally stable method), впервые предложенном в работах [44; 128]. Ранее он был успешно применен для описания двухфотонной ионизации атома водорода H и иона гелия He^+ [129] коллегами автора диссертации. Следуя этому методу, сумму по n в формуле (2.23) можно представить в виде:

$$\langle \psi_f | r | \nu \rangle + \langle \mu | r | \psi_i \rangle + \langle \mu | \varepsilon_i + \omega - h_n | \nu \rangle, \quad (3.20)$$

где μ и ν — вспомогательные функции, представляющие собой сумму M Слэтеровских орбиталей $\Phi(m) = N_m r^m e^{-r}$:

$$\mu = \sum_{m=1}^M a_m \Phi(m), \quad \nu = \sum_{m=1}^M b_m \Phi(m) \quad (3.21)$$

где N_m — нормировочные множители, а коэффициенты a_m и b_m получается решением системы $2M$ линейных алгебраических уравнений:

$$\sum_{m=0}^M T_{nm} a_m = c_n, \quad \sum_{m=0}^M b_m T_{nm} = d_n, \quad (3.22)$$

где

$$T_{nm} = \int \Phi(n)(\varepsilon_i + \omega - h_l) \Phi(m) dr, \quad (3.23)$$

$$h_l = -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{V(r)}{r} + \frac{l_k(l_k + 1)}{2r^2}, \quad (3.24)$$

$$c_n = \int \Phi(n) r \psi_i dr, \quad d_m = \int \Phi(m) r \psi_{\varepsilon s, \varepsilon d} dr. \quad (3.25)$$

Одноэлектронные волновые функции, необходимые для расчетов методом устойчивой вариации, были получены с помощью набора спектроскопических программ RADIAL [41] с аналитическим центральным потенциалом $V(r) = 1/r^2$ для водорода H и численным потенциалом $V(r)$, полученными в MCHF [38] для гелия. В качестве $V(r)$ был выбран потенциал, соответствующий состоянию $2p$ как состоянию первого возбуждения в одноэлектронном приближении.

Для водорода полученные сечения двухфотонных переходов

$$\sigma_{\varepsilon s, \varepsilon d}^{(2)} = \frac{2\pi\omega^2}{15F_0^2\tau_0} N |A_{\varepsilon s, \varepsilon d}^{(2)}|^2 \begin{array}{l} \text{с } N = 5 \text{ для } s\text{-волны} \\ \text{и } N = 2 \text{ для } d\text{-волны} \end{array}, \quad (3.26)$$

где $F_0 = 3.22 \cdot 10^{34} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ — атомная единица потока и $\tau_0 = 2.42 \cdot 10^{-17}$ — атомная единица времени, можно сравнить с аналитическими величинами, рассчитанными методом разложения по штурмановским функциям [127]. Численные и аналитические парциальные сечения в s - и d -волны представлены на рис. 3.7. Программная реализация метода 2.1.4, примененного ранее в [129], была переписана на языке MATLAB.

В гелии выбор потенциала $2p$ позволил получить удовлетворительное согласие между расчетной и экспериментальной [130—132] разностью фаз (3.8а),

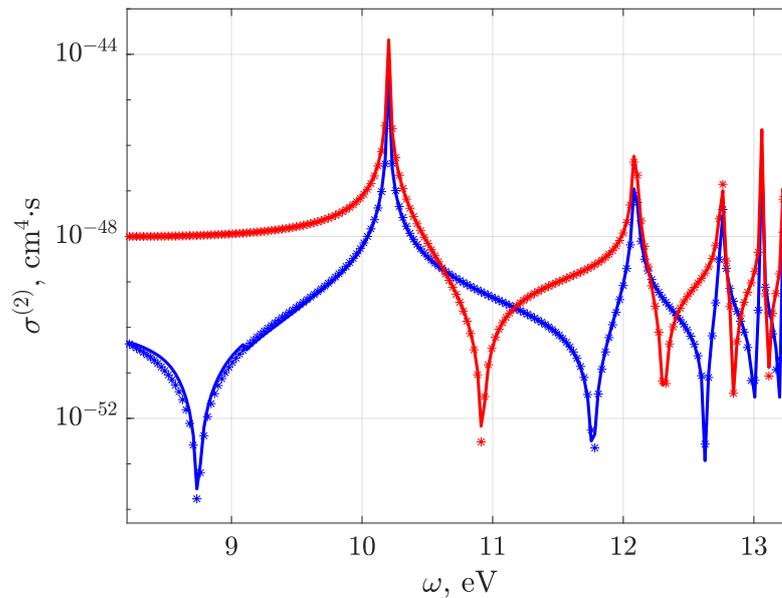


Рисунок 3.7 — Парциальные сечения двухфотонной ионизации водорода. Синий цвет — в s -волну, красный цвет — в d -волну. Звездочками обозначено аналитическое сечение, сплошной кривой — численное.

тогда как потенциал ионизации (-0.819 а.е.) получился далеким от экспериментального (-0.904 а.е.). Несмотря на это, сечение однофотонной ионизации (3.9, [115]) на достаточно плохом начальном состоянии было неплохо воспроизведено в области энергий 2ω , представляющих интерес (40–45 эВ, 3.8a). Полученное сечение двухфотонной ионизации представлено на 3.8b. Насколько известно автору диссертации, экспериментальные сечения двухфотонной ионизации гелия в литературе не представлены нигде, кроме [11], в которой были измерены отношения амплитуд ионизации в s - и d -каналы для трех точек по энергии. Полученные результаты, в целом согласуются данными, полученными с помощью других теоретических подходов [133–136]. Данные по относительным амплитудам [11] лучше всего соответствуют результатам [133], полученным с помощью В-сплайнового метода R-матрицы, развитого для двух электронов в континууме, в котором удалось получить правильное положение первого минимума в амплитуде s -волны.

Анализ показал, что $M = 40$ (3.21) достаточно для того, чтобы получить в спектре первые четыре резонанса, а $M = 60$ воспроизводит первые шесть резонансов. Сравнение рассчитанных энергий с экспериментальными значениями показано в таблице 4.

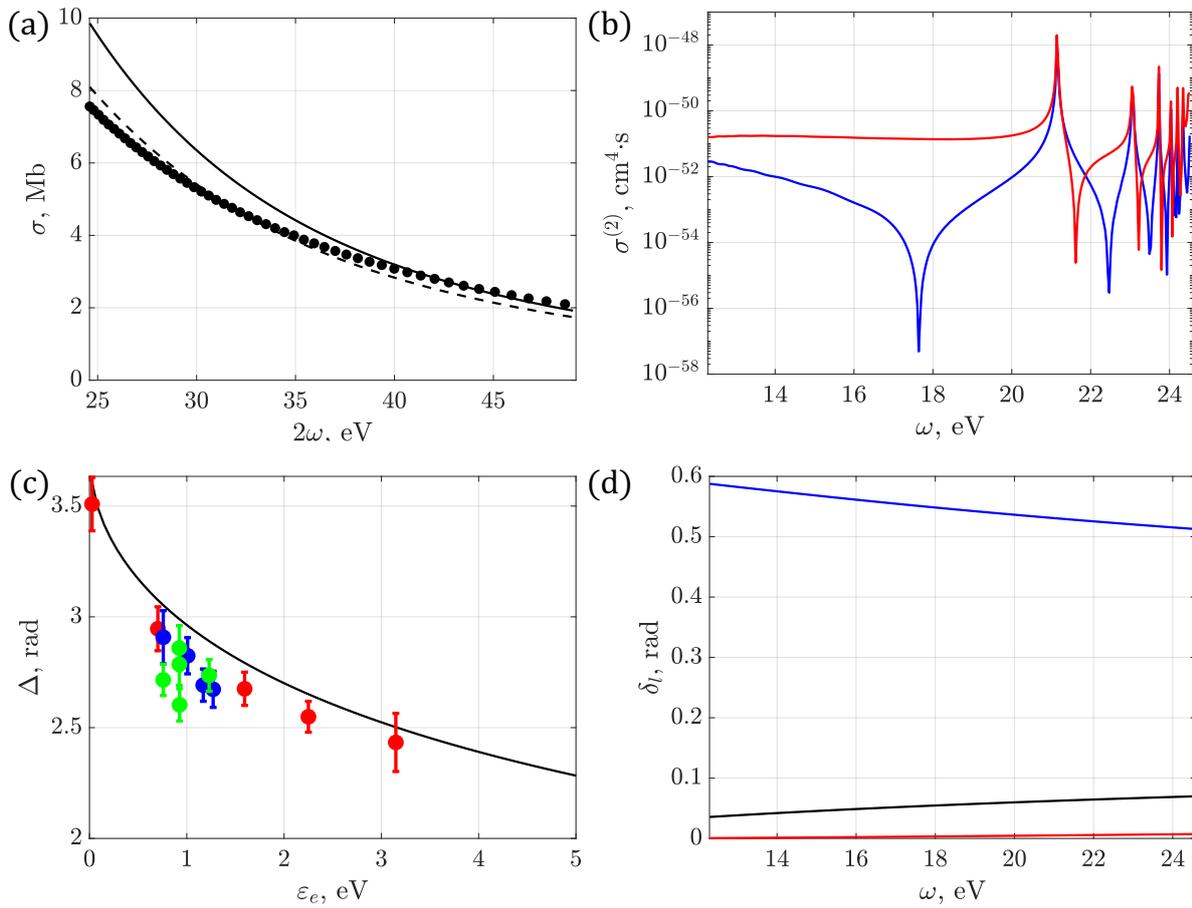


Рисунок 3.8 — а) Сечение однофотонной ионизации гелия в калибровках длины (черные сплошные линии) и скорости (пунктир) в сравнении с экспериментальными данными [115] (черные точки); б) парциальные сечения двухфотонной ионизации (синяя линия — в s -волну, красная — в d -волну); в) теоретическая (черная линия) и экспериментальная (красные [130], зеленые [131] и синие [132] кружки) разность фаз $\Delta = (\sigma_s + \delta_s) - (\sigma_d + \delta_d)$; д) Фазовые сдвиги парциальных волн (черная линия — p -волна, синяя — s -волна, красная — d -волна).

Таблица 4 — Теоретические и экспериментальные энергии первых np возбужденных состояний в атоме He.

Состояние	Теория	Эксперимент [40]
$1s2p^1P$	21.14	21.22
$1s3p^1P$	23.06	23.09
$1s4p^1P$	23.73	23.74
$1s5p^1P$	24.04	24.05
$1s6p^1P$	24.21	24.21
$1s7p^1P$	24.34	24.31

Глава 4. Результаты

В данной главе используются материалы, опубликованные в статьях [A1—A6; A8—A11].

4.1 Когерентный контроль

Если электромагнитное поле \mathbf{E} состоит из двух компонент с несущими частотами ω (основная или фундаментальная гармоника) и 2ω (вторая гармоника), то его вектор напряженности задается суммой:

$$\mathbf{E}_{\omega+2\omega}(t) = E_{\omega}(t)\mathbf{e}_{\omega}e^{-i\omega t} + E_{2\omega}(t)\mathbf{e}_{2\omega}e^{-i(2\omega t+\phi)}, \quad (4.1)$$

где $E_{\omega(2\omega)}(t)$ — медленно меняющиеся огибающие, определяющие форму импульса, $\mathbf{e}_{\omega(2\omega)}$ — единичные вектора поляризации полей, а ϕ — относительная разность фаз между гармониками. В этой главе мы используем одну огибающую для первой и второй гармоники: $\sin^2(\frac{\omega}{2N}t)$, а число оптических циклов в импульсе достаточно велико, чтобы пренебречь краевыми эффектами.

Частоты полей подобраны так, чтобы энергия фотона удвоенной частоты 2ω была выше порога ионизации атома, а энергия фотона ω — ниже. Тогда однофотонная “ 2ω ”-ионизация и двухфотонная “ $\omega + \omega$ ”-ионизация приводит к испусканию электрона одной энергии:

$$A + \left\{ \begin{array}{l} \hbar\omega + \hbar\omega \\ \hbar(2\omega) \end{array} \right\} \rightarrow A^+ + e^-. \quad (4.2)$$

На рис. 4.1 представлена схема “ $\omega + 2\omega$ ” ионизации атома Ne в диапазоне энергий фундаментальной гармоники 11–20.2 эВ — области энергий, для которой были выполнены расчеты. Фотон фундаментальной частоты ω сканирует области возбуждения нижних резонансов, что позволяет наблюдать эффект резонансного усиления двухфотонной ионизации и его влияние на параметры анизотропии фотоэмиссии.

Траектория движения вектора напряженности суммарного поля замкнута за период $T = 2\pi/\omega$, а ее форма зависит от взаимной ориентации и спиральности

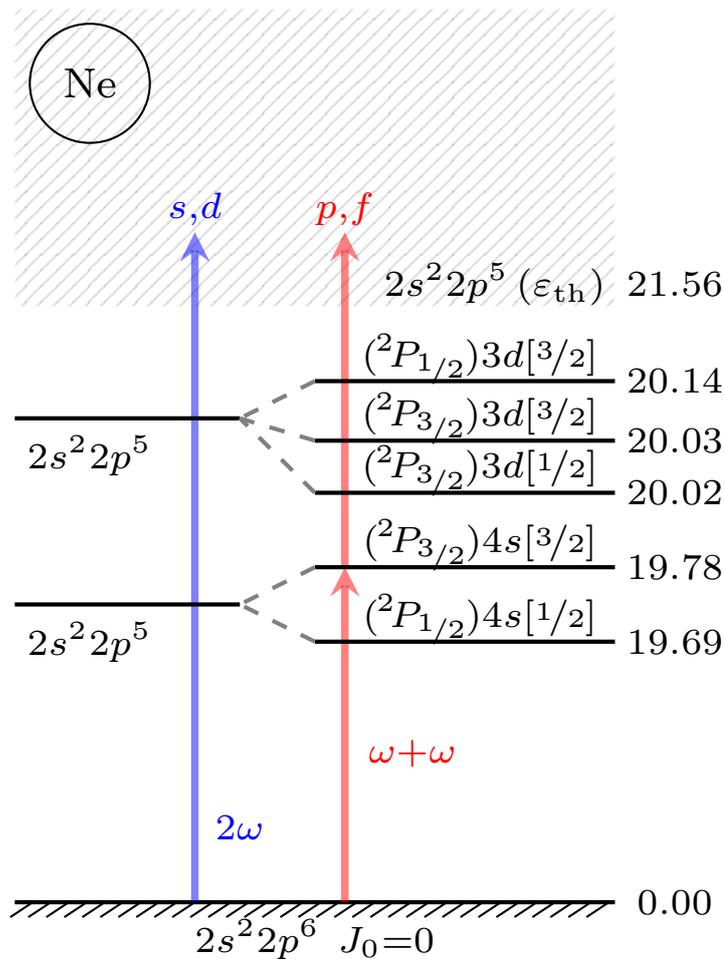


Рисунок 4.1 — схема “ $\omega + 2\omega$ ” ионизации атома Ne в диапазоне энергий фундаментальной гармоники 10.8–20.2 эВ.

эллипсов поляризации гармоник (рис. 4.2а). Примеры результирующего поля для некоторых из них представлены на рис. 4.2б–г. Для четырех приведенных примеров (б–е) результирующее поле лежит в плоскости, которая остается плоскостью симметрии и для наблюдаемых фотоэлектронов; для двух других примеров (ф,г) результирующее поле трехмерно. Зависимость формы огибающей электромагнитного поля от относительной фазы между гармониками ϕ может проявляться по-разному: так, для линейно поляризованных в одном направлении полей эта зависимость проявляется в разной по характеру временной зависимости величины напряженности электромагнитного поля от времени (рис. 4.2h; в работе Н. Барановой и Б. Зельдовича [19], пионеров исследования “ $\omega + 2\omega$ ” процесса в оптическом диапазоне, это свойство описывается в терминах нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)} \neq 0$). Для линейно поляризованных в перпендикулярных направлениях полей относительная фаза влияет на форму огибающей (рис. 4.2i), а для циркулярно поляризованных — только на ее ориентацию (рис. 4.2j–к).

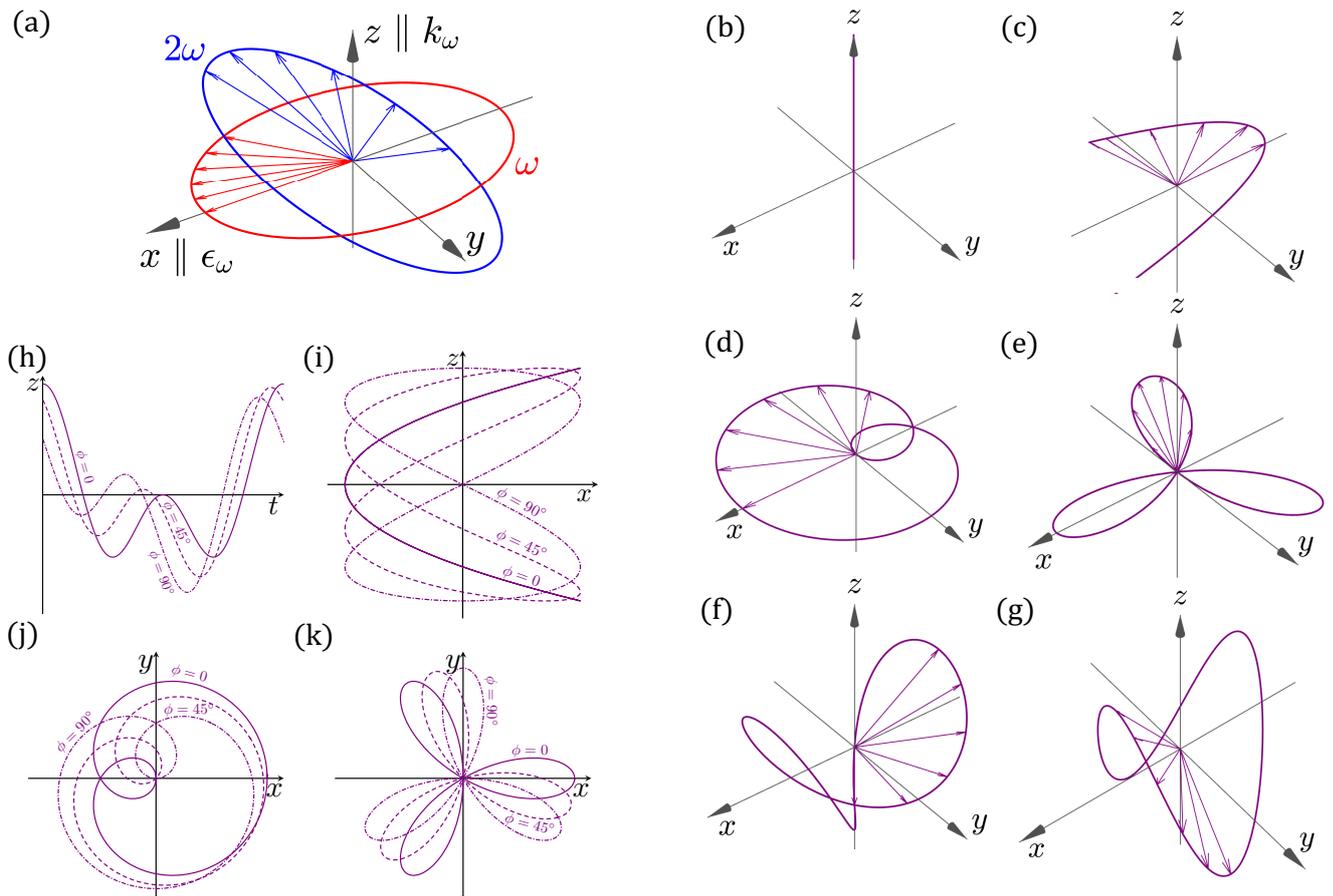


Рисунок 4.2 — (а) Эллипсы поляризации гармоник ω и 2ω могут быть направлены под произвольным углом друг другу и обладать разными эллиптичностью и спиральностями. (b)-(g) — формы огибающих суммарного поля при некоторых конфигурациях гармоник и нулевой фазе ϕ между ними: (b) линейно поляризованные вдоль оси z ; (c) линейно поляризованные вдоль оси z (основная) и вдоль оси x (вторая); циркулярно поляризованные в плоскости xy (d) с одинаковой спиральностями; (e) с противоположными спиральностями; (f) основная гармоника линейно поляризована вдоль оси z , вторая гармоника циркулярно поляризована в плоскости xy ; (g) основная гармоника циркулярно поляризована в плоскости xy , вторая гармоника линейно поляризована вдоль оси z . Стрелки показывают направление и величину мгновенного электрического поля. (h)-(k) — формы огибающих суммарного поля при некоторых конфигурациях гармоник и относительных фазах между ними $\phi = 0$ (сплошные линии), $\phi = 45^\circ$ (пунктирные линии), $\phi = 90^\circ$ (штрих-пунктирные линии): (h) для геометрии (b); (i) для геометрии (c); (j) для геометрии (d); (k) для геометрии (e).

Чтобы проанализировать геометрические свойства бихроматического поля, без потери общности можно ввести декартову систему координат $'xyz'$ так, чтобы эллипс поляризации основной гармоники ω лежал в плоскости $'xy'$ с большей

полуосью, сонаправленной с осью x (рис. 4.2а). Тогда поле ω может быть представлено в виде разложения по базису циклических ковариантных орт [36] $n_{\lambda=\pm}$: $e_{\omega} = e^{+}n_{+} + e^{-}n_{-}$ (2.31). Для второй гармоники 2ω в этой системе координат возможно появление компоненты $e^0 n_{\lambda=0}$, сонаправленной с осью z . Выбор разложения эллипсов поляризации в циклическом базисе связан с удобством построения статистического тензора электрического поля 4.3 (см. раздел 2.2.3).

В статистическом тензоре бихроматического поля можно выделить три части, соответствующие переходу в конечное состояние с определенной энергией ε_f : слагаемое, происходящее от поглощения одного фотона энергии 2ω , что соответствует однофотонной ионизации атома; слагаемое, происходящее от поглощения двух фотонов энергии ω , что соответствует двухфотонной ионизации ($\omega + \omega$); и их интерференция ($\omega + 2\omega$):

$$\rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}} = \rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}^{2\omega,2\omega} + \rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}^{\omega+\omega,\omega+\omega} + \left(\rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}^{\omega+\omega,2\omega} + \rho_{k_{\gamma}q_{\gamma}}^{2\omega,\omega+\omega} \right). \quad (4.3)$$

Компоненты статистических тензоров, выраженные через разложения по проекциям на орты $e_{\lambda=0,\pm}$, представлены в таблицах 5–7 (индексы $\omega^{(2\omega)}$ опущены для краткости записи).

Таблица 5 — Компоненты статистического тензора дипольного фотона $\rho_{kq}^{2\omega,2\omega}(J,J')$

$kq \setminus JJ'$	1,1
00	$1/\sqrt{3}$
10	$(e^{+} ^2 - e^{-} ^2)/\sqrt{2}$
11	$-(e^{-*}e^0 + e^{+}e^{0*})/\sqrt{2}$
20	$(1 - 3 e^0 ^2)/\sqrt{6}$
21	$(e^0p^{-*} - e^{+}e^{0*})/\sqrt{2}$
22	$e^{+}e^{-*}$

Как видно из таблицы 5, в собственной системе фотона статистические тензоры с нечетной проекцией запрещены. Для циркулярно поляризованного поля $P_c = 1$, что соответствует $e^{+}(e^{-}) = 1$, разрешены только компоненты с $q = 0$.

Как видно из таблицы 6, полный момент $J = 0$ возможен, только если поле содержит и правую, и левую компоненты, то есть $P_c \neq 1$. При этом, если поле поляризовано линейно ($e^{+} = e^{-}$, $P_l = 1$), то нечетные ранги исчезают. Если поле циркулярно поляризовано $e^{+}(e^{-}) = 1$, то разрешены только ранги с нулевой проекцией.

Таблица 6 — Компоненты статистического тензора двух одинаковых дипольных фотонов $\rho_{kq}^{\omega+\omega, \omega+\omega}(J, J')$

$kq \setminus JJ'$	0,0
00	$4 e^- ^2 e^+ ^2/3$
$kq \setminus JJ'$	0,2
20	$2\sqrt{2} e^- ^2 e^+ ^2/3$
22	$2e^+e^{-*} e^- ^2/\sqrt{3}$
$kq \setminus JJ'$	2,2
00	$\sqrt{5}(3 - 4 e^- ^2 e^+ ^2)/15$
10	$-\sqrt{10}(e^- ^2 - e^+ ^2)/5$
20	$\sqrt{14}(3 - 8 e^- ^2 e^+ ^2)/21$
22	$2e^+e^{-*}/\sqrt{21}$
30	$(e^+ ^2 - e^- ^2)/\sqrt{10}$
32	$e^+e^{-*}(e^+ ^2 - e^- ^2)/\sqrt{3}$
40	$(1 + 2 e^- ^2 e^+ ^2)/\sqrt{70}$
42	$e^+e^{-*}/\sqrt{7}$
44	$e^{+2}(e^{-*})^2$

Компоненты представленных тензоров $\rho_{kq}^{2\omega, 2\omega}(J, J')$ и $\rho_{kq}^{\omega+\omega, \omega+\omega}(J, J')$ могут также быть выражены через параметры Стокса P_1 , P_2 , и P_3 (для однофотонного см. [37]). Однако для интерференционных компонент $\rho_{k_\gamma q_\gamma}^{\omega+\omega, 2\omega}$ и $\rho_{k_\gamma q_\gamma}^{2\omega, \omega+\omega}$ это невозможно.

Из таблицы 7 видно, что четные проекции у нечетных рангов появляются при обязательном условии $e^0 \neq 0$, что соответствует случаю, когда вторая гармоника распространяется под некоторым углом к основной.

В коде, реализованном автором диссертации для построения статистических тензоров полей заданием эллиптичности и положением главной оси эллипса относительно лабораторной системы координат, ограничения для ω -компоненты как лежащей исключительно в плоскости xy нет: последнее было введено лишь для того, чтобы компоненты статистических тензоров были более доступны для анализа.

Рассмотрим далее общие черты ионизации атомов бихроматическим полем описанного вида.

Таблица 7 — Интерференционные компоненты статистического тензора поля $\omega + 2\omega$ $\rho_{kq}^{2\omega, \omega+\omega}(J, J')$ (сопряженные коэффициенты соответствуют основной гармонике ω)

$kq \backslash JJ'$	1,0
10	$2e^0 e^{-*} e^{+*} / \sqrt{3}$
11	$2e^+(e^{-*})^2 / \sqrt{15}$
$kq \backslash JJ'$	1,2
10	$-2e^0 e^{-*} e^{+*} / \sqrt{15}$
11	$e^{-*}(3e^{-*} e^- + e^{+*} e^+) / \sqrt{15}$
21	$e^{-*}(e^{+*} e^+ - e^{-*} e^-) / \sqrt{3}$
22	$-\sqrt{6} e^0 (e^{-*})^2 / 3$
30	$\sqrt{10} e^0 e^{-*} e^{+*} / 5$
31	$e^{-*}(e^{-*} e^- + 2e^{+*} e^+) / \sqrt{15}$
32	$e^0 (e^{-*})^2 / \sqrt{3}$
33	$e^+(e^{-*})^2$

4.1.1 Общие свойства угловых распределений фотоэлектронов при бихроматической ионизации

Напомним, что угловое распределение фотоэлектронов (PAD) может быть представлено в следующей форме (см. выражение 2.57):

$$W(\vartheta, \varphi) = \frac{\sigma}{4\pi} \sum_{k, |q| \leq 4} \beta_{kq} Y_{kq}(\vartheta, \varphi). \quad (4.4)$$

Во втором порядке теории возмущений и дипольном приближении $k \leq 4$, а $\beta_{kq} \equiv \sum_{J_\gamma J'_\gamma} B_{k0k}(J_\gamma, J'_\gamma) \rho_{kq}(J_\gamma, J'_\gamma) = (-1)^q \beta_{k-q}^*$. Из анализа коэффициентов Клебша-Гордана в (2.46), (2.55) следует вывод, что вклад в угловое распределение (4.4) дают только четные ранги фотонных статистических тензоров $\rho_{kq}^{2\omega, 2\omega}$ и $\rho_{kq}^{\omega+\omega, \omega+\omega}$ и только нечетные — от тензоров $\rho_{kq}^{2\omega, \omega+\omega}$ и $\rho_{kq}^{\omega+\omega, 2\omega}$. Поэтому параметры β_{kq} четных рангов появляются в результате одно- или двухфотонной ионизации; параметры β_{kq} нечетных рангов имеют интерференционную природу и зависят от разности фаз между гармониками φ . Параметры β_{k0} действительны, остальные могут быть комплексными. Последнее приводит к тому, что максимумы и минимумы PAD не совпадают с экстремумами сферических гармоник.

Важно отметить, что в общем случае PAD не наследует симметрию поля, в отличие от ионизации двумя некогерентными гармониками.

Угловые распределения фотоэлектронов определяются взаимной ориентацией и степенью эллиптичности ω и 2ω -компонент. Это естественно, так как и в обычной одно- или двухфотонной (рис. 4.3а,е) ионизации как PAD, так и интегральное сечение зависят от поляризации излучения. На рис. 4.3b–d,f–h представлены типичные формы PAD при различных конфигурациях полей в модельных расчетах (которые здесь и далее означают, что данные представлены для атома Ne с BSR спектроскопией, энергии основной гармоники $\omega = 19.78$, соответствующая возбуждению $2p^5(2P_{3/2})4s[\frac{3}{2}]$ резонанса, импульса длиной $N = 500$ оптических циклов (порядка 100 фемтосекунд); напряженностей компонент электромагнитного поля $|E_\omega| = 5.338 \cdot 10^{-3}$ а.е., $E_{2\omega}/E_\omega = \sqrt{0.001}$; и нулевой разности фаз между ними $\phi = 0$). В верхнем ряду (b–d) к линейно поляризованной основной гармонике добавляется малая примесь второй гармоники, в нижнем (f–h) основная гармоника циркулярно поляризована.

PAD при двухфотонной ионизации линейно поляризованным (вдоль оси z) полем обладает осью (z) и плоскостью (xy) симметрии, при добавлении линейно поляризованной вдоль оси z второй гармоники теряется плоскость симметрии, а, если она линейно поляризована вдоль оси x или циркулярно поляризована в плоскости xy , то теряется ось симметрии, и вместо нее появляется плоскость (xz). PAD при двухфотонной ионизации циркулярно поляризованным (в плоскости xy) полем также обладает осью (z) и плоскостью (xy) симметрии, и при добавлении циркулярно поляризованной в плоскости xy второй гармоники теряется ось симметрии, а при добавлении линейно поляризованной (вдоль оси z) — теряется плоскость симметрии xy , а ось симметрии z преобразуется в две плоскости xz и yz .

То есть во всех случаях при добавлении примеси второй гармоники происходит уменьшение общей симметрии PAD, степень которой можно измерять.

Каждая пара амплитуд, отвечающих за интерференцию одно- и двухфотонных переходов (2.39) и (2.40), имеет одинаковую зависимость от фазы между гармониками $A_{J_i J_\gamma J_f} A_{J_i J'_\gamma J'_f}^* \sim \exp[\mp i(\phi - \delta_{J_f J'_f})]$, где знак зависит от того, какая амплитуда — одно- или двухфотонная — сопряжена, а $\delta_{J_f J'_f}$ — разность фаз в соответствующих каналах реакции. По правилам сложения тригонометрических функций каждая компонента статистического тензора, отвечающая за интерфе-

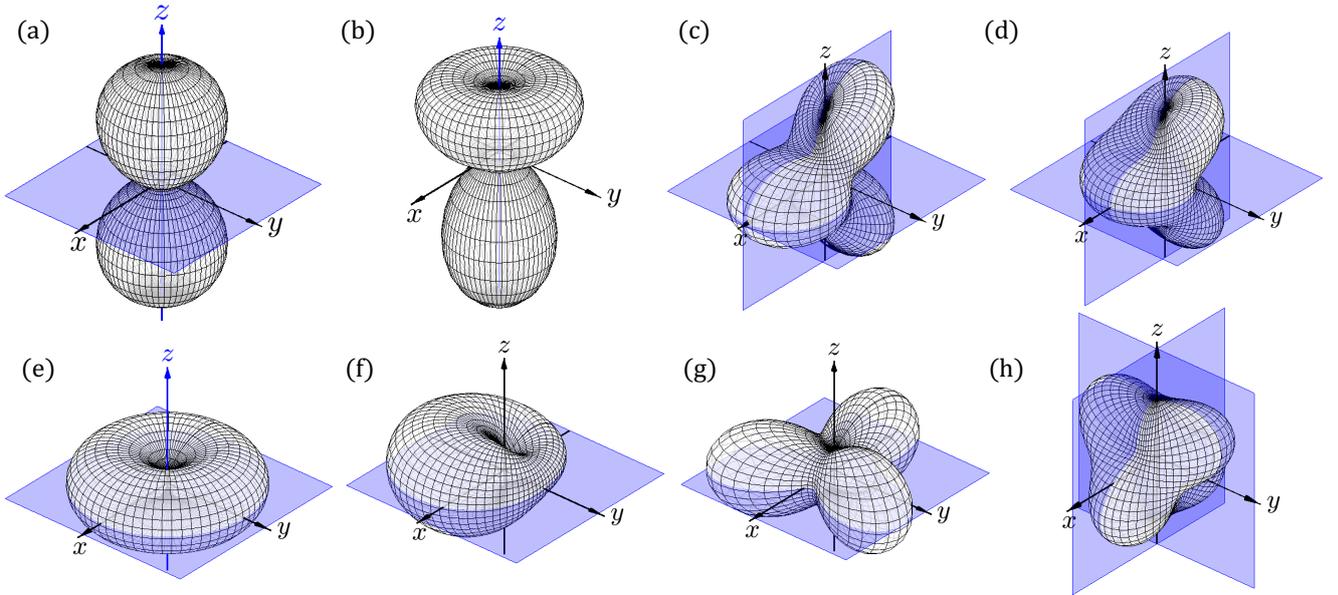


Рисунок 4.3 — (a) PAD при двухфотонной ионизации линейно поляризованным вдоль оси z излучением. (b)-(d) PAD “a” при добавлении небольшой примеси когерентного излучения на второй гармонике: (b) линейно поляризованного вдоль оси z ; (c) Линейно поляризованного вдоль оси x ; (d) Циркулярно поляризованного в плоскости xy . (e) PAD при двухфотонной ионизации циркулярно поляризованным в плоскости xy излучением. (f)-(h) PAD “e” при добавлении небольшой примеси когерентного излучения на второй гармонике: (f) циркулярно поляризованного в плоскости xy той же спиральности; (g) циркулярно поляризованного в плоскости xy противоположной спиральности; (h) линейно поляризованного вдоль оси z .

ренцию, будет иметь зависимость

$$\cos(\phi - \phi_{\max}), \quad (4.5)$$

где фаза ϕ_{\max} будет определена ниже.

Как следует из (4.5), зависимость формы углового распределения (4.4) от фазы между полями всегда может быть параметризована:

$$W = S_1(\vartheta, \varphi) + S_2(\vartheta, \varphi) \cos(\phi - \phi_{\max}(\vartheta, \varphi)), \quad (4.6)$$

где $S_1(\vartheta, \varphi)$ и $S_2(\vartheta, \varphi)$ — вклад от некогерентной суммы одно- и двухфотонных переходов и их интерференции, соответственно, а ϕ_{\max} — фаза, при которой число фотоэлектронов в данном направлении $\{\vartheta, \varphi\}$ максимально. $S_1(\vartheta, \varphi)$, $S_2(\vartheta, \varphi)$ и ϕ_{\max} являются сложными функциями сферических координат, и только в некоторых случаях влияние фазы между гармониками на форму PAD поддается

простому описанию. Например, для циркулярно поляризованных в одной плоскости гармоник изменение фазы вызывает поворот PAD в пространстве [A1].

Основываясь на вышесказанном, в диссертации предлагается выбрать следующий критерий когерентного контроля:

$$C(\vartheta, \varphi) = \left| \frac{W(\vartheta, \varphi)_{\varphi=\varphi_{\max}} - W(\vartheta, \varphi)_{\varphi=\varphi_{\max}+\pi}}{W(\vartheta, \varphi)_{\varphi=\varphi_{\max}} + W(\vartheta, \varphi)_{\varphi=\varphi_{\max}+\pi}} \right|. \quad (4.7)$$

Отметим, что он является обобщением критериев, принятых в [A1; 16] для описания взаимодействия с линейно и циркулярно поляризованными полями. Очевидно, что эффективность когерентного контроля $C(\vartheta, \varphi) \leq 1$ будет разной в разных направлениях, и в общем случае оказывается невозможным выделить какое-то одно из них. Если для некоторых $\{\vartheta', \varphi'\}$ величина $C(\vartheta', \varphi') = 1$, то можно говорить о достижении полного когерентного контроля в этом направлении.

Развитый подход позволяет проследить трансформацию углового распределения фотоэлектронов при изменении поляризации полей между выделенными конфигурациями с простой параметризацией, которые уже были рассмотрены ранее в работах [A1; A4; 16], а именно для линейно и циркулярно поляризованных полей, находящихся в одной плоскости (рис. 4.4). Для полей, поляризованных в одной плоскости, неинтерференционные слагаемые дают вклад в компоненты разложения с $k = 0, 2, 4$, $q = 0, \pm 2, \pm 4$, а интерференционные — в $k = 1, 3$, $q = \pm 1, \pm 3$. Таким образом, в 4.4 остаются только четные гармоники с четными проекциями и нечетные гармоники с нечетными проекциями. Плоскость поляризации, очевидно, является плоскостью симметрии углового распределения электронов, а сечение фотоионизации в ней максимально. Вне этой плоскости нет каких-либо особенностей, поэтому можно ограничиться рассмотрением PAD в ее сечении.

Слагаемое с $q = \pm 3$, соответствующее тензору третьего ранга, происходит от интерференции компонент противоположных спиральностей (см. таблицу 7), и обладает симметрией поворота на $120^\circ D_{3h}$, для него существует три плоскости симметрии, перпендикулярных плоскости поляризации. Слагаемые с $q = \pm 1$ происходят от интерференции компонент одинаковых спиральностей.

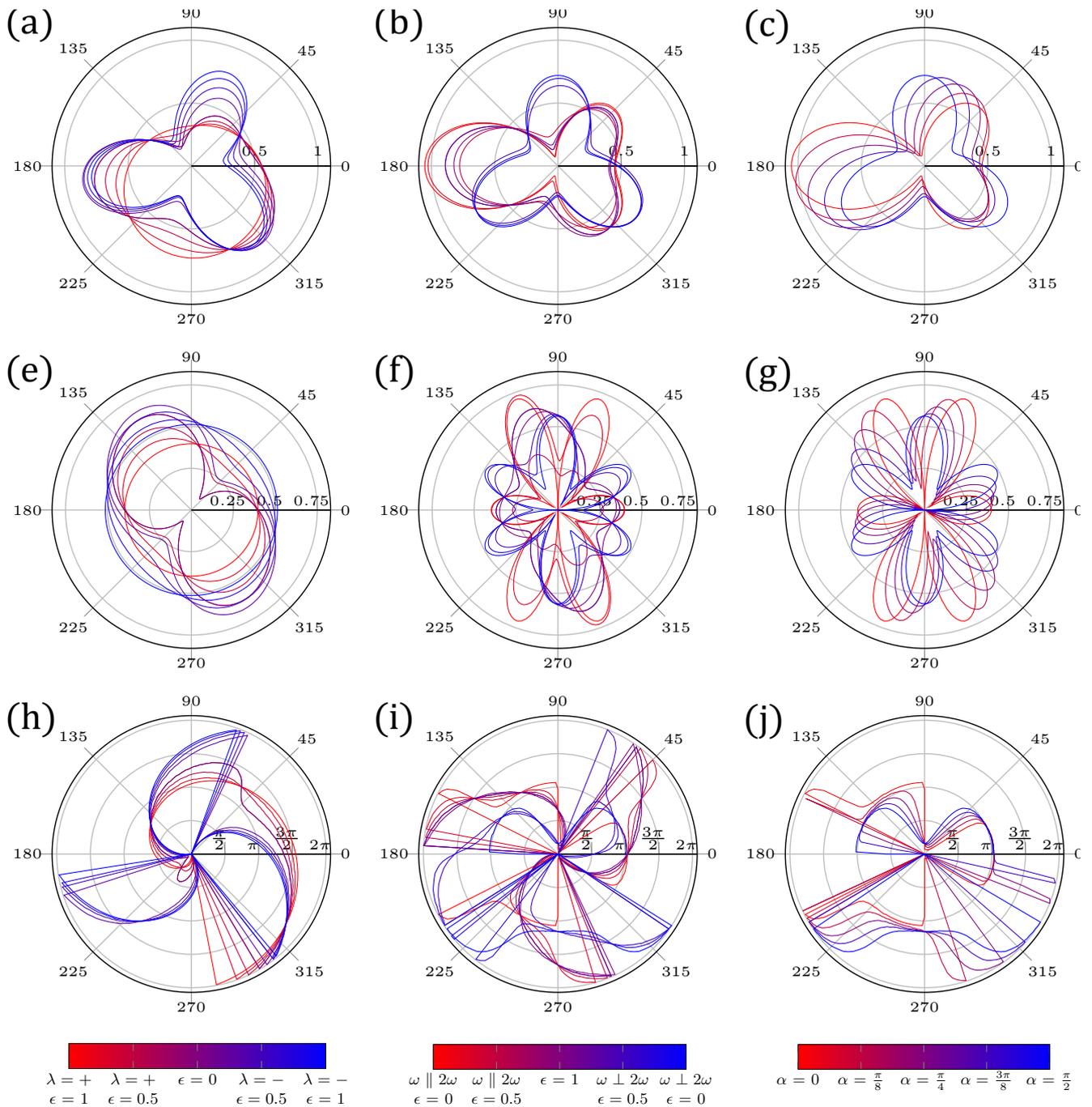


Рисунок 4.4 — Трансформация PAD в плоскости поляризации гармоник ($\varphi = 0$): (a) круговой право поляризованной основной гармоники ($\epsilon = 1, \lambda = +$) при изменении эллиптичности и спиральности второй гармоники от круговой право поляризованной ($\epsilon = 1, \lambda = +$, красная линия) до круговой лево поляризованной ($\epsilon = 1, \lambda = -$, синяя); (b) линейно поляризованной основной по оси x гармоники ($\epsilon = 0, \alpha = 0$) при изменении эллиптичности и ориентации главной оси поляризации второй гармоники от сонаправленной линейно поляризованной ($\epsilon = 0$, красная) до линейно поляризованной перпендикулярно основной ($\epsilon = 0$, синяя). (c) линейно поляризованной основной по оси x гармоники ($\epsilon = 0, \alpha = 0$) при изменении направления линейной поляризации второй гармоники от сонаправленной ($\alpha = 0$) до перпендикулярной ($\alpha = \pi/2$); (e)–(g) и (h)–(j) Степень когерентного контроля $C(\vartheta, \varphi)$ и $\Phi_{\max}(\vartheta, \varphi)$ 4.7 для трансформаций (a)–(c).

Так как первый и третий ранги зависят от полярного угла по-разному, плоскости симметрии, перпендикулярной плоскости поляризации, в общем случае не существует. Возникает она, например, при ионизации s -оболочки [137] за счет уменьшения числа каналов.

Неинтерференционные члены с $q = \pm 2, \pm 4$, соответствующие тензорам второго и четвертого ранга, возникают при значениях эллиптичности полей $\varepsilon < 1$ (см. таблицы 5 и 6) и максимальны для линейно поляризованных полей $\varepsilon = 0$. Они приводят к появлению слагаемых с симметрией D_{2h} и D_{4h} .

На рисунке 4.4а красная и синяя линии соответствуют предельным случаям гармоник круговой поляризации с одинаковой и противоположной спиральностями соответственно, рассмотренными в [A1], неакцентированные линии соответствуют промежуточным значениям эллиптичности $\varepsilon < 1$. Основная гармоника при этом всегда имеет правую круговую поляризацию. В предельных случаях вклады как от однофотонной ионизации, так и от двухфотонной обладают аксиальной симметрией, и результирующая симметрия PAD определяется только интерференционным членом.

Два других примера трансформации (см. рис. 4.4b,c): при фиксированной линейной поляризации основной гармоники поляризация второй меняется от линейной вдоль оси x до линейной вдоль оси y за счет (b) изменения эллиптичности ε от 0 до 1 и обратно или (c) изменения угла вектора ее поляризации α относительно оси x . Красная и синяя линии соответствуют предельным случаям параллельно и перпендикулярно поляризованных полей, рассмотренных в [A4; 16]. В первом случае PAD аксиально симметрично относительно оси x , во втором появляется плоскость симметрии yz , перпендикулярная плоскости xy , содержащей вектора поляризации.

На рисунках 4.4e–g показана степень когерентного контроля $C(\vartheta, \varphi)$ (4.7) для поляризаций полей, показанных на рисунках 4.4a–c, соответственно. Синяя и красная линия на рисунке 4.4e представляют собой окружности, так как для полей круговой поляризации изменение фазы вызывает поворот PAD в пространстве, и поэтому с точки зрения осуществления когерентного контроля какое-либо выделенное направление отсутствует. Для циркулярно поляризованной основной гармоники (рис. 4.4c) угловая зависимость $C(\vartheta, \varphi)$ является более плавной, чем для линейно поляризованной (рис. 4.4f,g), а ярко выраженные экстремумы возникают только тогда, когда вторая гармоника поляризована линейно. Фаза, при которой под данным углом степень когерентного контроля будет максимальна

(рис. 4.4h–j), плавно меняется во всех случаях (видимые резкие скачки нефизичны и соответствуют ограничению области определения фазы $\Phi_{\max}(\vartheta, \varphi)$ от 0 до 2π радиан).

4.1.2 Когерентный контроль в области низших возбужденных состояний неона: расчеты и сравнение с экспериментом

Для линейно поляризованных в одном направлении ($e_{\omega} \parallel e_{2\omega} \parallel z$) полей степень асимметрии 4.7 можно свести к максимальной асимметрии “вперед-назад” $A_{\max}(0)$ [16] (напомним, что от угла φ PAD в этом случае не зависит — см. рис. 4.3b):

$$A_{\max}(0) = \left| \frac{W(\vartheta = 0)_{\Phi=\Phi_{\max}} - W(\vartheta = \pi)_{\Phi=\Phi_{\max}}}{W(\vartheta = 0)_{\Phi=\Phi_{\max}} + W(\vartheta = \pi)_{\Phi=\Phi_{\max}}} \right|. \quad (4.8)$$

Наличие аксиальной симметрии является преимуществом такой геометрии как для постановки эксперимента, так и для его интерпретации. Выражение 4.8 так же может быть записано через коэффициенты при полиномах Лежандра $P_k(\cos \vartheta)$, описывающих PAD в этом случае:

$$W(\vartheta) = \frac{\sigma}{4\pi} \sum_{k \leq 4} \beta_k(\Phi) P_k(\cos \vartheta), \quad (4.9)$$

$$\sigma = \sum_{n=1,2} \sum_{lK_f} \left| \frac{1}{(\sqrt{3})^{n-1}} A_{J_i J_\gamma J_f}^{lK_f(n)} \right|^2, \quad (4.10)$$

$$\beta_k = \sum_{n,n'=1,2} \sum_{l'l'K_f K'_f} (-1)^{J_c-1/2} \frac{1}{(\sqrt{3})^{n+n'-2}} \hat{l}' \hat{K}_f \hat{K}'_f(10, 10 | k0)(l0, l'0 | k0) \left\{ \begin{matrix} k & 1 & 1 \\ \frac{1}{2} & K'_f & K_f \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} k & l & l' \\ J_c & K'_f & K_f \end{matrix} \right\} A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f(n)} A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f(n)}, \quad (4.11)$$

а именно:

$$A_{\max}(0) = \frac{|(\beta_1 + \beta_3)_{\Phi=0} + i(\beta_1 + \beta_3)_{\Phi=\pi/2}|}{1 + \beta_2 + \beta_4}, \quad (4.12)$$

$$\Phi_{\max}(0) = \arg [(\beta_1 + \beta_3)_{\Phi=0} + i(\beta_1 + \beta_3)_{\Phi=\pi/2}]. \quad (4.13)$$

Здесь еще раз напомним, что параметры асимметрии четных рангов в разложении 4.9 появляются в результате прямой одно- или двухфотонной ионизации, а параметры асимметрии нечетных рангов — в результате их интерференции.

Дополнительным преимуществом этой геометрии является то, что при интегрировании 4.8 по полусфере для увеличения статистики наблюдаемый эффект не будет слишком сильно ослаблен. Интегральная по полусфере асимметрия, описываемая выражением:

$$A_\omega = 0.5|(\beta_1 - 0.25\beta_3)_{\phi=0} + i(\beta_1 - 0.25\beta_3)_{\phi=\pi/2}|, \quad (4.14)$$

$$\phi_\omega = \arg[(\beta_1 - 0.25\beta_3)_{\phi=0} + i(\beta_1 - 0.25\beta_3)_{\phi=\pi/2}], \quad (4.15)$$

в работе [A5] была измерена в неоне в области энергий $\omega = 19.66\text{--}20.20$ эВ с шагом $0.05\div 0.1$ эВ.

Эксперимент проводился на ЛСЭ FERMI [1]. Длительность импульсов (FWHM) была оценена в 60 фс, а пиковая интенсивность основной частоты $\omega \approx 10^{13}$ Вт/см², и второй гармоники $2\omega \approx 2 \cdot 10^{10}$ Вт/см². Теоретические расчеты проводились в рамках описываемой теории для параметров импульса $N = 500$, $|E_\omega| = 5.338 \cdot 10^{-3}$, $E_{2\omega}/E_\omega = 0.2$ в jK -схеме связи со спектроскопией, рассчитанной методом R-матрицы, представленной в разделе 3.2.

Пучок фотонов пересекался с холодной атомной струей, состоящей из смеси гелия и неона. Так как интенсивность и длительность пучка на FEL варьируется от импульса к импульсу, гелий, имеющий хорошо известное монотонное сечение в этой области энергий [115], служил в качестве монитора. Процент смеси был оптимизирован для получения сравнимых фотоэлектронных сигналов для двух газов. Фотоэлектроны детектировались с помощью VMI-детектора. Схема эксперимента и один из полученных спектров изображены на рис. 4.5а. Для нахождения максимальной интегральной по углу асимметрии был использован тот факт, что, асимметрия, согласно выражениям (4.6) и (4.8), является гармонической функцией фазы между гармониками $\phi = 2\omega\tau$, где τ — время задержки импульса второй гармоники относительно первой, которое можно регулировать с помощью фазовращателя:

$$A_\omega(\phi) = A_\omega \cos(2\omega\tau - \phi_\omega). \quad (4.16)$$

Поэтому для каждой задержки τ от 0 до 210 ас, соответствующей удвоенному периоду второй гармоники, с шагом 13.2 ас, было выполнено 3000 последовательных снимков, полученные спектры были очищены от шумов и проинтегрированы по противоположным полусферам для нахождения асимметрии. Полученные результаты для неона ($A_\omega^{(n)}$, левая колонка, красные точки) и гелия ($A_\omega^{(h)}$, правая колонка, синие точки) представлены на рис. 4.5b.

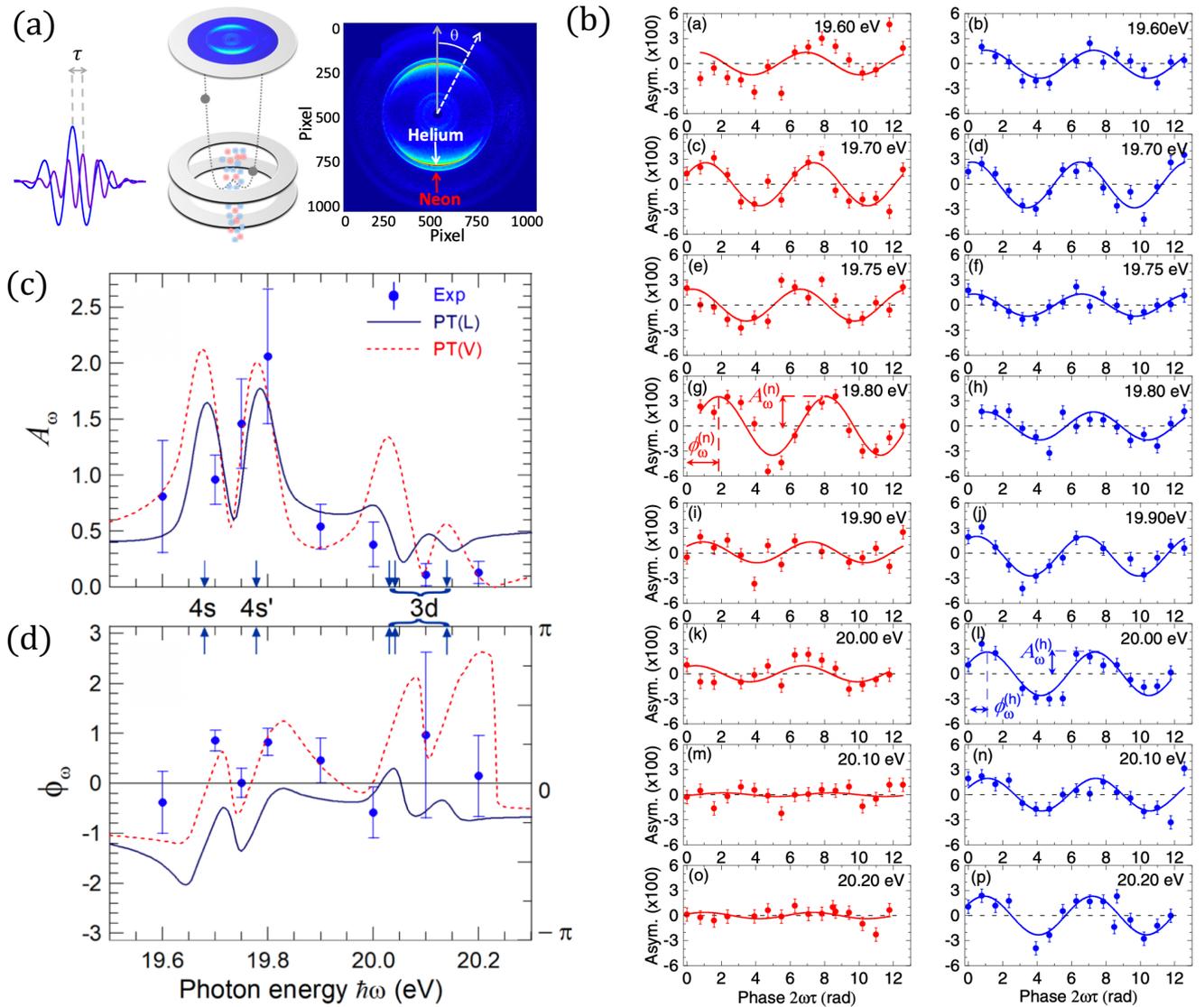


Рисунок 4.5 — (a) Схематическое изображение эксперимента: гармоники ω и 2ω с задержкой τ ионизируют неон-гелиевую газовую струю, сигнал фотоэлектронов детектируются VMI-детектором. Внутреннее и внешнее кольца соответствуют фотоэлектронам, генерируемым в гелии и неоне. Серая линия указывает направление поляризации импульса ЛСЭ. Угол ϑ определяет направление эмиссии фотоэлектронов. (b) Экспериментальная асимметрия между электронами, вылетевшими в верхнюю и нижнюю полусферы как функция относительной фазы $2\omega\tau$ между двумя гармониками в неоне $A_\omega^{(n)}$ (красные кружки) и гелии $A_\omega^{(h)}$ (синие кружки). Сплошные линии представляют собой фитирование функцией синуса. (c) Отношение амплитуд $A_\omega = A_\omega^{(n)}/A_\omega^{(h)}$ и (d) разности фаз $\phi_\omega = \phi_\omega^{(n)} - \phi_\omega^{(h)}$ в зависимости от энергии фотона. Энергии резонансных состояний в неоне указаны на горизонтальной оси. Сплошные темно-синие и пунктирные красные линии соответствуют расчетам РТ в формах длины (L) и скорости (V), а синие кружки представляют собой экспериментальные точки.

Сплошные линии представляют фитирование функцией синуса, из которой, согласно выражению (4.16), можно извлечь величину максимальной асимметрии A_ω и фазу ϕ_ω , при которой она достигается.

На рисунках 4.5с и 4.5d представлены $A_\omega = A_\omega^{(n)}/A_\omega^{(h)}$ и разности фаз $\phi_\omega = \phi_\omega^{(n)} - \phi_\omega^{(h)}$ в области возбуждения $2p^5(^2P_{3/2})4s[\frac{3}{2}] - 2p^5(^2P_{1/2})3d[\frac{3}{2}]$ резонансов в неоне (см. рис. 4.1). Положения этих резонансов указаны стрелочками. Видно (ожидаемое из теоретических соображение) резкое изменение величины максимальной асимметрии и фазы в зависимости от энергии фотона в области возбуждения $4s, 4s'$ состояний $2p^5(^2P_{1/2})4s[\frac{1}{2}]$ и $2p^5(^2P_{3/2})4s[\frac{3}{2}]$, однако для “3d” резонансов такой зависимости нет, что может быть объяснено наличием минимума в амплитудах ионизации из этих возбужденных состояний в данной области энергий. Примечательно, что, хотя в каждой парциальной амплитуде ионизации из этих резонансов в расчетах наблюдается минимум, находится он при слегка различных энергиях, и при суммировании по всем каналам начинает заполняться. Итоговая глубина минимума может существенно различаться даже в рамках одной модели в разных калибровках. Так, в расчетах в форме длины (темно-синяя сплошная линия) вклад от резонансной двухфотонной ионизации меньше однофотонного сигнала, а форме скорости (красная пунктирная линия) минимум оказывается заполнен, двухфотонный сигнал различим на фоне однофотонного, и интерференция оказывается более эффективной. Теоретические кривые для неона были нормированы на результаты *ab initio* TDSE расчетов для гелия в модели, описанной в [138].

Представляет интерес последовательное теоретическое исследование зависимости асимметрии от параметров излучения, необходимое для планирования последующих экспериментов. Так, например, на рисунке 4.6а,б представлена фаза и амплитуда асимметрии под нулевым углом $A_{\max}(0)$ ($N = 500$, $|E_\omega| = 5.338 \cdot 10^{-3}$, $\eta = E_{2\omega}/E_\omega = 0.1$) в области энергий ω , соответствующих возбуждению нижних резонансов в неоне (см. рис. 4.1), в рамках модели, что была описана выше. Расчеты в рамках простой MCHF-модели, TDSE и стационарной теории возмущений для этих же параметров были представлены в работе [16].

Отличия в длине и скорости вызваны разной величиной матричных элементов перехода в этих калибровках в модели R-матрицы. Так же, как и в [16], прямые нерезонансные переходы в f -волну, слабо зависящие от энергии в этой области [139], были учтены добавлением постоянного (потенциального) члена. Потенци-

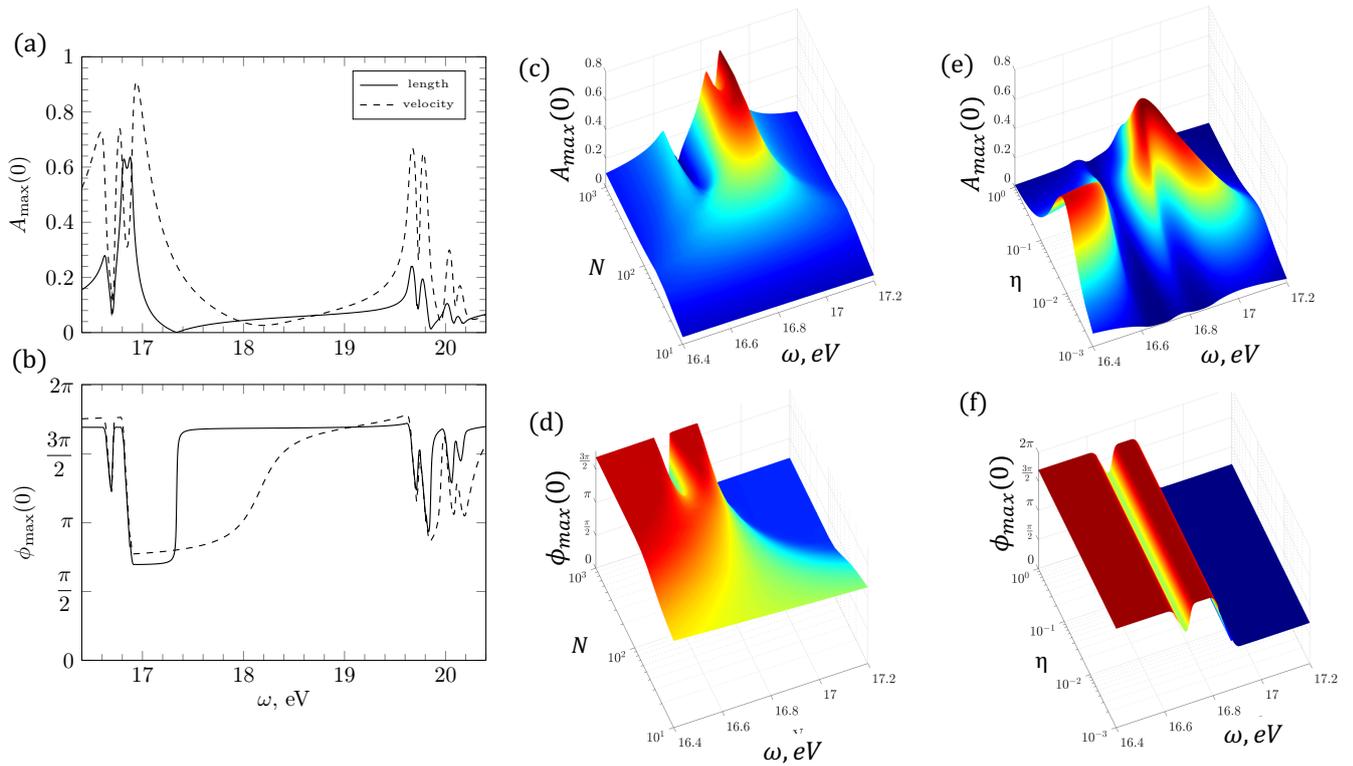


Рисунок 4.6 — (a) Асимметрия $A_{\max}(0)$ и (b) фаза $\phi_{\max}(0)$ в калибровке длины (сплошные черные линии) и скорости (пунктирные черные линии) как функции энергии основной гармоники. Параметры импульса: $I = 10^{12}$ Вт/см², $N = 500$, $\eta = 0.1$. (c) Асимметрия $A_{\max}(0)$ и (d) фаза $\phi_{\max}(0)$ в калибровке длины как функция энергии основной гармоники ω и числа оптических циклов N при $\eta = 0.1$ и $I = 10^{12}$ Вт/см². (e) Асимметрия $A_{\max}(0)$ и (f) фаза $\phi_{\max}(0)$ в калибровке длины как функция энергии основной гармоники ω и отношения относительных напряженностей η при $N = 500$ и $I = 10^{12}$ Вт/см².

альный член наиболее ярко проявляющийся в том, при какой именно энергии фаза $\phi_{\max}(0)$ делает скачок вверх на π после прохождения резонанса.

На рис. 4.5с-f представлена зависимость величины асимметрии и фазы от числа оптических циклов N (с,d) и относительной напряженности гармоник η (e,f). Асимметрии велика, если вклады обеих веток сравнимы. Резонансный двухфотонный вклад растет быстрее с увеличением длины импульса, чем однофотонный, и в какой-то момент начинает превосходить его, в связи с чем может наблюдаться уменьшение величины асимметрии в области энергий около 16.86 эВ, соответствующей возбуждению состояния $2p^5(2P_{1/2})3s[\frac{1}{2}]$, связанного с основным наиболее сильным дипольным моментом (см. таблицу 3). Изменить величину относительного вклада однофотонной и двухфотонной ионизации, меняя не длину импульса, а относительную напряженность гармоник: при некоторой

оптимальной величине η асимметрия максимальна, а при больших или меньших значениях ее величина падает. Фаза же, как следует из выражения 4.13, от параметра η не зависит.

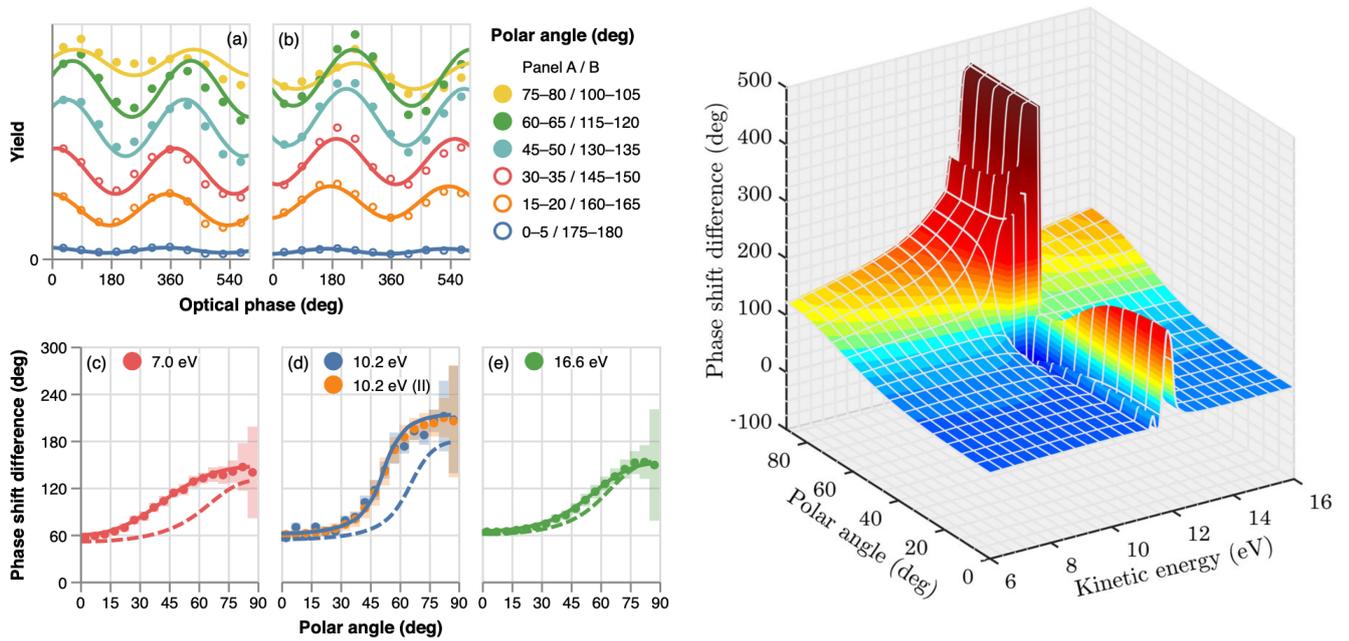


Рисунок 4.7 — (a), (b) Типичный фотоэлектронный выход $I(\vartheta, \varphi)$ как функция оптической фазы φ в интервалах полярных углов θ . Сигнал интегрирован по интервалам в 5° , указанным справа. Кривые не смещены; таким образом, их вертикальное положение напрямую отражает значение $W(\vartheta)$ в уравнении 4.9. Кинетическая энергия фотоэлектрона составляет 7.0 эВ. Кружки — экспериментальные результаты; линии представляют собой фитирование функцией синуса экспериментальных результатов. (c)–(e) Извлеченные разности сдвига фаз в зависимости от полярных углов для четырех наборов данных и трех кинетических энергий фотоэлектронов: (c) 7.0 эВ; (d) 10,2 эВ; (e), 16,6 эВ. Кружки — экспериментальные результаты; заштрихованные области показывают их неопределенности. Штриховые линии — теория возмущений; сплошные линии — теория *ab initio* TDSE. (f) Разности фазовых сдвигов Δ двухфотонной ионизации по сравнению с однофотонной ионизацией, рассчитанные по теории возмущений, в зависимости от полярного угла ϑ и кинетической энергии фотоэлектронов.

Больше информации о деталях процесса ионизации бихроматическим полем можно извлечь из параметров угловой анизотропии β_k (4.9). Так, в эксперименте [A3] из интерференционных членов разложения $W(\theta)$ в “ $\omega + 2\omega$ ” процессе была измерена разность фаз между волновыми пакетами фотоэлектронов, возникающих в результате одно- и двухфотонной ионизации (рис. 4.7c,d,e) неона при

энергиях ω , лежащих в нерезонансной области ниже и выше первого возбужденного “сильного” состояния $2p^5(^2P_{1/2})3s[\frac{1}{2}]$. Теоретические расчеты в рамках нестационарной теории возмущений проводились в MCHF модели, описанной в разделе 3.1. Длина импульса была выбрана равной $N = 500$ оптическим циклам, а полученные результаты в ТВ не зависели от напряженностей электрических полей.

Согласно нестационарной теории возмущений, разность фаз между волновыми пакетами фотоэлектронов Δ определяется выражением:

$$\Delta = \arg [(\beta_1(\phi = 0) + i\beta_1(\phi = \pi/2))P_1(\cos \theta) + i(\beta_3(\phi = 0) + \beta_3(\phi = \pi/2))P_3(\cos \theta)] . \quad (4.17)$$

Поэтому для нахождения Δ были измерены фотоэлектронные спектры при разных значениях полярного угла и относительной фазы между гармониками (примеры полученных спектров изображены на рис. 4.7a,b), и извлеченные фазы сравнивались с результатами РТ и TDSE. Теория возмущений позволяет так же без больших вычислительных затрат рассчитать Δ для большого диапазона энергий фотоэлектронов и полярных углов. Полученные данные приведены на рис. 4.7f. В области, соответствующей возбуждению состояния $2p^5(^2P_{1/2})3s[\frac{1}{2}]$, относительная фаза начинает резко меняться вплоть до того, что ее определение перестает быть физически осмысленным.

Сами параметры угловой анизотропии β_k были исследованы в рамках ТВ и TDSE в тех же моделях для полей круговой поляризации [A1], для которых в амплитуды 2.39–2.41 входит меньше парциальных волн. Аналогичная работа для полей линейной поляризации была сделана ранее [16].

Зависимость углового распределения фотоэлектронов в этом случае от относительной фазы ϕ , как уже было отмечено в 4.1.1, представляет собой исключительно поворот в плоскости поляризации полей и параметризуется в системе координат $\mathbf{k}_\gamma \parallel z$ как:

$$W(\vartheta, \phi) = \frac{\sigma}{4\pi} (1 + \beta_2 P_2(\cos \vartheta) + \beta_4 P_4(\cos \vartheta) \delta_{\pm} \beta_1 \sin \theta \cos(\phi - \psi_1 - \phi) + (-1)^{(1-\delta_{\pm})} \beta_3 \sin^3 \theta \cos((3 - 2\delta_{\pm})\phi - \psi_3 - \phi)) , \quad (4.18)$$

где $\delta_{\pm} = 1$, если поля имеют одинаковые спиральности, и 0, если противоположные. Здесь ни β_k , ни ψ_k не зависят от ϕ .

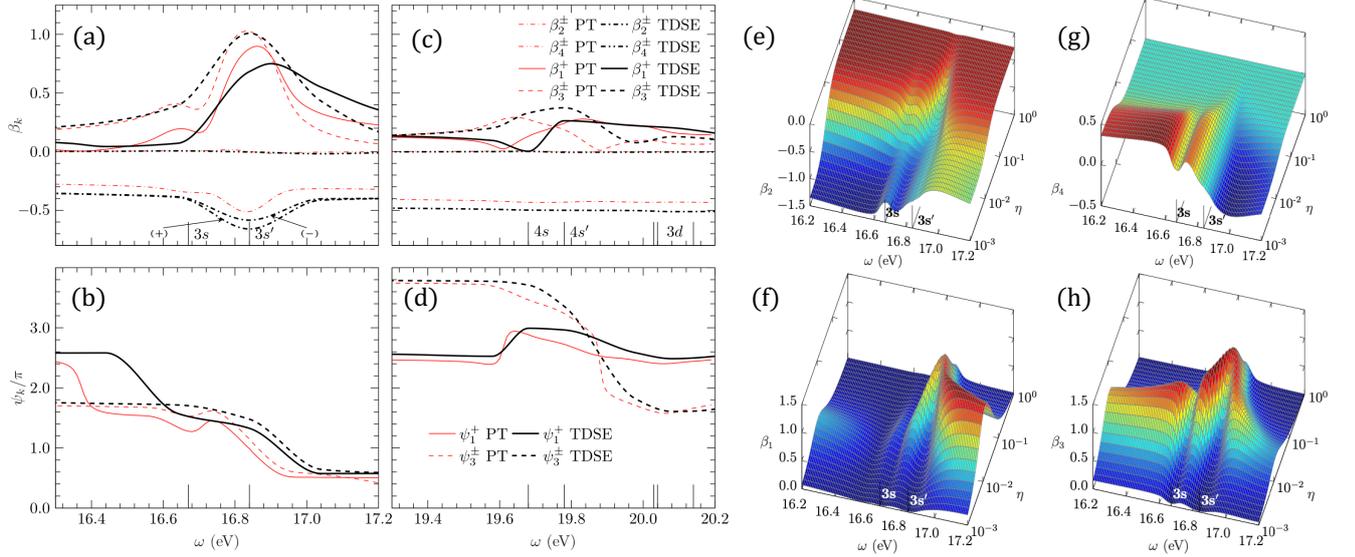


Рисунок 4.8 — Параметры угловой анизотропии β_k ($k = 1, 2, 3, 4$) и углы ψ_k ($k = 1, 3$) в (a,b) области около состояний $3s$; (c,d) области около состояний $4s$ и $3d$. Параметры импульса: $I = 10^{12}$ Вт/см², $\eta = 0.1$, $N = 250$. Красные линии соответствуют результатам ТВ, а черные — результатам TDSE. В TDSE наблюдается разнице в неинтерференционном параметре β_2 для полей ω и 2ω , обладающих одной и противоположными спиральностями. (e,h) зависимость β_k от η при $N = 250$ и $I = 10^{12}$ Вт/см² в ТВ в области $3s$ состояний.

Результаты ТВ и TDSE находятся в разумном согласии друг с другом вблизи состояния $2p^5(^2P_{1/2})3s[\frac{1}{2}] \equiv 3s'$. Различия между результатами, полученными в двух подходах, в основном связаны с различиями в спектроскопических моделях. Например, расчеты ТВ показывают небольшую особенность вблизи $3s'$ -состояния, связанную с наличием слабо возбуждающегося уровня $2p^5(^2P_{3/2})3s[\frac{3}{2}] \equiv 3s$ (рис. 4.8a) из-за расщепления тонкой структуры, которое не учитывается в расчетах TDSE с одним активным электроном. Точно так же формы кривых ТВ и TDSE различны вблизи $4s$ -состояний (рис. 4.8c), хотя максимальные значения параметров анизотропии совпадают. Это различие также является проявлением расщепления тонкой структуры в ТВ. Хотя они не разрешены для выбранной длительности импульса $N = 250$ оптических циклов (50–65 фс), учет расщепления тонкой структуры сдвигает положение нулей.

Энергетическая зависимость угла ψ_k определяется взаимодействием двух-фотонной ионизации в p - и f -волны. В первом преобладает резонансная ионизация через состояния $3s'$ и $4s, 4s'$, а во втором преобладает нерезонансная ионизация через бесконечные наборы виртуальных состояний nd и ϵd или, другими словами, потенциальная часть амплитуды ионизации. В результате фаза

амплитуды p -волны изменяется на π , когда энергия фотона пересекает резонанс. Чем длиннее импульс, тем резче скачок фазы. Эти π -скачки видны в обоих углах ψ_1 и ψ_3 в окрестности состояний $3s$ (рис. 4.8b). Для бесконечно длинного импульса такие же особенности наблюдались бы вблизи состояний $4s$ и $4s'$ (см. рис. 3с,d из [16]). Основной вклад как в β_1 , так и в β_3 вносит интерференция между двухфотонной ионизацией в f -волну и однофотонной ионизацией в d -волну. Более того, при условии отсутствия значительного вклада других каналов, $\beta_1 = \beta_3$ и $\psi_1 = \psi_3 + \pi$.

Наконец, на рис. 4.8e–h показана эволюция параметров угловой анизотропии β_k при изменении отношения гармоник η от 0 до 1. Однофотонные каналы ионизации не содержат резонансов, и, следовательно, соответствующие амплитуды плавно меняются области интереса. Напротив, двухфотонные каналы включают резонансы, преимущественно в канале p -волны, обусловленные промежуточными ns дискретным состояниям, в дополнение к гладким двухфотонным переходам в каналы f -волны. Поведение параметров $\beta_{2,4}$ с увеличением относительного вклада второй гармоники плавно меняется от значений, характерных для двухфотонной ионизации, к значениям, характерным для чистой однофотонной ионизации: так, значение параметра β_2 близко к экспериментальному значению для однофотонной ионизации, а β_4 становится равным нулю. Для параметров $\beta_{1,3}$ в области энергий, где роль резонанса невелика, условие баланса амплитуд одно- и двухфотонной ионизации, обеспечивающие их большие величины, достигается при $\eta \approx 0.1$. Там, где роль резонанса возрастает, эффективная интерференция реализуется при большем вкладе второй гармоники $\eta \approx 0.3$.

4.1.3 Поляризация спина электрона при бихроматической ионизации

В фотоионизации поляризация спина электронов возникает в результате спин-орбитального взаимодействия [140; 141] в состояниях дискретного спектра (в основном состоянии и/или в возбужденных состояниях) и/или в состояниях континуума. В неоне основное состояние $J_0 = 0$ не может быть поляризовано, а спин-орбитальным расщепление конечных состояний невелико — порядка 0.1 эВ, — и не разрешается в большинстве современных экспериментов. Спин-орбитальное расщепление возбужденных состояний в неоне такого же порядка,

однако сам факт его малости не влияет на величину поляризации фотоэлектронов [142], а только лишь на возможность разделения фотоэлектронов (энергетического или геометрического), обладающих разными проекциями спина. Резонансная ионизация позволяет совершить такую сортировку путем селективного возбуждения расщепленных уровней, из которых преимущественно вылетают электроны с одинаковой проекцией спина.

Помимо формулы 2.25, величину поляризации спина фотоэлектрона s на ось \mathbf{n} можно представить в более понятном виде через PAD:

$$P_n(\vartheta, \varphi) = \frac{W(\vartheta, \varphi)_{(n \cdot s)=+\frac{1}{2}} - W(\vartheta, \varphi)_{(n \cdot s)=-\frac{1}{2}}}{W(\vartheta, \varphi)_{(n \cdot s)=+\frac{1}{2}} + W(\vartheta, \varphi)_{(n \cdot s)=-\frac{1}{2}}}, \quad (4.19)$$

причем \mathbf{n} не обязательно является осью лабораторной системы координат.

Так, если $\mathbf{n} = [\mathbf{p}_e \times \mathbf{e}_\omega]$, то для ионизации линейно поляризованным полем вся поляризация спина исчерпывается только этим направлением [143]. Для двухфотонной резонансной ионизации ($\mathbf{e}_\omega \parallel z$) можно получить [A4] простую параметризацию:

$$P_n(\vartheta) = [W(\vartheta)]^{-1} \sin \vartheta \sum_{k=2,4} p_k \cos^{k-1} \vartheta, \quad (4.20)$$

$$W(\vartheta) = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \sum_{k=2,4} \beta_k P_k(\cos \vartheta) \right). \quad (4.21)$$

На рис. 4.9а показано $P_n(\vartheta)$ (4.20) для основной гармоники ω , соответствующей энергии возбуждения резонанса $4s'$. Электроны, имеющую поляризацию преимущественно по и против оси \mathbf{n} , разделены геометрически, и ее величина может достигать порядка 50%.

Зависимость P_n от энергии ω , сканирующей область возбуждения $4s-3d$ состояний, и длительности импульса под “магическим углом” ϑ_m (под этим углом $P_2(\cos \vartheta_m) = 0$) показана на рис. 4.9b. Видно, что, во-первых, максимум поляризации находится не в резонансах, а между ними. Во-вторых, для $4s$ -состояний существует нетривиальная зависимость ее величины от числа оптических циклов с максимумом в районе $N = 250$, чего не наблюдается для $3d$ -состояний. Такое поведение объясняется тем, что динамическая спиновая поляризация обращается в нуль в случае единственного канала ионизации [144], что является предельным случаем для s -состояний при уменьшении спектральной ширины импульса, но не для $3d$ -состояний, из которых всегда будут существовать переходы в разные континуумы (p и f).

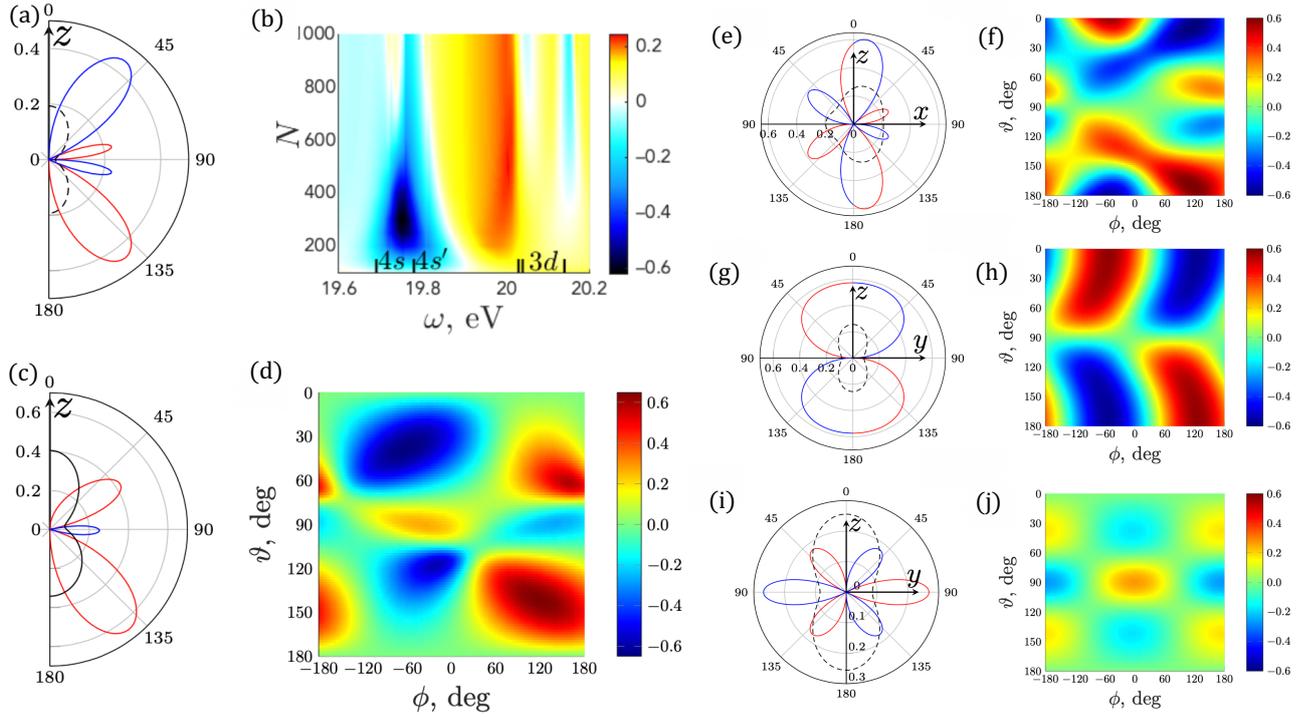


Рисунок 4.9 — Результаты для энергии фотона ω , соответствующей резонансу $4s'$ (19.78 эВ), $I = 10^{12}$ Вт/см², $\eta = \sqrt{0.001}$ и $N = 500$. Везде черная пунктирная линия показывает PAD (в произвольных единицах), сплошная красная (синяя) линия показывает положительные (отрицательные) значения спиновой поляризации. (a) $P_n(\vartheta)$; (b) Зависимость $P_n(\vartheta_m)$, где $\vartheta_m = \arccos(1/\sqrt{3}) \approx 54.7^\circ$ — “магический” угол, в области $4s$ - и $3d$ -резонансов в зависимости от числа оптических циклов N ; (c,d) $P_n^{\parallel}(\vartheta)$ при $\phi = 120^\circ$ и как функция ϕ ; (e,f) $P_n^{\perp}(\vartheta)$ для электронов, испускаемых в плоскость zx при $\phi = 120^\circ$ и как функция ϕ ; (g,h) $P_{\tau}^{\perp}(\vartheta)$ для электронов, вылетевших в плоскости zy при $\phi = 120^\circ$ и как функция ϕ ; (i,j) $P_z^{\perp}(\vartheta)$ при $\phi = 0^\circ$ для электронов, вылетающих в плоскости zy при $\phi = 0^\circ$ и как функция ϕ .

Хотя в “ $\omega + 2\omega$ ” для линейно поляризованных в одном направлении полей новых компонент спиновой поляризации не возникает, интерференция между одно- и двухфотонной ионизацией сильно влияет на ее величину (см. рис. 4.9b), которая тоже имеет достаточно простую параметризацию:

$$P_n^{\parallel}(\vartheta) = [W^{\parallel}(\vartheta)]^{-1} \sin \vartheta \sum_{k=1}^4 p_k^{\parallel} \cos^{k-1} \vartheta, \quad (4.22)$$

$$W^{\parallel}(\vartheta) = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \sum_{k=1}^4 \beta_k^{\parallel} P_k(\cos \vartheta) \right). \quad (4.23)$$

Над которой можно осуществлять когерентный контроль с помощью относительной фазы ϕ (см. рис. 4.9d). Хотя поляризация при однофотонной ионизации в этой

области энергий в неоне пренебрежимо мала, интерференционные члены вносят вклад не только в PAD.

Для ортогонально поляризованных полей ($e_\omega \parallel z$, $e_{2\omega} \parallel x$), то новые компоненты $P_z^\perp(\vartheta, \varphi)$ и $P_\tau^\perp(\vartheta, \varphi)$, где $P_\tau^\perp(\vartheta, \varphi) \perp P_z^\perp(\vartheta, \varphi) \perp P_n^\perp(\vartheta, \varphi)$, появляются естественным образом (т.к. $[p_e \times e_{\omega/2\omega}]$ соответствует теперь разным направлениям):

$$P_z^\perp(\vartheta, \varphi) = [W^\perp(\vartheta, \varphi)]^{-1} \sin \varphi \sum_{k=1,3} z_k^\perp \sin^k \vartheta, \quad (4.24)$$

$$P_n^\perp(\vartheta, \varphi) = [W^\perp(\vartheta, \varphi)]^{-1} \left(\sin \vartheta \sum_{k=2,4} p_k^\perp \cos^{k-1} \vartheta + \cos \varphi \cos \vartheta \sum_{k=1,3} p_k^\perp \sin^{k-1} \vartheta \right), \quad (4.25)$$

$$P_\tau^\perp(\vartheta, \varphi) = [W^\perp(\vartheta, \varphi)]^{-1} \sin \varphi \cos \vartheta \left(\sum_{k=1,3} p_k^\perp \sin^{k-1} \vartheta + p^\perp \sin^2 \vartheta \right), \quad (4.26)$$

$$W^\perp(\vartheta, \varphi) = 1 + \sum_{k=2,4} \beta_k^\perp P_k(\cos \vartheta) + \beta^\perp \sin^2 \vartheta \cos 2\varphi + \sum_{k=1,3} \beta_k^\perp \sin^k \vartheta \cos \varphi. \quad (4.27)$$

Эти компоненты представлены на рис. 4.9e,h,i а возможности по когерентному контролю над ними — на рис. 4.9h,f,j. Из выражений 4.25 и 4.26 видно, что интерференция нарушила симметрию относительно угла φ , “перенаправив” поляризацию электронов по направлениям, перпендикулярным обоим векторам $e_\omega, e_{2\omega}$ и импульсу самого электрона p_e , проявляя тенденцию, сходную с ранее рассмотренными зависимостями. Примечательно, что величина спиновой поляризации по этим направлениям оказывается сравнимой.

Как видно из формул (4.22)–(4.24), какая бы то ни было спиновая поляризация для линейно поляризованных полей пропадает при интегрировании по полному телесному углу, что соответствует известным теоретическим результатам для однофотонной ионизации и связано с механизмом ее возникновения [143]. В случае циркулярно поляризованного излучения после интегрирования по 4π остается компонента, сонаправленная с вектором k_γ фотона — P_z . В неоне при однофотонной ионизации гармоникой 2ω эта компонента остается пренебрежительно малой, но при двухфотонной ионизации второй гармоникой ω в области резонансного возбуждения дискретных состояний достигает больших значений, оставаясь практически единственной (см. рис. 4.10a,b). Добавление второй гармоники изменяет 2ω эту компоненту, и характер этих изменений естественным образом зависит от ее поляризации. Так, если вторая гармоника циркулярно поляризована с той же или противоположной спиральностью, то компонента P_z

“повторяет” угловые распределения (4.18):

$$P_z^\pm(\vartheta, \varphi) = [W^+(\vartheta, \varphi)]^{-1} \left(z_0 + \sum_{k=2,4} z_k P_k(\cos \vartheta) + \delta_\pm z_1 \sin \vartheta \cos(\varphi - \zeta_1 - \Phi) \right. \\ \left. + (-1)^{(1-\delta_\pm)} z_3^\pm \sin^3 \vartheta \cos((3 - 2\delta_\pm) - \zeta_3^\pm - \Phi) \right) \quad (4.28)$$

$$W(\vartheta, \varphi)^\pm = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \beta_2 P_2(\cos \vartheta) + \beta_4 P_4(\cos \vartheta) + \delta_\pm \beta_1 \sin \vartheta \cos(\varphi - \psi_1 - \Phi) \right. \\ \left. + (-1)^{(1-\delta_\pm)} \beta_3 \sin^3 \vartheta \cos((3 - 2\delta_\pm)\varphi - \psi_3 - \Phi) \right), \quad (4.29)$$

то есть в какой-то мере наследует их форму (см. рис. 4.10с,d) [A2]. Здесь, как и для угловых распределений, четные компоненты появляются за счет неинтерференционных вкладов, а нечетные — за счет интерференционных. При изменении относительной фазы между гармониками будет наблюдаться простое вращение распределений. В отличие от параметра β_3 в угловых распределениях, параметр ζ_3 отличается для гармоник одинаковых и противоположных спиральностей, но отличается на малую величину. Эта разница пропадает при рассмотрении более упрощенной одноконфигурационной модели (т.е. при пренебрежении переходами через $3d$ -состояния и зависимостью волновых функций в континууме от терма).

При плавном изменении поляризации второй гармоники в пределах плоскости xy , аналогичной рис. 4.4а, компонента P_z испытывает изменения, представленные на рис. 4.10е. Эти изменения совершенно аналогичны тем, которые испытывает PAD.

Если вектор поляризации второй гармоники не лежит в плоскости первой, то в этой плоскости интерференционные эффекты уже не будут максимальными. Так, при линейно поляризованной по оси z второй гармоники они вообще исчезают. На рис. 4.10f показана компонента P_z в такой геометрии в сечении плоскостью xz [A6]. Как видно из рисунка, возможности когерентного контроля в такой геометрии сильно ограничены.

Анализ остальных компонент поляризации спина фотоэлектронов представляет из себя более сложную задачу. Так, для компоненты P_n , сонаправленной с вектором $\mathbf{n} = [\mathbf{p}_e \times \mathbf{e}_\omega]$ и перпендикулярной ему P_τ (вместе с P_z все три компоненты полностью описывают спин фотоэлектрона) для одинаково

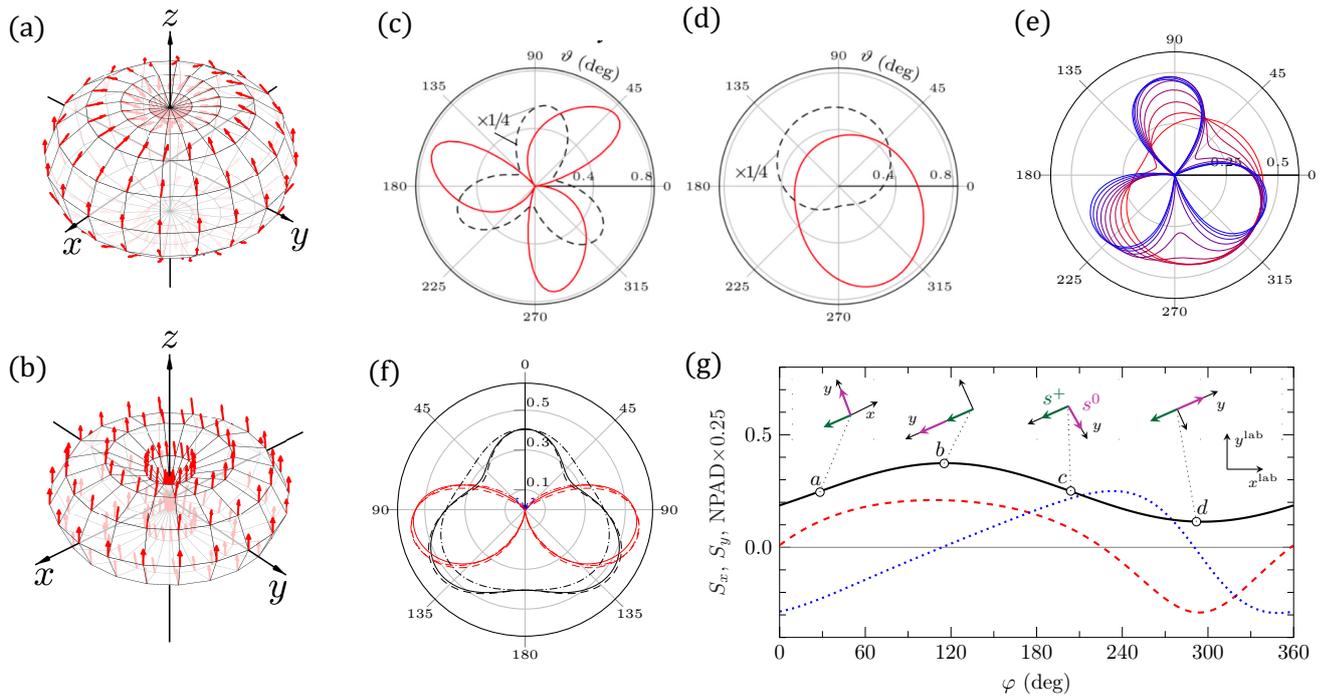


Рисунок 4.10 — Результаты для энергии циркулярно поляризованного фотона ω , соответствующей резонансу $4s'$ при 19.78 эВ для рис. b,e,f ($4s'$ при 19.69 эВ для рис. c,d,j), $I = 10^{12}$ Вт/см², $\eta = \sqrt{0.001}$ ($\sqrt{0.005}$ для f), и $N = 500$. Относительная фаза $\phi = 0$, если не указано иное. Везде черная пунктирная линия показывает PAD (в произвольных единицах), сплошные линии — значения спиновой поляризации. (a,b) PAD, направление и относительная величина спиновой поляризации P фотоэлектронов при одно- и двухфотонной ионизации циркулярно поляризованным полем. (c,d) PAD и величина спиновой поляризации P_z при ионизации циркулярно поляризованными гармониками противоположных и одинаковых спиральностей в плоскости xy . (e) Трансформация PAD в плоскости поляризации гармоник ($\phi = 0$) для круговой право поляризованной основной гармоники ($\varepsilon = 1, \lambda = +$) при изменении эллиптичности и спиральности второй гармоники от круговой право поляризованной ($\varepsilon = 1, \lambda = +$, красная линия) до круговой лево поляризованной ($\varepsilon = 1, \lambda = -$, синяя) в плоскости xy . (f) Сечение плоскостью xz для компоненты P_z при $2\omega \parallel z$ при фазе между гармониками 0 (сплошная линия), $\pi/9$ (штриховая линия), $\pi/2$ (штрих-пунктирная линия). (g) Компоненты P_x и P_y для циркулярно поляризованных гармоник одинаковых спиральностей как функции полярного угла φ при $\vartheta = 54.74^\circ$. Перпендикулярные к k_γ компоненты спина, появляющиеся в результате интерференции P^\perp , и некогерентный вклад P^0 показаны в лабораторной системе $\{x^{\text{lab}}, y^{\text{lab}}\}$ для отдельных φ .

поляризованных гармоник можно получить выражения [A2]:

$$P_{\tau}^{+}(\vartheta, \varphi) = [W^{+}(\vartheta, \varphi)]^{-1} \left(\sin 2\vartheta(x_2 + x_4 \sin^2 \vartheta) + \frac{z_3^{+}}{2} \sin 2\vartheta \sin \vartheta + \eta \cos \vartheta \cos(\varphi - \delta) \right) \quad (4.30)$$

$$P_n^{+}(\vartheta, \varphi) = [W^{+}(\vartheta, \varphi)]^{-1} \left(\sin 2\vartheta(y_2 + y_4 \sin^2 \vartheta) - \frac{z_3^{-}}{2} \sin 2\vartheta \sin \vartheta + \eta \cos \vartheta \cos(\varphi - \delta) \right). \quad (4.31)$$

Эти компоненты обладают интересной особенностью, специфичной для случая одинаковых спиральностей, которая показана на рис. 4.10g. А именно, нормальная компонента $P_{\perp} = \{P_{\tau}^{+}, P_n^{+}\}$ содержит интерференционный вклад $s_{\perp} = \{s_x^{+}, s_y^{+}\}$ (зеленые стрелки), ориентированный на фиксированное направление в лабораторной системе координат. В то же время неинтерференционный вклад $s_{\perp} = \{s_x^0, s_y^0\}$ строго следует азимутальному направлению эмиссии электронов. Таким образом, интегрирование угловых распределений либо по верхнему, либо по нижнему полушарию позволит выделить интерференционный вклад.

Наконец, еще две особенности поляризации спина фотоэлектронов в процессе $\omega + 2\omega$ ионизации можно продемонстрировать в геометрии, в которой компонента ω линейно поляризована параллельно оси x , а компонента 2ω — циркулярно в плоскости yz [A6]. Для этой геометрии изменение относительной фазы гармоник эквивалентно повороту вокруг оси $x \parallel e_{\omega}$ без изменения абсолютных величин наблюдаемых. Поэтому без потери общности можно выбрать плоскость наблюдения фотоэлектронов xz .

Интерференционные эффекты “перестраивают” направление вектора спиновой поляризации (рис. 4.11a), делая его ориентацию вдоль осей z и y (x и y , если $e_{\omega} \parallel z$) не равновероятной по сравнению с тем, что наблюдалось для двухфотонной ионизации 4.9a. Угловое распределение фотоэлектронов и компоненты P_x симметричны относительно плоскости yz , компоненты P_y и P_z антисимметричны. При интегрировании по всем направлениям вылета электрона сохраняется только пренебрежимо малая часть компоненты P_x , происходящая от однофотонной ионизации, однако при интегрировании по полусферам $x > 0/x < 0$ сохраняются и компоненты P_y, P_z .

Первая особенность поляризации спина фотоэлектронов в этом процессе, которая ранее не была затронута, — это появление новых компонент в спиновой поляризации, не существующих без интерференции. Так, для выбранной плоскости наблюдения фотоэлектронов xz существование компоненты P_z возможно

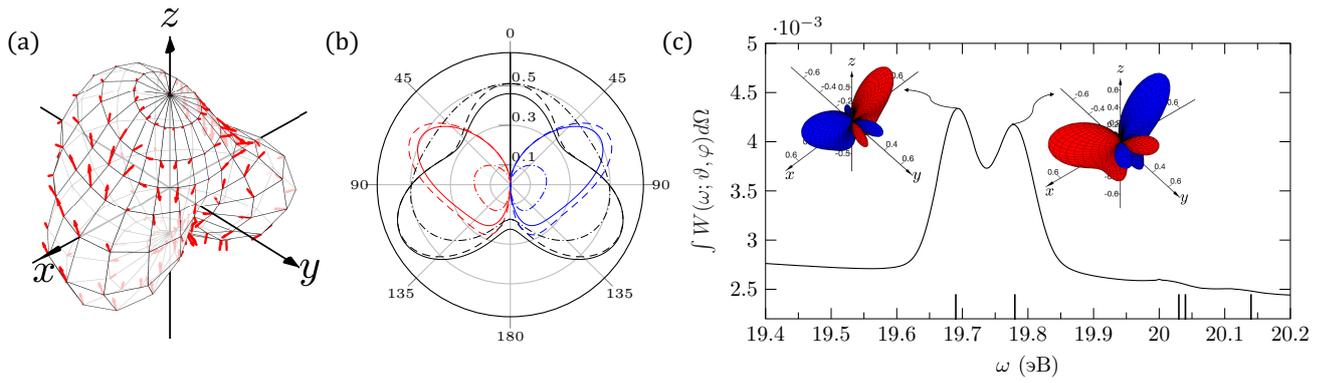


Рисунок 4.11 — Результаты для энергии линейно поляризованного фотона ω , соответствующей резонансу $4s'$ при 19.78 эВ (если не указано иное), $I = 10^{12}$ Вт/см², $\eta = \sqrt{0.001}$, и $N = 500$. Относительная фаза $\phi = 0$, если не указано иное. (a) PAD, направление и относительная величина спиновой поляризации P фотоэлектронов, вылетающих в определенном направлении $\mathbf{p}_e = \{\vartheta, \varphi\}$; (b) PAD (черная линия) и компонента спиновой поляризации P_z (красный цвет для $P_z > 0$, синий — для $P_z < 0$) в сечении плоскостью xz для фазы между гармониками $\phi = 0, \pi/9, \pi/2$ (сплошная, пунктирная и штрихпунктирная линии соответственно); (c) Спектр фотоэмиссии. На вставках изображена компонента P_z при энергиях фотона ω , соответствующих возбуждению $4s$ - резонансов (красный цвет для $P_z > 0$, синий — для $P_z < 0$). Вертикальными линиями отмечены положения возбужденных состояний.

только за счет интерференции. Эта компонента обращается в ноль в плоскости yz и достигает максимума в некотором направлении $\{\vartheta, \varphi\}$, определяемом динамическими особенностями системы и параметрами поля (в частности, разницей фаз ϕ). На рисунке 4.11b построены PAD и величины спиновой поляризации P_z для трех разных фаз (еще рисунок демонстрирует, что величина P_z , а значит и P_y , эффективно контролируется с помощью ϕ).

Вторая особенность поляризации спина фотоэлектронов проявляется в зависимости ориентации спина от энергии фотона ω . На рисунке 4.11c изображен интегральный спектр фотоэмиссии $\int W(\omega; \vartheta, \varphi) d\Omega$ и компонента P_z при энергиях фотона ω , соответствующих возбуждению состояний $4s, 4s'$. Преимущественное направление спина фотоэлектронов при возбуждении этих резонансов противоположно, что свидетельствует о высокой селективности возбуждения состояний с различными проекциями спина.

4.1.4 Одноэлектронное приближение в задаче когерентного контроля

Одноэлектронное приближение позволяет описать основные свойства угловых распределений на простейшем языке. Это было сделано для водорода в работах нашей теоретической группы [73; 137], однако следующий шаг после чисто аналитического решения — это рассмотрение следующего элемента, гелия. Для гелия (и других атомов при ионизации s -оболочки) процесс " $\omega + 2\omega$ " при правильной постановке эксперимента позволяет извлечь относительные амплитуды и фазы парциальных волн или, если они полагаются известными, относительные амплитуды и фазы гармоник при минимальном количестве требующихся теоретически полученных спектроскопических данных. Этого можно добиться, если взять циркулярно поляризованную фундаментальную гармонику и линейно поляризованную под некоторым углом $\{\theta_a, \phi_a\}$ вторую ($e_\omega = e_+ = -(e_x + ie_y)/\sqrt{2}$ и $e_{2\omega} = \cos \theta_a e_z + \sin \theta_a (\cos \phi_p e_x + \sin \phi_p e_y)$ в уравнении (4.1)). Циркулярная поляризация фундаментальной гармоники позволяет оставить один канал в двухфотонной ионизации, а рассмотрение s -оболочки — один канал в однофотонной. Дополнительное уменьшение числа требуемых теоретических параметров происходит за счет существования несовпадающих геометрических нулей амплитуд ионизации в такой геометрии.

Для гелия $l_i = 0$ и угловое распределение фотоэлектронов (2.61) принимает совсем простой вид [A10], из которого немедленно следует следующая параметризация для описанной формы импульса:

$$\begin{aligned}
 W(\vartheta, \varphi) = & \frac{1}{4\pi} |A_{\varepsilon p}^{(1)}|^2 (\cos \theta_a \cos(\vartheta) + \sin \theta_a \sin \vartheta \cos(\phi_p - \varphi))^2 \\
 & + \frac{1}{4\pi} \frac{3}{8} |A_{\varepsilon d}^{(2)}|^2 \sin^4 \vartheta + \frac{1}{4\pi} \sqrt{\frac{3}{2}} |A_{\varepsilon p}^{(1)} A_{\varepsilon d}^{(2)*}| \sin^2 \vartheta \times \\
 & \times (\cos(\theta_a) \cos(\vartheta) + \sin \theta_a \sin \vartheta \cos(\phi_a - \varphi)) \cos(2\varphi - \delta), \quad (4.32)
 \end{aligned}$$

где первый член описывает однофотонную ионизацию линейно поляризованным полем, второй — двухфотонную ионизацию циркулярно поляризованным полем, а третий — их интерференцию.

Для описания эффективности интерференции удобно ввести обобщенный параметр асимметрии \mathcal{A} :

$$\mathcal{A} = \frac{\sqrt{\frac{3}{2}} |A_{\varepsilon p}^{(1)} A_{\varepsilon d}^{(2)*}|}{|A_{\varepsilon p}^{(1)}|^2 + \frac{3}{8} |A_{\varepsilon d}^{(2)}|^2}. \quad (4.33)$$

этот параметр (4.33) как функция фундаментальной энергии ω и отношения электрических полей $\eta = E_{2\omega}/E_\omega$ представлен на рисунке 4.12а. При резонансных энергиях (см. Таблицу 4) необходима очень высокая интенсивность второй гармоники, тогда как при минимумах двухфотонной амплитуды (Рисунок 3.8b) необходимая напряженность 2ω падает на три порядка. Однако это справедливо только для импульсов бесконечной длины, и ожидается, что реально необходимое соотношение в эксперименте будет на один-два порядка ниже в резонансах и выше в минимумах. Из уравнения (4.32) видно, что фаза ϕ , обеспечивающая максимальную асимметрию, определяется разностью фаз в p - и d -каналах, представленной на рисунке 4.12b. Фазы рассеяния в гелии в рассматриваемой области достаточно гладкие, и, согласно основам квантовой механики, двухфотонная амплитуда имеет скачок на π в резонансах и в нулях.

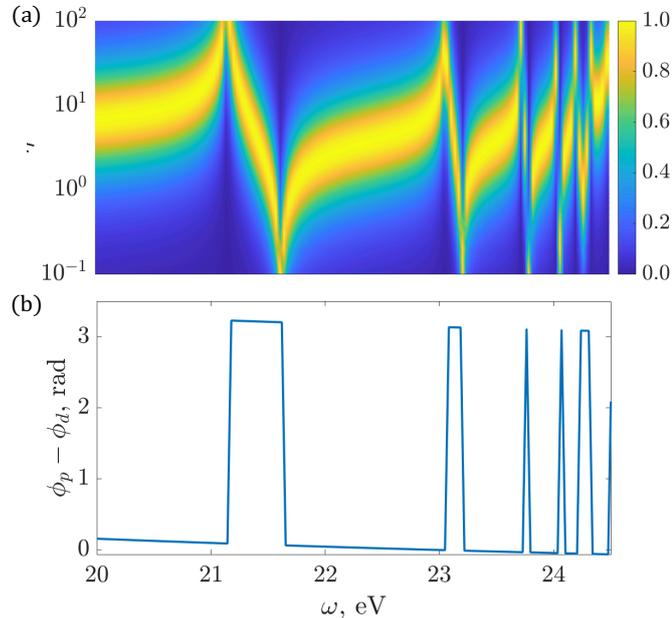


Рисунок 4.12 — а) Эффективность интерференции (4.33) как функция фундаментальной энергии и соотношения сил гармоник η ; б) Разность фаз между p и d парциальными волнами.

Рассмотрим два крайних случая: (А) поляризация второй гармоники направлена вдоль распространения основной ($\theta_a = 0$) (рис. 4.13а–с) и (Б) поляриза-

ция вторая гармоника компланарна плоскости поляризации основной гармоники ($\theta_a = \pi/2$, $\varphi_a = 0$) (рис. 4.14а–с).

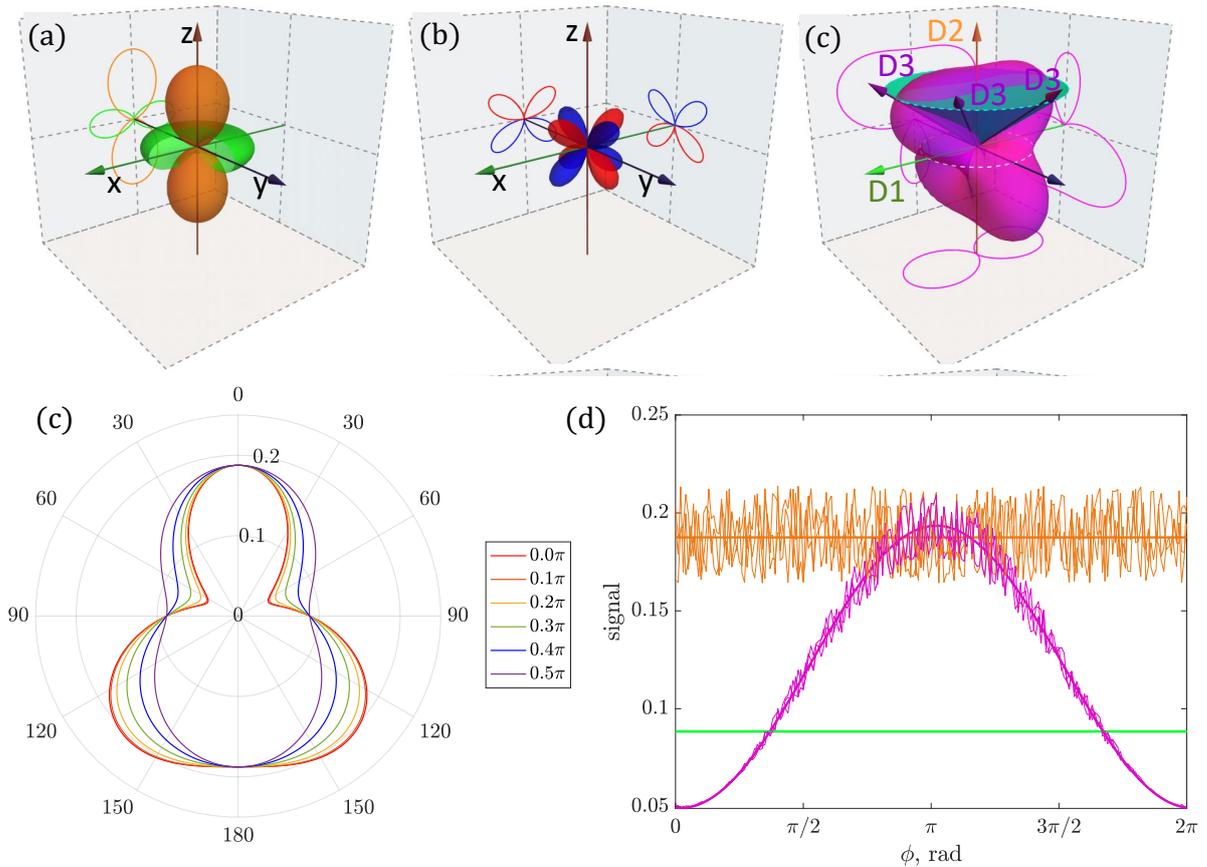


Рисунок 4.13 — Геометрия (А): линейная поляризация 2ω направлена вдоль направления распространения ω . а) Некогерентные вклады от однофотонной (оранжевый) и двухфотонной (зеленый) ионизации s -оболочки; б) вклад интерференционного члена, красным цветом отмечен положительный вклад, синим цветом — отрицательный; с) результирующий PAD при бихроматической ионизации. D1, D2 и D3 отмечают предполагаемое размещение детекторов. d) Сечение PAD с xz -плоскостью; е) Сигналы детектора D1 (зеленая линия), D2 (оранжевая линия) и D3 (пурпурная линия) при условии колебания напряженности второй гармоники в 25% с фазой ϕ . Расчеты выполнены для $\omega = 21.55$ эВ и $\eta = 1$.

В случае (А) некогерентная сумма одно- и двухфотонного вкладов обладает осевой симметрией (рис. 4.13а). Более того, фотоэлектронный сигнал вдоль оси z (детектор D2) может быть создан только за счет однофотонной ионизации, а любой сигнал в плоскости xy (детектор D1) — двухфотонной. В плоскости же, образованную магическим углом ($\cos \vartheta = 1/\sqrt{3}$), ожидаемая интерференция максимальна 4.32, и сигнал детектора D3 осциллирует при изменении относитель-

ной фазы между гармониками ϕ вокруг усредненного значения $4/9\text{signal}(D1) + 1/3\text{signal}(D2)$. Для извлечения последнего необходимы три детектора. Или можно извлечь разность фаз $\delta = \sigma_p - \sigma_d$, изменяя известный фазовый сдвиг ϕ . Следует подчеркнуть две важные особенности. Во-первых, если амплитуда колебаний на детекторе $D3$ меньше $\frac{4}{3}\sqrt{\text{signal}(D1)\text{signal}(D2)}/3$, то когерентность частично теряется. Во-вторых, в эксперименте могут наблюдаться колебания интенсивностей гармоник в зависимости от смещения фазы (или энергии). Это колебания можно учесть соответствующим масштабированием сигналов 1-го и 2-го детекторов. Обычно для этого служит другой газ, как, например, в [A5].

На рисунках 4.13d,e представлены сечение PAD для этой геометрии плоскостью xz и симулированные сигналы детекторов D1, D2 и D3 при условии, что имеется некоторое колебание напряженности второй гармоники. Видно, что даже при наличии флуктуации напряженности детектор D2 позволяет непосредственно оценить их и исключить из интерференционного сигнала. Важно отметить, что в области, где интерференция деструктивна, флуктуации некогерентного и когерентного вкладов компенсируют друг друга, а если интерференция носит конструктивный характер, они суммируются, поэтому величину сигнала в максимуме следует считать менее надежной.

В случае (B) некогерентная сумма одно- и двухфотонного вкладов обладает тремя плоскостями симметрии (рис.) (рис. 4.14a), образованными плоскостью поляризации ω (xy), вектором поляризаций 2ω и волновым вектором ω (xz) и плоскостью, перпендикулярной вектору поляризации 2ω (yz). Обе вероятности одно- и двухфотонной ионизации, а также их интерференция (4.33) максимальны в плоскости xy 4.32, поэтому расположение ТоF в этой плоскости является наиболее эффективным. Один ТоF (D1), размещенный вдоль оси y , регистрирует только двухфотонную ионизацию ω , средний сигнал двух ТоF, размещенных противоположно друг другу, дает вероятность однофотонной ионизации. Наконец, как и в случае (A), есть две возможности: три ТоF, позволяющие полностью восстановить всю PAD при одной конкретной фазе ϕ , или один ТоF, сопровождающийся изменением фазового ϕ . Интерференционный член имеет шесть нулей: два из них определяются вектором поляризации 2ω , а четыре вращаются со сдвигом фазы между гармониками. Два первых нуля могут служить своеобразным ”якорем” позволяющим независимо определить ϕ и δ .

На рисунках 4.14d,e представлены сечение PAD для этой геометрии плоскостью xy и симулированные сигналы детекторов D1, D2 и D3 при условии, что имеется некоторое колебание напряженности второй гармоники.

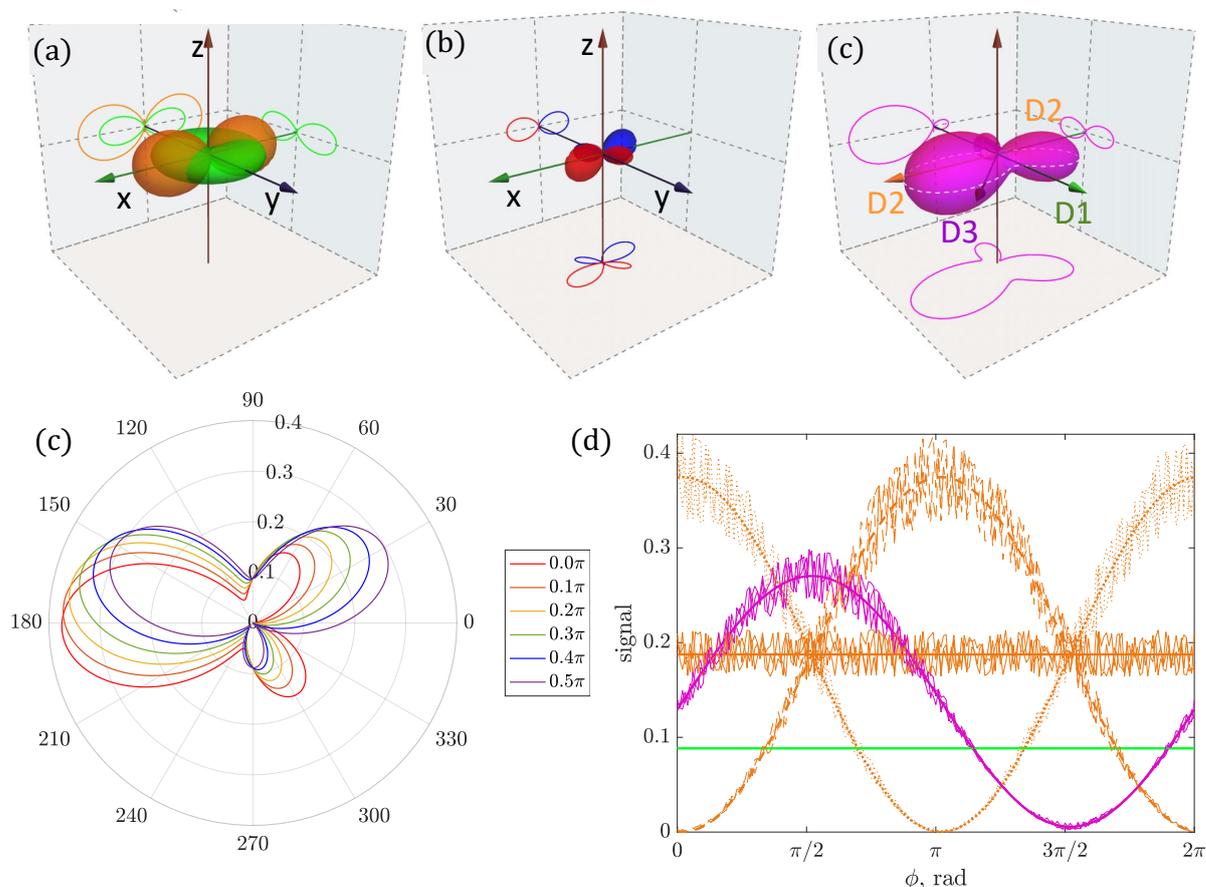


Рисунок 4.14 — Геометрия (B): линейная поляризация 2ω находится в плоскости поляризации ω . а) некогерентные вклады от однофотонной (оранжевый) и двухфотонной (зеленый) ионизации s -оболочки; б) вклад интерференционного члена, красным цветом отмечен положительный вклад, синим цветом — отрицательный; в) результирующий PAD при бихроматической ионизации. D1, D2 и D3 отмечают предполагаемое размещение детекторов. д) Сечение PAD с xy -плоскостью; е) Сигналы детектора D1 (зеленая линия), D2 (оранжевая линия) и D3 (пурпурная линия) при условии колебания напряженности второй гармоники в 25% с фазой ϕ . Расчеты выполнены для $\omega = 21.55$ эВ и $\eta = 1$

Таким образом, " $\omega + 2\omega$ " процесс имеет все шансы стать еще одним методом экспериментальной спектроскопии и диагностики.

4.2 Аттосекундная метрология

В задаче описания аттосекундной метрологии методом RABBIT поле представляет собой сумму инфракрасного поля (обозначаемого как 'ir') и нескольких гармоник n -го порядка в ВУФ диапазоне (обозначаемых 'n'):

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t) = \sum_n \cos^2(t/\sigma_n) E_n \cos(\omega_n t + \phi_n) \\ + E_{\text{ir}} \cos^2(t/\sigma_{\text{ir}}) \cos(\omega_{\text{ir}} t + \phi_{\text{ir}}), \end{aligned} \quad (4.34)$$

При HHG ширина ВУФ импульса σ_n не зависит от номера гармоники и связана с шириной затравочного импульса как $\sigma_n = \sigma_{\text{ir}}/2$. Типичная длительность импульса составляет порядка 10–20 фс, то есть в нем укладывается десятки или даже сотни оптических циклов. ИК-импульс начинается в момент $-t_{\text{ir}} = -\pi/2\sigma_{\text{ir}}$, а ВУФ, соответственно в $-t_n = -\pi/2\sigma_n$.

Для этой задачи было развито два подхода: основанный на нестационарной теории возмущений, описанной в разделе 2.1.3, и решении скоростных уравнений, описанный в разделе 2.1.2. Второй подход, разработанный С.Н. Юдиным, использовался для проверки применимости теории возмущений в совместных публикациях [A6; A9]. Оба метода в качестве входных параметров используют одинаковые дипольные матричные элементы перехода: (а) полученные с помощью стационарной R-матрицы (см. раздел 3.2) — для описания переходов между различными состояниями дискретного спектра и между состояниями дискретного спектра и континуума; (б) полученные с помощью метода устранения расходимости (см. раздел 3.3) — для описания переходов между состояниями континуума. Преимуществами обоих методов являются низкая вычислительная ресурсоемкость, возможность использования высокоточной спектроскопической модели, полученной с помощью специализированных программ, а также возможность исследования вкладов отдельных процессов.

В рамках теории возмущений схему процесса можно представить следующим образом (рис. 4.15а): ВУФ-фотон (синие стрелки) переводит электрон из основного в возбужденное состояние или состояние непрерывного спектра, называемое *основной линией* (mainline — ML), а поглощение или испускание ИК-фотона (красные стрелки) переводит электрон в *боковые линии* (sidebands — SB). Переходы в основные линии происходят с поглощением или испусканием

нечетного числа фотонов, и четность таких состояний противоположна четности основного, а для переходов в боковые линии необходимо четное число фотонов. При ионизации валентной оболочки неона ($2p$) это приводит к четным орбитальным угловым моментам в ML (s, d, g), и нечетным — в SB (p, f), что должно оказывать влияние на угловые распределения фотоэлектронов в основных и боковых линиях.

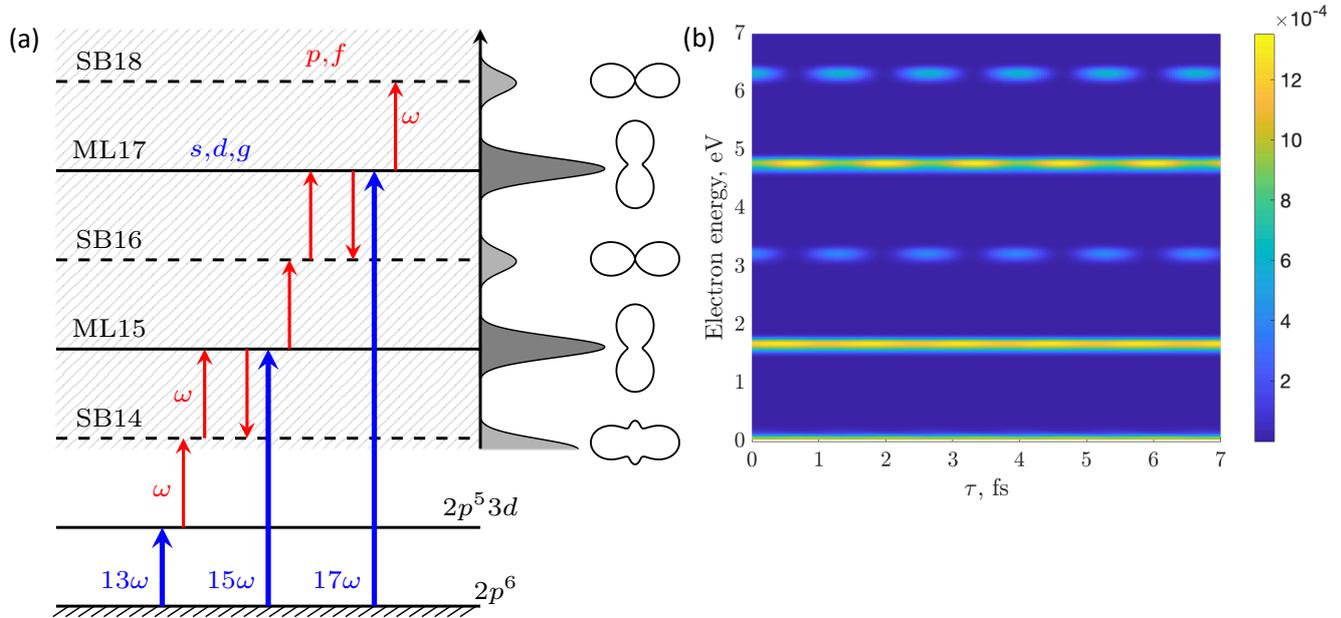


Рисунок 4.15 — Схема ионизации неона в околопороговой RABBITT-спектроскопии. Длина волны инфракрасного фотона 800 нм. Справа схематично изображен вид интегрального фотоэлектронного спектра и угловых распределений в областях фотоэлектронного сигнала — основных (ML) и боковых (SB) линиях. (b) Стандартное представление экспериментальных данных: по горизонтальной оси отложено время задержки ИК-импульса, а по вертикальной — энергия фотоэлектрона. Цветом обозначена интенсивность линии.

При энергии ω_{ir} , соответствующей длине волны ≈ 800 нм его 13 гармоника $\omega_{13} \approx 20.15$ попадает в окрестность $3d$ -резонансов, а поглощение дополнительного фотона ω_{ir} ионизирует атом. В связи с этим в спектре наблюдается интенсивная припороговая фотолиния, резко отличающаяся своим способом формирования от более высоких боковых линий.

Как правило, в экспериментах RABBITT и ИК, и ВУФ-компоненты линейно поляризованы. Угловое распределение фотоэлектронов после окончания импульса для линейно поляризованных полей в используемом нами представлении jK -связи, необходимом для описания фотоэлектронных спектров вблизи

порога, определяется выражением 2.27:

$$W(\theta) = \sum_k B_k = \frac{1}{4\pi} \sum_{kJJ'KK'l'l'} (-1)^{J_f - \frac{1}{2}} \hat{K} \hat{K}' \hat{J} \hat{J}' \hat{l} \hat{l}' (l0, l'0 | k0)(J0, J'0 | k0) \begin{Bmatrix} k & l & l' \\ J_f & K' & K \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k & J & J' \\ \frac{1}{2} & K' & K \end{Bmatrix} a_f a_{f'}^* P_k(\cos \theta), \quad (4.35)$$

где амплитуды $a_f, a_{f'}$ определяются выражением 2.12, и полная вероятность зарегистрировать электрон $\sigma = 4\pi B_0$.

Это распределение можно представить в хорошо известной форме:

$$W(\theta) = \frac{\sigma}{4\pi} (1 + \beta_2 P_2(\cos \theta) + \beta_4 P_4(\cos \theta)). \quad (4.36)$$

В приближении вращающейся волны в ТВ при поглощении фотона наибольший вклад в итоговую амплитуду вносит одна компонента действительной амплитуды поля:

$$\cos(\omega t + \phi) \rightarrow e^{-i(\omega t + \phi)}, \text{ —}$$

а при испускании другая:

$$\cos(\omega t + \phi) \rightarrow e^{i(\omega t + \phi)}.$$

Так как электрон в состоянии с определенной энергией ε_f может оказаться разными способами (в формировании СВ наибольший вклад вносит поглощение инфракрасного фотона с нижележащей ML и испускание фотона с вышележащей; в формировании ML участвуют однофотонные переходы и интерференция между ними и трехфотонными переходами), то и фотоэлектронный спектр, и параметры угловой анизотропии будут осциллировать в зависимости от фазы ϕ_{ir} :

$$\sigma(\phi_{\text{ir}}) = \sigma_{\text{av}} + \sigma_{\text{osc}} \cos(2\phi_{\text{ir}} - \phi_{\text{osc}}), \quad (4.37)$$

$$\beta_k = \frac{1}{\sigma(\phi_{\text{ir}})} (B_{k,\text{av}} + B_{k,\text{osc}} \cos(2\phi_{\text{ir}} - \phi_{B,\text{osc}})). \quad (4.38)$$

На рис. 4.15b представлен (смоделированный) типичный спектр RABBITT-осцилляций (RABBITT traces) как функции задержки ИК-импульса ($\phi_{\text{ir}} = \omega_{\text{ir}}\tau$) и энергии фотоэлектрона.

Для расчетов были выбраны параметры поля в соответствии с реализуемыми сейчас на установках ННГ; поле включает в себя нечетные ВУФ гармоники с 11 по 19 с напряженностью $E_n = 10^{-4}$ а.е., длительностью $\Gamma_n = 10$ фс и нулевыми фазами ϕ_n , и инфракрасную компоненту с напряженностью в диапазоне $E_{\text{ir}} = 2.5 \div 10 \cdot 10^{-3}$ а.е., в два раза большей длительностью $\Gamma_{\text{ir}} = 20$ фс, фаза которой могла меняться.

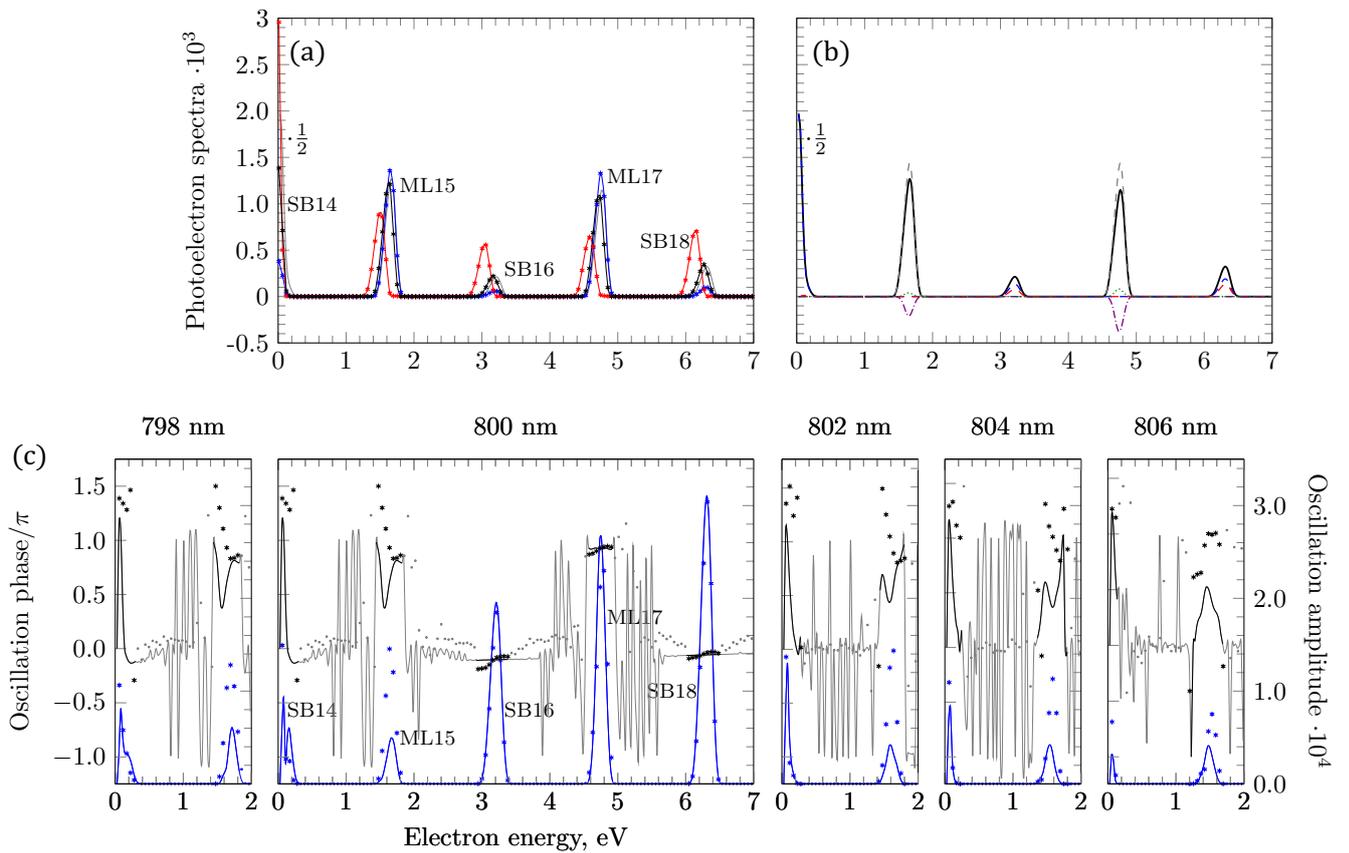


Рисунок 4.16 — (а) Усредненный по фазе спектр фотоэлектронов при длине волны затравочного поля 800 нм, полученный РСУ для напряженности ИК-поля $E_{\text{ir}} = 2.5 \cdot 10^{-3}$ а.е., $E_{\text{ir}} = 5 \cdot 10^{-3}$ а.е. и $E_{\text{ir}} = 10^{-2}$ а.е. — синяя, черная и красная линия, соответственно. Тонкая серая линия — результат ТВ для $E_{\text{ir}} = 5 \cdot 10^{-3}$ а.е.; (б) Усредненный по фазе ИК-поля спектр при 800 нм и $E_{\text{ir}} = 5 \cdot 10^{-3}$ а.е., полученный по теории возмущений. Жирная черная линия обозначает итоговый спектр; серая пунктирная — первый порядок ТВ; красная штрих-пунктирная — второй порядок ТВ, происходящий с испусканием ИК-фотона; синяя пунктирная — второй порядок ТВ с поглощением ИК-фотона; сиреневая штрих-пунктирная — вклад интерференции первого и третьего порядка; голубыми точками отмечен вклад от третьего порядка ТВ. (с) Величина осцилляций (синие линии и точки) и их фаза (черные линии и точки), рассчитанные по ТВ и РСУ для $E_{\text{ir}} = 5 \cdot 10^{-3}$ а.е. Для различных длин волн затравочного ИК-поля. Результаты ТВ представлены сплошными кривыми, результаты РСУ — точками.

На рисунке 4.16a представлены результаты расчетов при длине волны затравочного поля 800 нм по теории возмущений и методом решения скоростных уравнений. Пики при 1.8 и 4.8 эВ — это основные линии, результат ионизации 15-ой и 17-ой гармониками (ML15, ML17); пики при 0.2, 3.2 и 6.2 эВ — это боковые частоты (SB14, SB16, SB18). Подчеркнем, что, хотя в расчетах учиты-

валась 19-я гармоника, спектр обрезан при энергии, соответствующей боковой линии SB18, так как диапазон релевантных данных на $2\omega_{\text{ir}}$ меньше, чем диапазон энергий, учитываемых в расчетах. Положения пиков, полученных РСУ, отличаются для различных интенсивностей ИК-поля из-за динамического Штарковского сдвига и приближается к положениям по ТВ для меньшей напряженности $E_{\text{ir}} = 2.5 \cdot 10^{-3}$ а.е. Вероятности генерации боковых линий SB16 и SB18 для напряженностей $E_{\text{ir}} = 2.5 \cdot 10^{-3}$ а.е., $E_{\text{ir}} = 5 \cdot 10^{-3}$ а.е. и $E_{\text{ir}} = 10^{-2}$ а.е. относятся как 1 : 4 : 16, то есть для них сохраняется пертурбативный режим. Для частоты SB14, где сильную роль играют переходы через дискретные состояния, пертурбативный режим нарушается.

Рисунок 4.16b показывает вклады отдельных переходов в итоговый спектр в теории возмущений. Ожидаемо, что интерференция первого и третьего порядков (сиреневая штрих-пунктирная линия в области ML) должна иметь тот же порядок малости, что и боковые линии SB. Величина SB растет с ростом энергии, и переходы между состояниями непрерывного спектра, происходящие с испусканием ИК-фотона (красная пунктирная линия) систематически ниже, чем переходы, происходящие с поглощением ИК-фотона (синяя пунктирная линия). Роль переходов из состояний непрерывного спектра в припороговую боковую линию SB14 крайне мала. Для двухфотонных переходов, идущих с поглощением ИК фотона, доминируют амплитуды перехода в f -волну, для идущих с испусканием — в p -волну (см. рис. 3.5) в соответствии с обобщением *тенденции Фано* (Fano's Propensity Rule) [145].

Описание осцилляций RABBITT 4.15b ввиду того, что они подчиняются закону (4.37), можно проводить в терминах величины осцилляций σ_{osc} и фазы инфракрасного поля ϕ_{osc} , при котором число фотоэлектронов с данной энергией максимально. На рисунке 4.16c представлены σ_{osc} и ϕ_{osc} , полученные методами РСУ и ТВ (для удобства результаты РСУ сдвинуты на 0.05 эВ вправо для устранения Штарковского сдвига). Так же было исследовано влияние небольших вариаций длины волны затравочного поля на наблюдаемый спектр. Для той части спектра, где влияние переходов через дискретные состояния невелико, обе теории дают одинаковые предсказания (и поэтому представлены только для длины волны 800 нм), однако для припороговой области результаты начинают отличаться: ТВ систематически недооценивает величину осцилляций.

Величина и форма спектра в припороговой области, очевидно, оказывается наиболее чувствительной к небольшим изменениям частоты и является макси-

мальной для 802 нм. В ТВ фаза осцилляций резко меняется для разных компонент тонкой структуры резонанса, что является одним из проявлений теоремы Левинсона о связи асимптотического поведения амплитуды с числом связанных состояний [146; 147]. В неоне состояния $2p^5(^2P_{3/2})3d$ с $J = 1$ расщеплены на величину порядка 0.1 эВ (см. таблицу 3). На эту же величину расщеплены состояния конечного иона $2p^5^2P_{3/2,1/2}$. Некоторый намек на дублетную структуру, особенно заметный при $\lambda = 798$ и 800 нм, является проявлением тонкого расщепления порога ионизации $2p^5^2P_{3/2,1/2}$ при ионизации, идущей преимущественно через верхнюю компоненту $2p^5(^2P_{1/2})3d[\frac{3}{2}]_1$; при увеличении длины волны начинают эффективно возбуждаться и компоненты $2p^5(^2P_{3/2})3d[k]_1$, которые преимущественно ионизируются на нижний порог $2p^5^2P_{3/2}$. Из-за совпадения величины расщепления компонент $3d$ состояния и порога ионизации в спектре остается одна линия.

Параметры анизотропии $\beta_{2,4}$ представлены на рис. 4.17(a,b). Точками показаны результаты, полученные методом РСУ (также сдвинутые на 0.05 эВ вправо), а сплошные линии — ТВ. Ярким цветом отмечены усредненные по фазе инфракрасного поля величины, а бледным — их возможные максимальные и минимальные значения. Безразмерные параметры угловой анизотропии не являются гармоническими функциями фазы ИК-поля в отличие от величины спектра. Поскольку параметры угловой анизотропии представляют собой отношение некоторой величины к сечению, при энергиях, для которых вероятность испускания электрона находится на границе машинной точности, параметры анизотропии испытывают резкие скачки, не имеющие физического смысла, и поэтому не приведены.

Как было отмечено в начале, четность фотоэлектронов в основных и боковых линиях противоположна 4.15а, что объясняет различие в величинах $\beta_{2,4}$ в этих линиях.

Стоит также отметить, что для основных линий и SB14 сечение всегда ненулевое, а для боковых линий SB16,18 существует фаза инфракрасного поля, при которой оно стремится к нулю. Этим объясняется наблюдаемое при некоторых энергиях расхождение двух подходов при определении максимального значения $\beta_{2,4}$ в SB16,18 при совпадающей усредненной величине.

Параметр β_2 при энергиях фотоэлектронов, соответствующих ML, может сильно отличаться от того, что наблюдается при обычной однофотонной ионизации [121], что говорит о большом вкладе в формирование анизотропии амплитуд

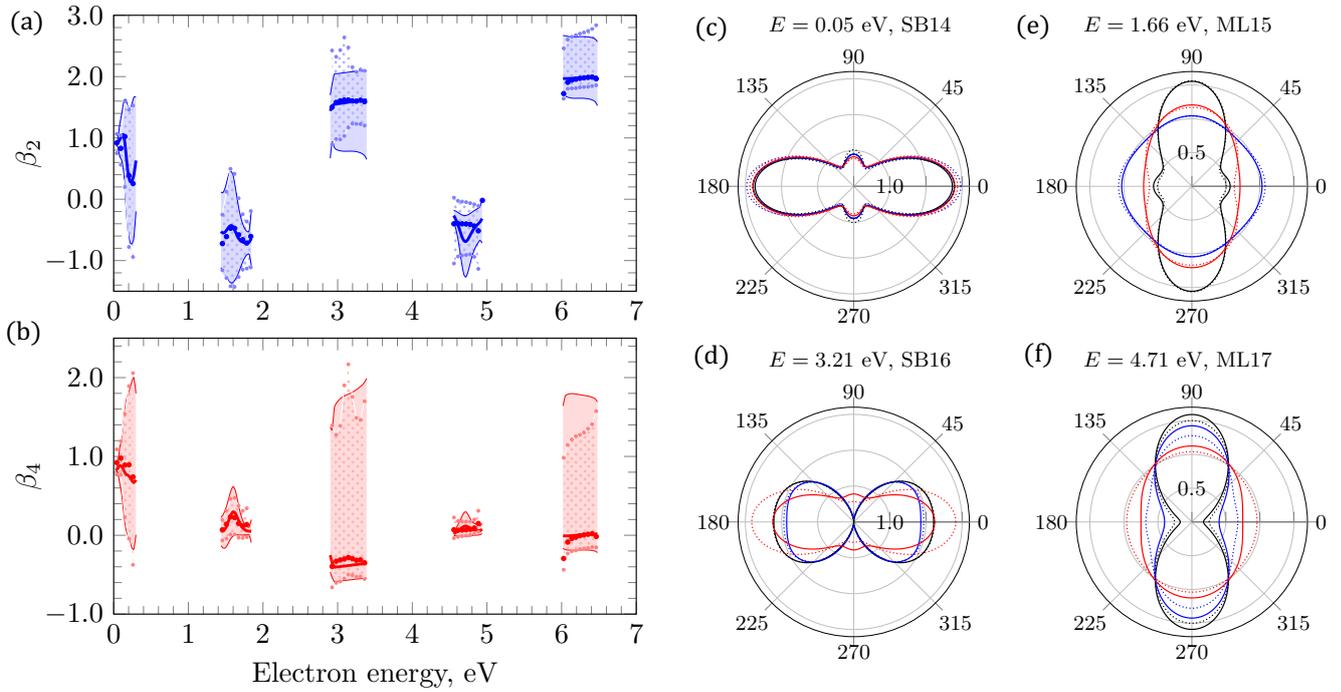


Рисунок 4.17 — Усредненные по фазе инфракрасного поля параметр угловой анизотропии фотоэлектронов β_2 (a) и β_4 (b), полученные методом РСУ (точки) и по теории возмущений (линии); тонкие линии и светлые точки, ограничивающие заштрихованные области на панелях отмечают область изменения параметров в соответствующем методе; (b) Сечение углового распределения фотоэлектронов плоскостью, проходящей через ось симметрии, для трех фаз инфракрасного поля $\phi = 0$ — черная линия, $\phi = \pi/4$ — синяя, $\phi = \pi/2$ — красная; сплошные линии показывают результаты ТВ, пунктирные — РСУ. Угловые распределения являются безразмерными величинами, масштаб для SB (a и c) и для ML (b и d) отличается в два раза

третьего порядка по ТВ, не дающих заметного вклада в интегральное сечение. Параметр β_4 в ML возникает исключительно за счет наличия амплитуд третьего порядка с полным моментом $J = 3$.

На рис. 4.17с-f изображена форма углового распределения фотоэлектронной эмиссии при фиксированной энергии фотоэлектрона, соответствующей максимумам вероятности в SB14, ML15, SB16 и ML17 для трех фаз затравочного поля. Видно, что угловые распределения в SB14 и ML15 линиях слабо отличаются в различных подходах. Отличие в SB16 и ML17 более существенное. Это отличие объясняется тем, что хотя максимальные и минимальные значения параметров угловой анизотропии в РСУ и ТВ совпадают, они достигаются при слегка различных фазах ИК-поля. В условиях реального эксперимента, когда происхо-

дит естественное усреднение по некоторому интервалу фазы ИК-поля и энергии фотоэлектрона, угловые распределения совпадут. Самое существенное различие угловых распределений, наблюдаемое для SB16 при $\phi_{\text{ir}} = \pi/2$ (красные линии рис. 4.17d), объясняется тем, что вероятность фотоэмиссии при этих параметрах практически нулевая.

Особо подчеркнем, что SB14 образуется при участии переходов через дискретные состояния конфигурации $2p^53d$, возбуждаемые при поглощении $2p$ -электроном фотона 13 гармоник, что приводит к существенному отличию этой части спектра от более высокоэнергетической области. Предсказываемая РСУ и ТВ вариация в зависимости от ϕ_{ir} параметров угловой анизотропии в SB14 лучше согласуются между собой, чем вариация интегральных спектров в этой области. Слабая зависимость угловых распределений от фазы в SB14 (рис. 4.17c) говорит о доминировании одного из путей перехода в этой области, а именно резонансного перехода через $2p^53d$ дискретные состояния с поглощением $13\omega_{\text{ir}}$ и последующей ионизацией ω_{ir} в состояние с $l = 3$. Необычная зависимость ML15 от фазы (рис. 4.17e) вызвана, в свою очередь, доминированием переходов из $l = 3$ с поглощением ω_{ir} .

Заключение

Была создана теоретическая модель, описывающая многофотонную полихроматическую ионизацию на языке статистических тензоров в дипольном приближении. На основе этой модели исследовано два процесса — бихроматической ионизации полем двух частот “ $\omega + 2\omega$ ” и полихроматической ионизации полем нескольких частот “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ”, — как частные случаи общей задачи. Для них получены аналитические выражения для дифференциальной по направлению вылета и ориентации спина и интегральной вероятности фотоэмиссии. Разработано программное обеспечение на языке MATLAB, позволившее изучить поведение атомов в таких полях при большом наборе начальных параметров. Сформулирован критерий когерентного контроля $C(\vartheta, \varphi)$ над наблюдаемой величиной как величина ее модуляции при изменении фазы между гармониками. Для иллюстративных и практических расчетов были созданы спектроскопические модели атома неона методами MCHF и R -матрицы и атома гелия методами Хартри-Фока и устойчивой вариации. На основе исследования были сделаны следующие выводы:

1. Для процесса “ $\omega + 2\omega$ ” эффективность когерентного контроля над дифференциальными характеристиками фотоэлектронных спектров зависит от электромагнитного поля: энергий и относительных интенсивностей гармоник, а также длины импульса. Предельные ($C(\vartheta, \varphi) \rightarrow 1$) величины эффективности когерентного контроля достигаются для линейно и циркулярно поляризованных полей. Объяснен механизм появления поляризации спина фотоэлектронов.
2. Для процесса “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ” показано, что влияние переходов через дискретные состояния на спектр и дифференциальные характеристики фотоэлектронов носит локальный характер при умеренных интенсивностях ИК-поля. Переходы через дискретные состояния проявляются в появлении доминирующих каналов, что приводит к уменьшению величины осцилляций интегральной вероятности и постоянной форме углового распределения в припороговой линии.

Благодаря разделению динамической и геометрической части, сформулированный в диссертации метод может быть применен к другим атомным и ионным мишеням. Представление наблюдаемых величин в терминах статистиче-

ских тензоров углового момента позволяет применять метод и к поляризованным мишеням. Полученные в его рамках результаты позволяют планировать эксперименты по когерентному контролю в бихроматической “ $\omega + 2\omega$ ” ионизации, например, давать рекомендации по выбору поляризации излучения, диапазону интенсивностей и энергий фотонов, отбору мишени с нетривиальными свойствами и оптимальной постановке детекторов. Анализ результатов позволяет отфильтровать неудачные постановки экспериментов, в которых детекторы, аккумулирующие сигнал в определенном направлении, неприменимы.

Для процесса бихроматической ионизации “ $\omega + 2\omega$ ” дальнейшей перспективой развития может быть переход к системам без сферической симметрии, учет недипольных эффектов и эффектов закрученности света. Для процесса полихроматической ионизации в постановке RABBITT “ $\omega + 13\omega + 15\omega + \dots$ ” первоочередной задачей является применение метода к другим наборам поляризаций затравочных и высоких гармоник и анализу спиновой поляризации фотоэлектронов.

В заключение автор выражает благодарность и большую признательность научному руководителю Е. В. Грызловой за поддержку, помощь, обсуждение результатов и научное руководство. Также автор благодарит А. Н. Грум-Гржимайло, Д. М. Киселева, С. Н. Юдина, К. Баршата и Н. Дуге за плодотворное сотрудничество, О. И. Зацаринного и С. М. Буркова за предоставленное программное и техническое обеспечение, всех членов групп экспериментаторов под руководством Дж. Сансоне, К. Ч. Принца, и К. Уеды за предоставленные экспериментальные данные. Также автор благодарен создателям шаблона *Russian-Phd-LaTeX-Dissertation-Template* за помощь в оформлении диссертации.

Публикации автора по теме диссертации

Публикации в рецензируемых научных журналах, удовлетворяющих Положению о присуждении учёных степеней в МГУ имени М. В. Ломоносова

- A1. Gryzlova E. V., **Popova M. M.**, Grum-Grzhimailo A. N., Staroselskaya E. I., Douguet N., Bartschat K. *Coherent control of the photoelectron angular distribution in ionization of neon by a circularly polarized bichromatic field in the resonance region* // Physical Review A — Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2019. — Vol. 100, issue 6. — P. 063417. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.100.063417>. — **JIF = 2.97 (WoS)**. Общий объем статьи = 1.25 п.л., личный вклад = 0.83 п.л.
- A2. Gryzlova E. V., **Popova M. M.**, Grum-Grzhimailo A. N. *Spin polarization of photoelectrons in bichromatic extreme-ultraviolet atomic ionization* // Physical Review A — Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2020. — Vol. 102, issue 5. — P. 053116. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.102.053116>. — **JIF = 2.97 (WoS)**. Общий объем статьи = 1.06 п.л., личный вклад = 0.64 п.л.
- A3. You D., Ueda K., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., **Popova M. M.**, Staroselskaya E. I., Tugs O., Orimo Y., Sato T., Ishikawa K. L., Carpeggiani P. A., Csizmadia T., Füle M., Sansone G., Maroju P. K., D’Elia A., Mazza T., Meyer M., Callegari C., Di Fraia M., Plekan O., Richter R., Giannessi L., Allaria E., De Ninno G., Trovò M., Badano L., Diviacco B., Gaio G., Gauthier D., Mirian N., Penco G., Ribi ě P. R., Spampinati S., Spezzani C., Prince K. C. *New Method for Measuring Angle-Resolved Phases in Photoemission* // Physical Review X. — 2020. — Vol. 10, issue 3. — P. 031070. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.10.031070>. — **JIF = 14.42 (WoS)**. Общий объем статьи = 1.63 п.л., личный вклад = 0.68 п.л.
- A4. **Popova M. M.**, Gryzlova E. V., Kiselev M. D., Grum-Grzhimailo A. N. *Symmetry Violation in Bichromatic Ionization by a Free-Electron Laser: Photoelectron Angular Distribution and Spin Polarization* // Symmetry. — 2021. — Vol. 13, issue 6. — P. 1015. — URL: <https://doi.org/10.3390/sym13061015>. — **JIF = 2.94 (WoS)**. Общий объем статьи = 1.41 п.л., личный вклад = 1.13 п.л.

- A5. Gryzlova E. V., Carpeggiani P., **Popova M. M.**, Kiselev M. D., Douguet N., Reduzzi M., Negro M., Comby A., Ahmadi H., Wanie V., Castrovilli M. C., Fischer A., Eng-Johnsson P., Meyer M., Bartschat K., Burkov S. M., Csizmadia T., Dumergue M., Kühn S., Harshitha N. G., Fule M., Aeenehvand F., Stienkemeier F., Iablonskyi D., Ueda K., Finetti P., Zangrando M., Mahne N., Ishikawa K. L., Plekan O., Prince K. C., Allaria E., Giannessi L., Callegari C., Grum-Grzhimailo A. N., Sansone G. *Influence of an atomic resonance on the coherent control of the photoionization process* // Physical Review Research. — 2022. — Vol. 4, issue 3. — P. 033231. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.4.033231>. — **JIF = 4.23 (WoS)**. Общий объем статьи = 1.13 п.л., личный вклад = 0.43 п.л.
- A6. **Попова М. М.**, Грызлова Е. В., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н. *Ионизация атомов бихроматическим полем кратных $\omega + 2\omega$ частот произвольной поляризации* // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2022. — Т. 162, вып. 1. — С. 72—86. — URL: <http://jetp.ras.ru/cgi-bin/e/index/r/162/1/p72?a=list>. — **IF = 0.79 (РИНЦ)**. Общий объем статьи = 1.75 п.л., личный вклад = 1.40 п.л.
- A7. **Popova M. M.**, Kiselev M. D., Burkov S. M., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N. *Spectroscopic Peculiarities at Ionization of Excited $2p^5(2PJ_f)3s[K]_{0,1,2}$ States of Ne: Cooper Minima and Autoionizing Resonances* // Atoms. — 2022. — Vol. 10, issue 4. — URL: <https://doi.org/10.3390/atoms10040102>. — **JIF = 1.80 (WoS)**. Общий объем статьи = 1.13 п.л., личный вклад = 0.98 п.л.
- A8. **Попова М. М.**, Юдин С. Н., Грызлова Е. В., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н. *Аттосекундная интерферометрия при участии дискретных состояний* // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2023. — Т. 163, вып. 3. — С. 297—308. — URL: <http://jetp.ras.ru/cgi-bin/e/index/r/163/3/p297?a=list>. — **IF = 0.79 (РИНЦ)**. Общий объем статьи = 1.31 п.л., личный вклад = 1.08 п.л.
- A9. Юдин С. Н., **Попова М. М.**, Киселев М. Д., Бурков С. М., Грызлова Е. В., Грум-Гржимайло А. Н. *Аттосекундная интерферометрия атома неона: угловые распределения фотоэлектронов* // Вестник Московского университета. Серия 3: Физика, астрономия. — 2023. — Т. 78, вып. 3. —

С. 2330401. — URL: <http://vmu.phys.msu.ru/abstract/2023/3/2330401/>. — **IF = 0.52 (РИНЦ)**. Общий объем статьи = 0.63 п.л., личный вклад = 0.50 п.л.

- A10. **Попова М. М.**, Grum-Grzhimailo A. N., Gryzlova E. V. *On Phase and Amplitude Extraction in Bichromatic Ionization: A Proposal* // *Photonics*. — 2023. — Vol. 10, issue 10. — P. 1069. — URL: <https://doi.org/10.3390/photonics10101069>. — **JIF = 2.54 (WoS)**. Общий объем статьи = 1.22 п.л., личный вклад = 0.98 п.л.

Публикации в рецензируемых научных журналах из перечня ВАК РФ

- A11. Грызлова Е. В., **Попова М. М.** *Управление угловым распределением фотоэлектронов при ионизации неона циркулярно поляризованными основной и второй гармониками высокочастотного лазера* // *Ученые записки физического факультета Московского Университета*. — 2019. — Вып. 2. — С. 1920102. — URL: <http://uzmu.phys.msu.ru/abstract/2019/2/1920102/>. — **IF = 0.06 (РИНЦ)**. Общий объем статьи = 0.43 п.л., личный вклад = 0.38 п.л.

Публикации в сборниках трудов конференций и тезисы докладов

- A12. Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., Popova M. M., Staroselskaya E. I., Douguet N., Bartschat K. *Correlation and polarization phenomena in bichromatic atomic ionization and their coherent control* // Programme and Book of abstract of International Conference on Many Particle Spectroscopy of atoms, molecules, clusters and surfaces. — Budapest, Hungary, 2018. — P. 83—83.
- A13. Грызлова Е. В., **Попова М. М.** *Управление угловым распределением фотоэлектронов при ионизации неона циркулярно поляризованными основной и второй гармониками высокочастотного лазера* // Труды XIX Межвузовской научной школы молодых специалистов “Концентрированные потоки энергии в космической технике, электронике, экологии и медицине” (Москва, Россия, 26–27 ноября 2018). — КДУ, “Университетская книга”, Москва, 2018. — С. 7—10.

- A14. You D., Ueda K., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., Popova M. M., Staroselskaya E. I., Tugs O., Orimo Y., Sato T., Ishikawa K. L., Carpeggiani P. A., Csizmadia T., Füle M., Harshitha N. G., Sansone G., Maroju P. K., Meyer M., Mazza T., D'Elia A., Callegari C., Fraia M. D., Plekan O., Giannessi L., Allaria E. M., De Ninno G., Trovò M., Badano L., Diviacco B., Gauthier D., Mirian N. S., Penco G. M., Rebernik P. R., Spampinati S., Spezzani C., Gaio G., Prince K. C. *Attosecond-precision coherent control experiment at FERMI // 20th International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (COPIAMC)*. — CNRS-Université de Lorraine Metz, France, 2019. — P. 32—32.
- A15. Grum-Grzhimailo A. N., Gryzlova E. V., Popova M. M., Staroselskaya E. I. *Elementary processes in atoms and ions in the field of x-ray free electron lasers // 17th International Workshop “Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation”, Book of Abstracts*. — Типография Онлайн Копи г.Москва, 2019. — P. 74.
- A16. Gryzlova E. V., Popova M. M., Grum-Grzhimailo A. N. *Nonlinear Emphasizing of Electron Spin Polarization Caused by Two-pathway Interference in VUV Photoionization // ABSTRACTS BOOKLET and Summary of The 5th International Symposium on Intense Short Wavelength Processes in Atoms and Molecules (ISWAMP)*. — Paris, France, 2019. — IT-12—IT-12.
- A17. Popova M. M., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N. *On a possibility to observe and control spin polarization of photoelectrons produced by bi-chromatic coherent XUV radiation // 20th International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (COPIAMC)*. — CNRS-Université de Lorraine Metz, France, 2019. — P. 54—54.
- A18. Gryzlova E. V., Popova M. M., Grum-Grzhimailo A. N. *Photoelectron spin polarization in bichromatic-field ionization of atoms // 20th International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (COPIAMC)*. — CNRS-Université de Lorraine Metz, France, 2019. — P. 18—18.
- A19. Grum-Grzhimailo A. N., Gryzlova E. V., Popova M. M. *Polarization phenomena in bichromatic ionization of Ne and Ar induced by circularly polarized VUV femtosecond pulses // Book of Abstracts “XXXI International Conference On*

- Photonic, Electronic, And Atomic Collisions”, 23-30.07.2019. — Deauville, France, 2019. — P. 96—96.
- A20. Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., Popova M. M., Staroselskaya E. I., Douguet N., Bartschat K. *Symmetry breaking atomic ionization by coherent circularly polarized bichromatic radiation* // 13th European Conference on Atoms, Molecules, and Photons Abstract Book. — Florence, 2019. — P. 314.
- A21. Грызлова Е. В., Попова М. М. *Когерентный контроль над угловым распределением электронов при ионизации неона бихроматическим циркулярно поляризованным лазерным излучением* // Материалы Международного молодежного научного форума “Ломоносов-2019” / под ред. И. А. Алешковский, А. В. л. Андриянов, Е. А. Антипов. — Москва : Москва, 2019. — С. 95—97.
- A22. Grum-Grzhimailo A. N., Gryzlova E. V., Popova M. M. *Polarization phenomena in bichromatic ionization of Ne and Ar induced by circularly polarized VUV femtosecond pulses* // Journal of Physics: Conference Series. — 2020. — Vol. 1412, issue 11. — P. 112004.
- A23. Попова М. М., Грызлова Е. В., Киселев М. Д. *Моделирование угловых распределений электронов при ионизации атомов бихроматическим линейно поляризованным лазерным излучением с одновременным возбуждением дискретных и автоионизационных состояний* // Материалы Международного молодежного научного форума “Ломоносов-2020”. Т. 2 / под ред. И. А. Алешковский, А. В. Андриянов, Е. А. Антипов. — Москва : Москва, 2020. — С. 45.
- A24. Грызлова Е. В., Попова М. М., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н. *Управление угловыми распределениями электронной эмиссии в бихроматической ионизации атомов в область структурированного непрерывного спектра* // Научная конференция “Ломоносовские Чтения”. Секция физики. Октябрь 2020. Сборник тезисов докладов / Под ред. Н.Н. Сысоева. — М., Физический факультет МГУ, 2020 г. 252 с. — Москва : Москва, 2020. — С. 247—251.
- A25. Moiola M., Hamilton K. R., Ahmadi H., Ertel D., Schmoll M., Popova M. M., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., Kiselev M. D., Atri-Schuller D., Menning G. P., Bartschat K., Schröter C. D., Moshhammer R., Pfeifer T., Sansone G.

- Attosecond electron dynamics near the ionization threshold in Ne* // Book of abstracts of 32nd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (VICPEAC2021). — 2021. — P. 391—391.
- A26. Грызлова Е. В., Попова М. М., Киселев М. Д., Юдин С. Н., Грум-Гржимайло А. Н. *Исследование эволюции состояния квантовых систем в поле синхротронного излучения методами численного моделирования* // Сборник тезисов докладов xxii межвузовской молодежной научной школы-конференции имени Б. С. Ишханова “Концентрированные потоки энергии в космической технике электронике, экологии и медицине” 22–23 ноября 2021 г. — 2021. — С. 140—141.
- A27. Попова М. М., Грызлова Е. В., Киселев М. Д. *Поляризация спина электронов при ионизации легких атомов инертных газов линейно поляризованным бихроматическом полем* // Материалы Международного молодежного научного форума “Ломоносов-2021”. Т. 1 / под ред. И. А. Алешковский, А. В. Андриянов, Е. А. Антипов, Е. И. Зимакова. — Москва : Москва, 2021. — С. 39.
- A28. Hamilton K. R., Bartschat K., Moioli M., Ahmadi H., Busto D., Ertel D., Makos I., Schmoll M., Popova M. M., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., Kiselev M. D., Yudin S. N., Schröter C. D., Moshhammer R., Pfeifer T., Sansone G. *Observing attosecond dynamics near the ionization threshold in Ne* // International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces June 15-17, 2022, Turku, Finland, Book of Abstracts. — 2022. — P. 13—13.
- A29. Попова М. М., Юдин С. Н., Грызлова Е. В., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н. *О двух подходах к описанию RABBITT-спектроскопии* // Сборник тезисов докладов научной конференции «ЛОМОНОСОВСКИЕ ЧТЕНИЯ 2023». Секция физики. — 2023. — С. 14—17.
- A30. Грызлова Е. В., Попова М. М., Юдин С. Н., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н. *RABBITT-спектроскопия при участии дискретных состояний: фотоэлектронные спектры и угловые распределения* // Сборник научных трудов IX Международной конференции «Лазерные, плазменные исследования и технологии» ЛаПлаз-2023. — 2023. — С. 78.

- A31. Popova M. M., Yudin S. N., Gryzlova E. V., Kiselev M. D., Grum-Grzhimailo A. N. *Approbation of the rate equations method for studying the rabbit spectroscopy* // Book of abstracts of 19th International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation. — 2023. — P. 81.

Список литературы

1. Allaria E., Appio R., Badano L., Barletta *et al* W. A. *Highly coherent and stable pulses from the FERMI seeded free-electron laser in the extreme ultraviolet* // Nature Photonics. — 2012. — Vol. 6. — P. 699. — URL: <https://doi.org/10.1038/nphoton.2012.233>.
2. Lewenstein M., Balcou P., Ivanov M. Y., L’Huillier A., Corkum P. B. *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields* // Phys. Rev. A. — 1994. — Vol. 49, issue 3. — P. 2117—2132. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>.
3. Стрелков В. В., Платоненко В. Т., Стержантов А. Ф., Рябикин М. Ю. *Аттосекундные электромагнитные импульсы: генерация, измерение и применение. Генерация высоких гармоник интенсивного лазерного излучения для получения аттосекундных импульсов* // УФН. — 2016. — Т. 186, вып. 5. — С. 449—470. — URL: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2015.12.037670>.
4. Paul P. M., Toma E. S., Breger P., Mullot G., Augé F., Balcou P., Muller H. G., Agostini P. *Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation* // Science. — 2001. — Vol. 292, issue 5522. — P. 1689—1692. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.1059413>.
5. Mairesse Y., Bohan A. de, Frasinski L. J., Merdji H., Dinu L. C., Monchicourt P., Breger P., Kovačev M., Taïeb R., Carré B., Muller H. G., Agostini P., Salières P. *Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays* // Science. — 2003. — Vol. 302, issue 5650. — P. 1540—1543. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.1090277>.

6. Klünder K., Dahlström J. M., Gisselbrecht M., Fordell T., Swoboda M., Guénot D., Johnsson P., Caillat J., Mauritsson J., Maquet A., Taïeb R., L'Huillier A. *Probing Single-Photon Ionization on the Attosecond Time Scale* // Phys. Rev. Lett. — 2011. — Vol. 106, issue 14. — P. 143002. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.143002>.
7. Ranitovic P., Hogle C. W., Rivière P., Palacios A., Tong X.-M., Toshima N., González-Castrillo A., Martin L., Martín F., Murnane M. M., Kapteyn H. *Attosecond vacuum UV coherent control of molecular dynamics* // Proceedings of the National Academy of Sciences. — 2014. — Vol. 111, issue 3. — P. 912—917. — URL: <https://doi.org/10.1073/pnas.1321999111>.
8. Cattaneo L., Vos J., Lucchini M., Gallmann L., Cirelli C., Keller U. *Comparison of attosecond streaking and RABBITT* // Opt. Express. — 2016. — Vol. 24, issue 25. — P. 29060—29076. — URL: <https://doi.org/10.1364/OE.24.029060>.
9. Prince K. C., Allaria E., Callegari C., Cucini *et al* R. *Coherent control with a short-wavelength free-electron laser* // Nature Photonics. — 2016. — Vol. 10. — P. 176. — URL: <https://doi.org/10.1038/nphoton.2016.13>.
10. Vos J., Cattaneo L., Patchkovskii S., Zimmermann T., Cirelli C., Lucchini M., Kheifets A., Landsman A. S., Keller U. *Orientation-dependent stereo Wigner time delay and electron localization in a small molecule* // Science. — 2018. — Vol. 360, issue 6395. — P. 1326—1330. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.aao4731>.
11. Di Fraia M., Plekan O., Callegari C., Prince K. C., Giannessi L., Allaria E., Badano L., De Ninno G., Trovò M., Diviacco B., Gauthier D., Mirian N., Penco G., Ribič P. R., Spampinati S., Spezzani C., Gaio G., Orimo Y., Tugs O., Sato T., Ishikawa K. L., Carpeggiani P. A., Csizmadia T., Füle M., Sansone G., Kumar Maroju P., D'Elia A., Mazza T., Meyer M., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., You D., Ueda K. *Complete Characterization of Phase and Amplitude of Bichromatic Extreme Ultraviolet Light* // Phys. Rev. Lett. — 2019. — Vol. 123, issue 21. — P. 213904. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.213904>.

12. Ossiander M., Riemensberger J., Neppel S., Mittermair M., Schaffer M., Duensing A., Wagner M. S., Heider R., Wurzer M., Gerl M., et al. *Absolute timing of the photoelectric effect* // Nature. — 2018. — Vol. 561. — P. 374. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0503-6>.
13. Maroju P. K., Grazioli C., Di Fraia M., Muioli M., Ertel D., Ahmadi H., Plekan O., Finetti P., Allaria E., Giannessi L. *Attosecond pulse shaping using a seeded free-electron laser* // Nature. — 2020. — Vol. 578, issue 7795. — P. 386—391. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41586-020-2005-6>.
14. Stevens M. J., Smirl A. L., Bhat R. D. R., Najmaie A., Sipe J. E., Driel H. M. van. *Quantum Interference Control of Ballistic Pure Spin Currents in Semiconductors* // Phys. Rev. Lett. — 2003. — Vol. 90, issue 13. — P. 136603. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.90.136603>.
15. Zewail A. H. *Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond* // The Journal of Physical Chemistry A. — 2000. — Vol. 104, issue 24. — P. 5660—5694. — URL: <https://doi.org/10.1021/jp001460h>.
16. Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., Staroselskaya E. I., Douguet N., Bartschat K. *Quantum coherent control of the photoelectron angular distribution in bichromatic-field ionization of atomic neon* // Phys. Rev. A. — 2018. — Vol. 97, issue 1. — P. 013420. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.013420>.
17. Goetz R. E., Koch C. P., Greenman L. *Perfect control of photoelectron anisotropy for randomly oriented ensembles of molecules by XUV REMPI and polarization shaping* // The Journal of Chemical Physics. — 2019. — Vol. 151, issue 7. — P. 074106. — URL: <https://doi.org/10.1063/1.5111362>.
18. Chen C., Yin Y.-Y., Elliott D. S. *Interference between optical transitions* // Phys. Rev. Lett. — 1990. — Vol. 64, issue 5. — P. 507—510. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.64.507>.
19. Баранова Н. Б., Зельдович Б. Я., Чудинов А. Н., Шульгинов А. А. *Теория и наблюдение полярной асимметрии фотоионизации в поле с $E^3 \neq 0$* // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 1990. — Т. 98, № 6. — С. 1857. — URL: <http://jetp.ras.ru/cgi-bin/e/index/r/98/6/p1857?a=list>.

20. Callegari C., Grum-Grzhimailo A. N., Ishikawa K. L., Prince K. C., Sansone G., Ueda K. *Atomic, molecular and optical physics applications of longitudinally coherent and narrow bandwidth Free-Electron Lasers* // *Physics Reports*. — 2021. — Vol. 904. — P. 1—59. — URL: <https://doi.org/10.1016/j.physrep.2020.12.002>.
21. Wang Y., Greene C. H. *Resonant control of photoelectron directionality by interfering one- and two-photon pathways* // *Phys. Rev. A*. — 2021. — Vol. 103, issue 5. — P. 053118. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.103.053118>.
22. Hofbrucker J., Böning B., Volotka A. V., Fritzsche S. *Elliptical dichroism in biharmonic ionization of atoms* // *Phys. Rev. A*. — 2021. — Vol. 104, issue 1. — P. 013102. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.104.013102>.
23. Cao C., Li M., Liang J., Yan J., Guo K., Li Z., Liu Y., Zhou Y., Lu P. *Angular distribution of near-threshold photoelectrons from resonance-enhanced multiphoton ionization of argon* // *Phys. Rev. A*. — 2022. — Vol. 106, issue 3. — P. 033112. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.106.033112>.
24. Bello R. Y., Borràs V. J., González-Vázquez J., Martín F. *Electronic coherences in argon through interfering one- and two-photon ionization processes in the vicinity of Feshbach resonances* // *Phys. Rev. Res.* — 2022. — Vol. 4, issue 4. — P. 043028. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.4.043028>.
25. Mayer N., Patchkovskii S., Morales F., Ivanov M., Smirnova O. *Imprinting Chirality on Atoms Using Synthetic Chiral Light Fields* // *Phys. Rev. Lett.* — 2022. — Vol. 129, issue 24. — P. 243201. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.129.243201>.
26. Vénier V., Taïeb R., Maquet A. *Phase dependence of $(N+1)$ -color ($N>1$) ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics* // *Phys. Rev. A*. — 1996. — Vol. 54, issue 1. — P. 721—728. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.54.721>.
27. Benda J., Mašín Z., Gorfinkiel J. D. *Analysis of RABITT time delays using the stationary multiphoton molecular R -matrix approach* // *Phys. Rev. A*. — 2022. — Vol. 105, issue 5. — P. 053101. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.105.053101>.

28. Lindroth E., Dahlström J. M. *Attosecond delays in laser-assisted photodetachment from closed-shell negative ions* // Phys. Rev. A. — 2017. — Vol. 96, issue 1. — P. 013420. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.96.013420>.
29. Vinbladh J., Dahlström J. M., Lindroth E. *Many-body calculations of two-photon, two-color matrix elements for attosecond delays* // Phys. Rev. A. — 2019. — Vol. 100, issue 4. — P. 043424. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.100.043424>.
30. Harth A., Douguet N., Bartschat K., Moshhammer R., Pfeifer T. *Extracting phase information on continuum-continuum couplings* // Phys. Rev. A. — 2019. — Vol. 99, issue 2. — P. 023410. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.023410>.
31. Kheifets A. S., Bray A. W. *RABBITT phase transition across the ionization threshold* // Phys. Rev. A. — 2021. — Vol. 103, issue 1. — P. L011101. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.103.L011101>.
32. Bharti D., Atri-Schuller D., Menning G., Hamilton K. R., Moshhammer R., Pfeifer T., Douguet N., Bartschat K., Harth A. *Decomposition of the transition phase in multi-sideband schemes for reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions* // Phys. Rev. A. — 2021. — Vol. 103, issue 2. — P. 022834. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.103.022834>.
33. Kheifets A. *Revealing the Target Electronic Structure with Under-Threshold RABBITT* // Atoms. — 2021. — Vol. 9, issue 3. — URL: <https://doi.org/10.3390/atoms9030066>.
34. Dahlström J. M., L'Huillier A., Mauritsson J. *Quantum mechanical approach to probing the birth of attosecond pulses using a two-colour field* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2011. — Vol. 44, issue 9. — P. 095602. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/44/9/095602>.
35. Schneider B. I., Hamilton K. R., Bartschat K. *Generalizations of the R-Matrix Method to the Treatment of the Interaction of Short-Pulse Electromagnetic Radiation with Atoms* // Atoms. — 2022. — Vol. 10, issue 1. — URL: <https://doi.org/10.3390/atoms10010026>.
36. Варшалович Д. А., Херсонский В. К., Орленко Е. В., Москалев А. Н. *Квантовая теория углового момента и ее приложения*. Т. 1. — Москва, 2017.

37. Balashov V. V., Grum-Grzhimailo A. N., Kabachnik N. M. *Polarization and Correlation Phenomena in Atomic Collisions: A Practical Theory Course*. — New York : Kluwer Academic/Plenum Publishers, 2000. — 250 p.
38. Froese Fischer C., Brage T., Jönsson P. *Computational Atomic Structure. An MCHF Approach*. — Bristol, Institute of Physics Publishing, 1997.
39. Zatsarinny O. *BSR: B-spline atomic R-matrix codes* // Computer Physics Communications. — 2006. — Vol. 174, issue 4. — P. 273—356. — URL: <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2005.10.006>.
40. A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team. — 2022. — NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.10), [Online]. Available: <https://physics.nist.gov/asd> [2023, February 14]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
41. Salvat F., Fernández-Varea J. M. *radial: A Fortran subroutine package for the solution of the radial Schrödinger and Dirac wave equations* // Computer Physics Communications. — 2019. — Vol. 240. — P. 165—177. — URL: <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2019.02.011>.
42. Reiss H. R. *The tunnelling model of laser-induced ionization and its failure at low frequencies* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2014. — Vol. 47, issue 20. — P. 204006. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/47/20/204006>.
43. Келдыш Л. В. *Ионизация в поле сильной электромагнитной волны* // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 1964. — Т. 47, № 5. — С. 1945—1958. — URL: <http://jetp.ras.ru/cgi-bin/e/index/r/47/5/p1945?a=list>.
44. Gao B., Starace A. F. *Variational Calculation of Multiphoton Ionization Processes for the H Atom* // Phys. Rev. Lett. — 1988. — Vol. 61, issue 4. — P. 404—407. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.61.404>.
45. Potvliege R. M., Shakeshaft R. *Multiphoton processes in an intense laser field: Harmonic generation and total ionization rates for atomic hydrogen* // Phys. Rev. A. — 1989. — Vol. 40. — P. 3061. — URL: <https://doi.org/10.1103/physreva.40.3061>.
46. Chu S. I., Cooper J. *Threshold shift and above-threshold multiphoton ionization of atomic hydrogen in intense laser fields* // Phys. Rev. A. — 1985. — Vol. 32. — P. 2769. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.32.2769>.

47. Shakeshaft R., X.Tang. *Integral-equation approach to multiphoton ionization by intense fields. II. Application to H and H⁻* // Phys. Rev. A. — 1987. — Vol. 36. — P. 3193. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.36.3193>.
48. Faisal F. H. M. *Multiple absorption of laser photons by atoms* // J. Phys. B. — 1973. — Vol. 6. — P. L89—L92. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3700/6/4/011>.
49. Reiss H. R. *Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system* // Phys. Rev. A. — 1980. — Vol. 22. — P. 1786—1813. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.22.1786>.
50. Brabec T., Krausz F. *Intense few-cycle laser fields: frontiers of nonlinear optics* // Rev. Mod. Phys. — 2000. — Vol. 72. — P. 545—591. — URL: <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.72.545>.
51. Scrinzi A., Geissler M., Brabec T. *Ionization above the coulomb barrier* // Phys. Rev. Lett. — 1999. — Vol. 83. — P. 706—709. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.83.706>.
52. Yudin G. L., Ivanov M. Y. *Nonadiabatic tunnel ionization: looking inside a laser cycle* // Phys. Rev. A. — 2001. — Vol. 64. — P. 013409. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.64.013409>.
53. Попов В. С. *Туннельная и многофотонная ионизация атомов и ионов в сильном лазерном поле (теория Келдыша)* // Успехи физических наук. — 2004. — Т. 174, № 9. — С. 921—951. — URL: <https://doi.org/10.3367/UFNr.0174.200409a.0921>.
54. Карнаков Б. М., Мур В. Д., Попруженко С. В., Попов В. С. *Современное развитие теории нелинейной ионизации атомов и ионов* // Успехи физических наук. — 2015. — Т. 185, № 1. — С. 3—34. — URL: <https://doi.org/10.3367/UFNr.0185.201501b.0003>.
55. Kulander K. C., Schafer K. J., Krause J. L. *Atoms in Intense Laser Fields, edited by M. Gavrila*. — Academic, New York, 1992. — URL: https://doi.org/10.1007/0-306-47464-6_7 ; p, 247.
56. Lambropoulos P., Tang X. *Atoms in Intense Laser Fields, edited by M. Gavrila*. — Academic, New York, 1992. — URL: https://doi.org/10.1007/0-306-47464-6_7 ; p. 335.

57. Messiah A. *Quantum Mechanics*. — Dover Publications, 1961.
58. Ландау Л. Д., Лившиц Е. М. *Квантовая механика: нерелятивистская теория*. — Москва : Физматлит, 2004.
59. Brumer P., Shapiro M. *Control of unimolecular reactions using coherent light* // *Chemical Physics Letters*. — 1986. — Vol. 126, issue 6. — P. 541—546. — URL: [https://doi.org/10.1016/S0009-2614\(86\)80171-3](https://doi.org/10.1016/S0009-2614(86)80171-3).
60. Shapiro M., John W. H., Brumer P. *Simplified laser control of unimolecular reactions: Simultaneous (ω_1, ω_3) excitation* // *Chemical Physics Letters*. — 1988. — Vol. 149, issue 5. — P. 451—454. — URL: [https://doi.org/10.1016/0009-2614\(88\)80362-2](https://doi.org/10.1016/0009-2614(88)80362-2).
61. Fedorov M., Poluektov N. *Coherent control of strong-field two-pulse ionization of Rydberg atoms* // *Opt. Express*. — 2000. — Vol. 6, issue 5. — P. 117—123. — URL: <https://doi.org/10.1364/OE.6.000117>.
62. Chen C., Elliott D. S. *Measurements of optical phase variations using interfering multiphoton ionization processes* // *Phys. Rev. Lett.* — 1990. — Vol. 65, issue 14. — P. 1737—1740. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.65.1737>.
63. Баранова Н. Б., Бетеров И. Я., Зельдович Б. Я., Рябцев И. И., Чудинов А. Н., Шульгинов А. А. *Наблюдение интерференции одно- и двухфотонной ионизации 4s-состояния натрия* // *Письма в журнал экспериментальной и теоретической физики*. — 1992. — Т. 55, № 8. — С. 431. — URL: http://jetpletters.ru/ps/246/article_4076.shtml.
64. Long S., Becker W., McIver J. K. *Model calculations of polarization-dependent two-color high-harmonic generation* // *Phys. Rev. A*. — 1995. — Vol. 52, issue 3. — P. 2262—2278. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.52.2262>.
65. Stremoukhov S. Y., Yakovlev A. A., Andreev A. V. *High harmonic generation in two-color elliptical laser fields of different helicity* // *Laser Physics Letters*. — 2020. — Vol. 17, issue 8. — P. 085405. — URL: <https://doi.org/10.1088/1612-202X/ab9902>.

66. Sarantseva T. S., Frolov M. V., Manakov N. L., Ivanov M. Y., Starace A. F. *Harmonic generation spectroscopy with a two-colour laser field having orthogonal linear polarizations* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2013. — Vol. 46, issue 23. — P. 231001. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/46/23/231001>.
67. Stremoukhov S., Andreev A., Vodungbo B., Salières P., Mahieu B., Lambert G. *Origin of ellipticity of high-order harmonics generated by a two-color laser field in the cross-polarized configuration* // Phys. Rev. A. — 2016. — Vol. 94, issue 1. — P. 013855. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.94.013855>.
68. Lambert G., Vodungbo B., Gautier J., Mahieu B., Malka V., Sebban S., Zeitoun P., Luning J., Perron J., Andreev A., [et al.]. *Towards enabling femtosecond helicity-dependent spectroscopy with high-harmonic sources* // Nature communications. — 2015. — Vol. 6, issue 1. — P. 6167. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms7167>.
69. Fleischer A., Kfir O., Diskin T., Sidorenko P., Cohen O. *Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation* // Nature Photonics. — 2014. — Vol. 8, issue 7. — P. 543–549. — URL: <https://doi.org/10.1038/nphoton.2014.108>.
70. Frolov M. V., Manakov N. L., Minina A. A., Vvedenskii N. V., Silaev A. A., Ivanov M. Y., Starace A. F. *Control of Harmonic Generation by the Time Delay Between Two-Color, Bicircular Few-Cycle Mid-IR Laser Pulses* // Phys. Rev. Lett. — 2018. — Vol. 120, issue 26. — P. 263203. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.263203>.
71. Ngoko Djiokap J. M., Meremianin A. V., Manakov N. L., Hu S. X., Madsen L. B., Starace A. F. *Multistart spiral electron vortices in ionization by circularly polarized UV pulses* // Phys. Rev. A. — 2016. — Vol. 94, issue 1. — P. 013408. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.94.013408>.
72. Demekhin P. V., Artemyev A. N., Kastner A., Baumert T. *Photoelectron Circular Dichroism with Two Overlapping Laser Pulses of Carrier Frequencies ω and 2ω Linearly Polarized in Two Mutually Orthogonal Directions* // Phys. Rev. Lett. — 2018. — Vol. 121, issue 25. — P. 253201. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.121.253201>.

73. Grum-Grzhimailo A. N., Gryzlova E. V., Staroselskaya E. I., Venzke J., Bartschat K. *Interfering one-photon and two-photon ionization by femtosecond VUV pulses in the region of an intermediate resonance* // Phys. Rev. A. — 2015. — Vol. 91, issue 6. — P. 063418. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.91.063418>.
74. Goetz R. E., Koch C. P., Greenman L. *Quantum Control of Photoelectron Circular Dichroism* // Phys. Rev. Lett. — 2019. — Vol. 122, issue 1. — P. 013204. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.122.013204>.
75. Fedorov V. Y., Tzortzakis S. *Extreme THz fields from two-color filamentation of midinfrared laser pulses* // Phys. Rev. A. — 2018. — Vol. 97, issue 6. — P. 063842. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.063842>.
76. Tulsy V. A., Baghery M., Saalman U., Popruzhenko S. V. *Boosting terahertz-radiation power with two-color circularly polarized midinfrared laser pulses* // Phys. Rev. A. — 2018. — Vol. 98, issue 5. — P. 053415. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.98.053415>.
77. Clerici M., Peccianti M., Schmidt B. E., Caspani L., Shalaby M., Giguère M., Lotti A., Couairon A., Légaré F. ç., Ozaki T., Faccio D., Morandotti R. *Wavelength Scaling of Terahertz Generation by Gas Ionization* // Phys. Rev. Lett. — 2013. — Vol. 110, issue 25. — P. 253901. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.253901>.
78. Андерсон Д. З., Баранова Н. Б., Грин К., Зельдович Б. Я. *Интерференция одно- и двухфотонных процессов ионизации атомов и молекул* // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 1992. — Vol. 102, no. 2. — P. 397. — URL: <http://jetp.ras.ru/cgi-bin/e/index/r/102/2/p397?a=list>.
79. Schafer K. J., Kulander K. C. *Phase-dependent effects in multiphoton ionization induced by a laser field and its second harmonic* // Phys. Rev. A. — 1992. — Vol. 45, issue 11. — P. 8026—8033. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.45.8026>.
80. Würzler D., Eicke N., Möller M., Seipt D., Sayler A. M., Fritzsche S., Lein M., Paulus G. G. *Velocity map imaging of scattering dynamics in orthogonal two-color fields* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2017. — Vol. 51, issue 1. — P. 015001. — URL: <https://doi.org/10.1088/1361-6455/aa975c>.

81. Jašarević A., Hasović E., Milošević D. *Ionization by a strong orthogonal two-color laser field: a quantum-orbit-theory approach* // The European Physical Journal D. — 2022. — Vol. 76, issue 12. — P. 240. — URL: <https://doi.org/10.1140/epjd/s10053-022-00569-2>.
82. Stammer P., Patchkovskii S., Morales F. *Evidence of ac-Stark-shifted resonances in intense two-color circularly polarized laser fields* // Phys. Rev. A. — 2020. — Vol. 101, issue 3. — P. 033405. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.101.033405>.
83. Ayuso D., Jiménez-Galán A., Morales F., Ivanov M., Smirnova O. *Attosecond control of spin polarization in electron–ion recollision driven by intense tailored fields* // New Journal of Physics. — 2017. — Vol. 19, issue 7. — P. 073007. — URL: <https://doi.org/10.1088/1367-2630/aa732f>.
84. Milošević D. B. *Atomic and Molecular Processes in a Strong Bicircular Laser Field* // Atoms. — 2018. — Vol. 6, issue 4. — URL: <https://doi.org/10.3390/atoms6040061>.
85. Becker W., Milošević D. B. *Elliptic dichroism in strong-field ionization of atoms subjected to tailored laser fields* // Physical Chemistry Chemical Physics. — 2022. — Vol. 24, issue 11. — P. 7014–7027. — URL: <https://doi.org/10.1039/D1CP05209H>.
86. Wang Y., Greene C. H. *Coherent-control phase lag across doubly excited atomic strontium resonances in an $\omega - 2\omega$ interference scheme* // Phys. Rev. A. — 2023. — Vol. 107, issue 3. — P. 032804. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.107.032804>.
87. Fan J., Hofbrucker J., Volotka A., Fritzsche S. *Relativistic calculations of two-color two-photon K-shell ionization* // The European Physical Journal D. — 2022. — Vol. 76, issue 2. — P. 18. — URL: <https://doi.org/10.1140/epjd/s10053-021-00334-x>.
88. Grum-Grzhimailo A. N., Abeln B., Bartschat K., Weflen D., Urness T. *Ionization of atomic hydrogen in strong infrared laser fields* // Phys. Rev. A. — 2010. — Vol. 81, issue 4. — P. 043408. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.043408>.

89. Nikolopoulos G. M., Lambropoulos P. *Resonantly enhanced multiphoton ionization under XUV FEL radiation: a case study of the role of harmonics* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2015. — Vol. 48, issue 24. — P. 244006. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/48/24/244006>.
90. Krausz F., Ivanov M. *Attosecond physics* // Rev. Mod. Phys. — 2009. — Vol. 81, issue 1. — P. 163—234. — URL: <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.163>.
91. Pazourek R., Nagele S., Burgdörfer J. *Time-resolved photoemission on the attosecond scale: opportunities and challenges* // Faraday Discuss. — 2013. — Vol. 163. — P. 353—376. — URL: <http://doi.org/10.1039/C3FD00004D>.
92. Sansone G., Benedetti E., Calegari F., Vozzi C., Avaldi L., Flammini R., Poletto L., Villoresi P., Altucci C., Velotta R., Stagira S., Silvestri S. D., Nisoli M. *Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses* // Science. — 2006. — Vol. 314, issue 5798. — P. 443—446. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.1132838>.
93. Goulielmakis E., Schultze M., Hofstetter M., Yakovlev V. S., Gagnon J., Uiberacker M., Aquila A. L., Gullikson E. M., Attwood D. T., Kienberger R., Krausz F., Kleineberg U. *Single-Cycle Nonlinear Optics* // Science. — 2008. — Vol. 320, issue 5883. — P. 1614—1617. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.1157846>.
94. López-Martens R., Varjú K., Johnsson P., Mauritsson J., Mairesse Y., Salières P., Gaarde M. B., Schafer K. J., Persson A., Svanberg S., Wahlström C.-G., L’Huillier A. *Amplitude and Phase Control of Attosecond Light Pulses* // Phys. Rev. Lett. — 2005. — Vol. 94, issue 3. — P. 033001. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.033001>.
95. Strelkov V. V., Mével E., Constant E. *Generation of isolated attosecond pulses by spatial shaping of a femtosecond laser beam* // New Journal of Physics. — 2008. — Vol. 10, issue 8. — P. 083040. — URL: <https://doi.org/10.1088/1367-2630/10/8/083040>.
96. Constant E., Taranukhin V. D., Stolow A., Corkum P. B. *Methods for the measurement of the duration of high-harmonic pulses* // Phys. Rev. A. — 1997. — Vol. 56, issue 5. — P. 3870—3878. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.56.3870>.

97. Hentschel M., Kienberger R., Spielmann C., Reider G. A., Milosevic N., Brabec T., Corkum P., Heinzmann U., Drescher M., Krausz F. *Attosecond metrology* // Nature. — 2001. — Vol. 414. — P. 509. — URL: <https://doi.org/10.1038/35107000>.
98. Kitzler M., Milosevic N., Scrinzi A., Krausz F., Brabec T. *Quantum Theory of Attosecond XUV Pulse Measurement by Laser Dressed Photoionization* // Phys. Rev. Lett. — 2002. — Vol. 88, issue 17. — P. 173904. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.173904>.
99. Itatani J., Quéré F., Yudin G. L., Ivanov M. Y., Krausz F., Corkum P. B. *Attosecond Streak Camera* // Phys. Rev. Lett. — 2002. — Vol. 88, issue 17. — P. 173903. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.173903>.
100. Schultze M., Fieß M., Karpowicz N., Gagnon J., Korbman M., Hofstetter M., Neppl S., Cavalieri A. L., Komninos Y., Mercouris T., Nicolaides C. A., Pazourek R., Nagele S., Feist J., Burgdörfer J., Azzeer A. M., Ernstorfer R., Kienberger R., Kleineberg U., Goulielmakis E., Krausz F., Yakovlev V. S. *Delay in Photoemission* // Science. — 2010. — Vol. 328, issue 5986. — P. 1658—1662. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.1189401>.
101. Mairesse Y., Quéré F. *Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts* // Phys. Rev. A. — 2005. — Vol. 71, issue 1. — P. 011401. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.71.011401>.
102. Zhao K., Zhang Q., Chini M., Wu Y., Wang X., Chang Z. *Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch* // Opt. Lett. — 2012. — Vol. 37, issue 18. — P. 3891—3893. — URL: <https://doi.org/10.1364/OL.37.003891>.
103. Iaconis C., Walmsley I. A. *Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses* // Opt. Lett. — 1998. — Vol. 23, issue 10. — P. 792—794. — URL: <https://doi.org/10.1364/OL.23.000792>.
104. Quéré F., Itatani J., Yudin G. L., Corkum P. B. *Attosecond Spectral Shearing Interferometry* // Phys. Rev. Lett. — 2003. — Vol. 90, issue 7. — P. 073902. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.90.073902>.
105. Walmsley I. A., Dorrer C. *Characterization of ultrashort electromagnetic pulses* // Adv. Opt. Photon. — 2009. — Vol. 1, issue 2. — P. 308—437. — URL: <https://doi.org/10.1364/AOP.1.000308>.

106. Dudovich N., Smirnova O., Levesque J., Mairesse Y., Ivanov M. Y., Villeneuve D., Corkum P. B. *Measuring and controlling the birth of attosecond XUV pulses* // Nature physics. — 2006. — Vol. 2, issue 11. — P. 781—786. — URL: <https://doi.org/10.1038/nphys434>.
107. Kim K. T., Zhang C., Ruchon T., Hergott J.-F., Auguste T., Villeneuve D., Corkum P., Quéré F. *Photonic streaking of attosecond pulse trains* // Nature Photonics. — 2013. — Vol. 7, no. 8. — P. 651—656. — URL: <https://doi.org/10.1038/nphoton.2013.170>.
108. Рябикин М. Ю., Емелин М. Ю., Стрелков В. В. *Атмосекундные электромагнитные импульсы: генерация, измерение и применение. Атмосекундная метрология и спектроскопия* // УФН. — 2023. — Т. 193, вып. 5. — С. 382—405. — URL: <https://ufn.ru/ru/articles/2023/4/b/>.
109. Villeneuve D., Hockett P., Vrakking M., Niikura H. *Coherent imaging of an attosecond electron wave packet* // Science. — 2017. — Vol. 356, issue 6343. — P. 1150—1153. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.aam83>.
110. Sobelman I. I. *Atomic Spectra and Radiative Transitions*. — 1992.
111. Cowan R. D., Andrew K. L. *Coupling Considerations in Two-Electron Spectra** // J. Opt. Soc. Am. — 1965. — Vol. 55, issue 5. — P. 502—516. — URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=josa-55-5-502>.
112. Hartree D. R. *The wave mechanics of an atom with a non-Coulomb central field. Part I. Theory and methods* // Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society. Vol. 24. Issue 1. — Cambridge university press. 1928. — P. 89—110. — URL: <https://doi.org/10.1017/S0305004100011919>.
113. Fock V. *Näherungsmethode zur Lösung des quantenmechanischen Mehrkörperproblems* // Zeitschrift für Physik. — 1930. — Vol. 61. — P. 126—148.
114. Собельман И. И. *Введение в теорию атомных спектров*. — Москва : Физматгиз, 1963.
115. Marr G., West J. *Absolute photoionization cross-section tables for helium, neon, argon, and krypton in the VUV spectral regions* // Atomic Data and Nuclear Data Tables. — 1976. — Vol. 18, issue 5. — P. 497—508. — URL: [https://doi.org/10.1016/0092-640X\(76\)90015-2](https://doi.org/10.1016/0092-640X(76)90015-2).

116. Burke P., Hibbert A., Robb W. *Electron scattering by complex atoms* // Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. — 1971. — Vol. 4, issue 2. — P. 153. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3700/4/2/002>.
117. Burke P., Robb W. *The R-matrix theory of atomic processes* // Advances in atomic and molecular physics. — 1976. — Vol. 11. — P. 143–214. — URL: [https://doi.org/10.1016/S0065-2199\(08\)60030-5](https://doi.org/10.1016/S0065-2199(08)60030-5).
118. Zatsarinny O., Fischer C. F. *The use of basis splines and non-orthogonal orbitals in R-matrix calculations: application to Li photoionization* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2000. — Vol. 33, issue 3. — P. 313. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/33/3/303>.
119. Mazza T., Ilchen M., Kiselev M. D., Gryzlova E. V., Baumann T. M., Boll R., De Fanis A., Grychtol P., Montaña J., Music V., Ovcharenko Y., Rennhack N., Rivas D. E., Schmidt P., Wagner R., Ziolkowski P., Berrah N., Erk B., Johnsson P., Küstner-Wetekam C., Marder L., Martins M., Ott C., Pathak S., Pfeifer T., Rolles D., Zatsarinny O., Grum-Grzhimailo A. N., Meyer M. *Mapping Resonance Structures in Transient Core-Ionized Atoms* // Phys. Rev. X. — 2020. — Vol. 10, issue 4. — P. 041056. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.10.041056>.
120. Kiselev M. D., Reinhardt M., Patanen M., Kivimäki A., Powis I., Zatsarinny O., Grum-Grzhimailo A. N., Holland D. M. P. *An experimental and theoretical study of the Kr 3d correlation satellites* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2022. — Vol. 55, issue 5. — P. 055002. — URL: <https://doi.org/10.1088/1361-6455/ac521a>.
121. Codling K., Houlgate R. G., West J. B., Woodruff P. R. *Angular distribution and photoionization measurements on the 2p and 2s electrons in neon* // Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. — 1976. — Vol. 9, issue 5. — P. L83–L86. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3700/9/5/004>.
122. Mercouris T., Komninos Y., Dionissopoulou S., Nicolaidis C. A. *Computation of strong-field multiphoton processes in polyelectronic atoms: State-specific method and applications to H and Li⁻* // Phys. Rev. A. — 1994. — Vol. 50, issue 5. — P. 4109–4121. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.50.4109>.

123. Trippenbach M., Rzazewski K., Fedorov M. V., Kazakov A. E. *Semiclassical matrix elements, essential-states models and perturbation theory of above-threshold ionisation* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 1989. — Vol. 22, issue 8. — P. 1193. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/22/8/012>.
124. Vénierard V., Piraux B. *Continuum-continuum dipole transitions in femtosecond-laser-pulse excitation of atomic hydrogen* // Phys. Rev. A. — 1990. — Vol. 41, issue 7. — P. 4019—4034. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.41.4019>.
125. Korol A. V. *Singularities in the free-free dipole matrix element* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 1993. — Vol. 26, issue 24. — P. 4769. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/26/24/009>.
126. Gordon W. *Zur berechnung der matrizen beim wasserstoffatom* // Annalen der Physik. — 1929. — Vol. 394, issue 8. — P. 1031—1056.
127. Крыловецкий А. А., Манаков Н. Л., Мармо С. И. *Обобщенные штурмовские разложения кулоновской функции Грина и двухфотонные формулы Гордона* // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2001. — Т. 119, № 1. — С. 45—70. — URL: <http://jetp.ras.ru/cgi-bin/e/index/r/119/1/p45?a=list>.
128. Orel A., Rescigno T. *An algebraic variational approach to the calculation of total cross sections for one- and two-photon ionization* // Chemical Physics Letters. — 1988. — Vol. 146, issue 5. — P. 434—438. — URL: [https://doi.org/10.1016/0009-2614\(88\)87473-6](https://doi.org/10.1016/0009-2614(88)87473-6).
129. Старосельская Е. И., Грум-Гржимайло А. Н. *Метод устойчивой вариации в задаче двухфотонной ионизации атомов* // Вестник Московского университета. Серия 3. Физика. Астрономия. — 2015. — № 5. — С. 45—52. — URL: <http://vmu.phys.msu.ru/abstract/2015/5/15-5-45/>.
130. Haber L. H., Doughty B., Leone S. R. *Continuum phase shifts and partial cross sections for photoionization from excited states of atomic helium measured by high-order harmonic optical pump-probe velocity map imaging* // Phys. Rev. A. — 2009. — Vol. 79, issue 3. — P. 031401. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.79.031401>.

131. O’Keeffe P., Mihelič A., Bolognesi P., Žitnik M., Moise A., Richter R., Avaldi L. *Near-threshold photoelectron angular distributions from two-photon resonant photoionization of He* // New Journal of Physics. — 2013. — Vol. 15, issue 1. — P. 013023. — URL: <https://doi.org/10.1088/1367-2630/15/1/013023>.
132. Mondal S., Fukuzawa H., Motomura K., Tachibana T., Nagaya K., Sakai T., Matsunami K., Yase S., Yao M., Wada S., Hayashita H., Saito N., Callegari C., Prince K. C., O’Keeffe P., Bolognesi P., Avaldi L., Miron C., Nagasono M., Togashi T., Yabashi M., Ishikawa K. L., Sazhina I. P., Kazansky A. K., Kabachnik N. M., Ueda K. *Photoelectron angular distributions in infrared one-photon and two-photon ionization of FEL-pumped Rydberg states of helium* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2013. — Vol. 46, issue 20. — P. 205601. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/46/20/205601>.
133. Saenz A., Lambropoulos P. *Theoretical two-, three- and four-photon ionization cross sections of helium in the XUV range* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 1999. — Vol. 32, issue 23. — P. 5629. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/32/23/316>.
134. Nikolopoulos L. A. A., Lambropoulos P. *Multichannel theory of two-photon single and double ionization of helium* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2001. — Vol. 34, issue 4. — P. 545. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/34/4/304>.
135. Hofbrucker J., Volotka A. V., Fritzsche S. *Maximum Elliptical Dichroism in Atomic Two-Photon Ionization* // Phys. Rev. Lett. — 2018. — Vol. 121, issue 5. — P. 053401. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.121.053401>.
136. Boll D. I. R., Fojón O. A., McCurdy C. W., Palacios A. *Angularly resolved two-photon above-threshold ionization of helium* // Phys. Rev. A. — 2019. — Vol. 99, issue 2. — P. 023416. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.023416>.
137. Douguet N., Grum-Grzhimailo A. N., Gryzlova E. V., Staroselskaya E. I., Venzke J., Bartschat K. *Photoelectron angular distributions in bichromatic atomic ionization induced by circularly polarized VUV femtosecond pulses* // Phys. Rev. A. — 2016. — Vol. 93, issue 3. — P. 033402. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.93.033402>.

138. Ishikawa K. L., Ueda K. *Competition of Resonant and Nonresonant Paths in Resonance-Enhanced Two-Photon Single Ionization of He by an Ultrashort Extreme-Ultraviolet Pulse* // Phys. Rev. Lett. — 2012. — Vol. 108, issue 3. — P. 033003. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.033003>.
139. Moccia R., Rahman N. K., Rizzo A. *Two-photon ionisation cross section calculations of noble gases: results for Ne and Ar* // Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. — 1983. — Vol. 16, issue 15. — P. 2737. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3700/16/15/016>.
140. Cherepkov N. A. *Spin polarisation of photoelectrons ejected from unpolarised atoms* // Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. — 1979. — Vol. 12, issue 8. — P. 1279—1296. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3700/12/8/005>.
141. Nakajima T., Lambropoulos P. *Electron spin-polarization in single-, two- and three-photon ionization of xenon* // Europhys. Lett. — 2002. — Vol. 57, issue 1. — P. 25—31. — URL: <https://doi.org/10.1209/epl/i2002-00536-9>.
142. Heinzmann U., Dil J. H. *Spin-orbit-induced photoelectron spin polarization in angle-resolved photoemission from both atomic and condensed matter targets* // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2012. — Vol. 24, issue 17. — P. 173001. — URL: <https://doi.org/10.1088/0953-8984/24/17/173001>.
143. Cherepkov N. *Spin Polarization of Atomic and Molecular Photoelectrons* // Vol. 19 / ed. by D. Bates, B. Bederson. — Academic Press, 1983. — P. 395—447. — (Advances in Atomic and Molecular Physics). — URL: [https://doi.org/10.1016/S0065-2199\(08\)60258-4](https://doi.org/10.1016/S0065-2199(08)60258-4).
144. Dill D. *Resonances in Photoelectron Angular Distributions* // Phys. Rev. A. — 1973. — Vol. 7, issue 6. — P. 1976—1987. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.7.1976>.
145. Busto D., Vinbladh J., Zhong S., Isinger M., Nandi S., Maclot S., Johnsson P., Gisselbrecht M., L'Huillier A., Lindroth E., Dahlström J. M. *Fano's Propensity Rule in Angle-Resolved Attosecond Pump-Probe Photoionization* // Phys. Rev. Lett. — 2019. — Vol. 123, issue 13. — P. 133201. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.133201>.

146. Levinson N. *On the Uniqueness of the Potential in a Schrödinger Equation for a Given Asymptotic Phase* // Mat. Fys. Medd. K. Dan. Vidensk. Selsk. — 1949. — Vol. 25. — P. 9. — URL: <http://publ.royalacademy.dk/books/78/485?lang=da>.
147. Ландау Л. Д., Лившиц Е. М. *Квантовая механика: нерелятивистская теория*. — М. ФИЗМАТЛИТ, 2004.