

УДК 539.18

А.С. Четвёркина¹, А.Н. Грум-Гржимайло²,
Е.В. Грызлова², С.И. Страхова²

¹ Физический факультет, МГУ им. М.В. Ломоносова,
Ленинские горы, 119991, Москва, Россия
e-mail: asybit@yandex.ru

² НИИ ядерной физики им. Д.В. Скобельцына, МГУ им. М.В. Ломоносова,
Ленинские горы, 119991, Москва, Россия

ДВОЙНАЯ ТРЁХФОТОННАЯ ИОНИЗАЦИЯ АТОМОВ С ФОРМИРОВАНИЕМ ПРОМЕЖУТОЧНОГО ПОЛЯРИЗОВАННОГО ИОНА

Последовательная двойная трёхфотонная ионизация атомов - один из нелинейных процессов, происходящих под действием импульса диапазона рентгеновского или вакуумно-ультрафиолетового излучения лазера на свободных электронах. Для данного явления разработано теоретическое описание в рамках дипольного приближения и второго порядка теории возмущений. Получены сечение двойной трёхфотонной ионизации и угловые распределения фотоэлектронов для атома неона.

Ключевые слова: нелинейные процессы, излучение рентгеновского и ультрафиолетового диапазона, спектроскопия, фотоионизация атомов и ионов.

Введение

Взаимодействие интенсивных коротковолновых лазерных импульсов с веществом является одной из наиболее актуальных тем фундаментальных исследований [1]. Лазеры на свободных электронах (ЛСЭ), такие как FLASH (Германия), SCSS (Япония), FERMI (Италия), служат уникальным инструментом для исследования взаимодействия сильных лазерных импульсов диапазона вакуумного ультрафиолета (ВУФ) с атомами [2-4], молекулами [5, 6] и кластерами [7]. Одним из этих нелинейных явлений, изучение которых стало возможным с появлением ЛСЭ, является процесс последовательной двойной двухфотонной ионизации (ПДДИ) атомов. Этот процесс идёт в два этапа. На первой ступени один фотон ионизирует нейтральный атом, формируя промежуточный ион. На следующей ступени происходит ионизация промежуточного иона вторым фотоном того же импульса ЛСЭ. ПДДИ р-оболочки атомов инертных газов исследовалась методами фотоэлектронной спектроскопии [2, 3], а её теоретическое

описание было разработано нашей научной группой [8-10]. Для двух вылетевших электронов были получены угловые распределения и функции угловых корреляций, вид которых содержит богатую информацию о динамике процесса. Когда энергии фотона ЛСЭ недостаточно, чтобы ионизировать промежуточный ион, вторая ступень идёт через двухфотонное поглощение, и такой процесс представляет собой последовательную двойную трёхфотонную ионизацию (ПДТИ). Если интервал энергий фотона ЛСЭ перекрывается с энергией одного или нескольких возбуждённых состояний промежуточного иона, то говорят о резонансной ПДТИ. Резонансная ПДТИ наблюдалась экспериментально и описана теоретически в [11]. Нерезонансная ПДТИ также имеет экспериментальное подтверждение [12], а предварительные теоретические результаты для этого случая обсуждались нами в [13].

В данной статье мы излагаем формализм нерезонансной ПДТИ атомов в рамках второго порядка теории возмущений. Схема нерезонансной ПДТИ (на примере атома неона) представлена на рис. 1. Мы

рассматриваем линейно поляризованное излучение ЛСЭ, вследствие чего промежуточный ион оказывается выстроенным.

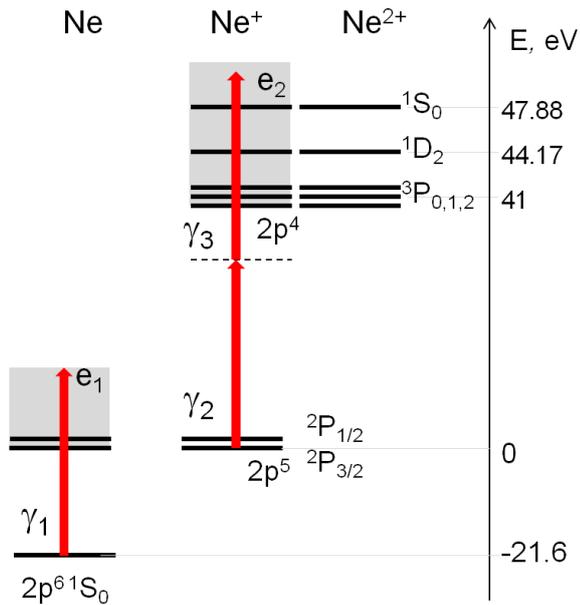


Рис. 1. Схема последовательной трёхфотонной двойной нерезонансной ионизации 2p оболочки атома неона.

В отличие от резонансной ПДТИ в данной работе для теоретического вычисления угловых распределений и функций угловых корреляций требуется расчёт электромагнитных переходов в непрерывном спектре. Переход между состояниями непрерывного спектра представляет собой отдельную задачу, так как дипольные матричные элементы такого перехода во втором порядке теории возмущений содержат сингулярность, которая не позволяет провести вычисления напрямую.

В работе используется атомная система единиц, если специально не оговорено.

Формализм и метод расчета

Две ступени процесса нерезонансной ПДТИ атома *A* условно можно записать

$$W(\theta_1, \varphi_1; \theta_2, \varphi_2) = \pi\alpha\omega \sum_{k_{\gamma_2} k_p k_{\gamma_3}} \sum_{k_i q_i k_2 q_2} \hat{k}_i \hat{k}_{\gamma_2} \hat{k}_p \hat{k}_{\gamma_3} \rho_{k_i q_i}(J_i; \theta_1, \varphi_1) \rho_{k_{\gamma_2} 0}^{\gamma} \rho_{k_{\gamma_3} 0}^{\gamma} \times (k_i q_i k_{\gamma_2} 0 | k_p q_i) (k_p q_i k_{\gamma_3} 0 | k_2 q_i) B(k_i, k_{\gamma_2}, k_p, k_{\gamma_3}, k_2) \sqrt{\frac{4\pi}{2k_2 + 1}} Y_{k_2 q_2}(\theta_2, \varphi_2) \quad (4)$$

следующим образом:

$$\gamma_1 + A(\alpha_0 J_0) \rightarrow A^+(\alpha_i J_i) + e_1(l_1 j_1), \quad (1)$$

$$\gamma_2 + \gamma_3 + A^+(\alpha_i J_i) \rightarrow A^{++}(\alpha_f J_f) + e_2(l_2 j_2). \quad (2)$$

Состояния атома, однократно и двукратно заряженных ионов в (1) и (2) характеризуются полными угловыми моментами J_0 , J_i и J_f , соответственно, а α_0 , α_i и α_f обозначают все остальные квантовые числа, необходимые для полного описания состояний. Введены обозначения для орбитального (l) и полного (j) угловых моментов фотоэлектронов с соответствующими индексами для каждой из ступеней.

Мы описываем поляризацию атомов, ионов, электронов и фотонов в формализме статистических тензоров, связанных с элементами матрицы плотности углового момента [14]:

$$\rho_{kq}(J; J') = \sum_{MM'} (-1)^{J'-M'} (JM J'-M' | kq) \times \langle J' M' | \hat{\rho} | JM \rangle, \quad (3)$$

где введено стандартное обозначение для коэффициентов Клебша-Гордона.

Угловые распределения электронов e_1 после поглощения первого фотона для атомов неона и аргона приведены в [8]. Чтобы получить угловое распределение второго электрона e_2 (при заданных углах вылета первого электрона e_1), мы свернули статистический тензор системы ($A^{++} + e_2$) после нерезонансного поглощения двух фотонов с тензором эффективности детектора электронов e_1 [14]. Выберем систему координат с осью Z вдоль вектора линейной поляризации излучения и осью X вдоль его волнового вектора. Если состояние конечного иона не регистрируется, то функцию угловой корреляции между двумя электронами можно представить в виде

с динамическими коэффициентами

$$B(k_i, k_{\gamma_2}, k_p, k_{\gamma_3}, k_2) = (-1)^{L_f + J_i + 1/2} \hat{L}_i \hat{J}_i \begin{Bmatrix} J_i & J_i & k_i \\ L_i & L_i & S_i \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_i & L_i & k_i \\ l_i & l_i & L_f \end{Bmatrix} \times \sum_{l_2' l_2 l_p'} \hat{l}_2 \hat{l}_2' (l_2 0 l_2' 0 | k_2 0) \begin{Bmatrix} l_i & 1 & l_p \\ l_i & 1 & l_p' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} l_p & 1 & l_2 \\ l_p & 1 & l_2' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} l_p & 1 & l_2 \\ k_p & k_{\gamma_3} & k_2 \end{Bmatrix} T(l_2, l_p) T^*(l_2', l_p'), \quad (5)$$

где введено обозначение для двухфотонной одночастичной амплитуды второй степени ионизации (2)

$$T(l_2, l_p) = N G_{S_f L_f}^{S_p L_p} \times \left(\sum_d \frac{\langle l_2 \| \hat{D} \| l_p \rangle \langle l_p \| \hat{D} \| l_i \rangle}{\varepsilon_d - \varepsilon_i - \omega} + \int_c \frac{\langle l_2 \| \hat{D} \| l_p \rangle \langle l_p \| \hat{D} \| l_i \rangle}{\varepsilon_c - \varepsilon_i - \omega} d\varepsilon_c \right). \quad (6)$$

Следуя работам [3, 8], мы рассматриваем случай некогерентного возбуждения состояний тонкой структуры промежуточного иона A^+ , поляризационное состояние которого после первой степени ионизации характеризуется статистическими тензорами $\rho_{k_i q_i}(J_i; \theta_1, \varphi_1)$. В формулах (4)-(6) α – постоянная тонкой структуры; ω – энергия фотона; $Y_{kq}(\theta_n, \varphi_n)$ – сферическая гармоника; θ_n, φ_n – углы вылета первого ($n=1$) и второго ($n=2$) электронов; $L_i, S_i, L_p, S_p, L_f, S_f$ – полные орбитальные и спиновые моменты промежуточного иона (i), виртуального состояния иона (p) и конечного состояния двукратно заряженного иона (f), соответственно ($S_i = S_p$); l_p – орбитальный момент электрона в виртуальном состоянии иона, а l_i – орбитальный момент электрона в промежуточном состоянии иона. Отличные от нуля статистические тензоры фотона $\rho_{k_{\gamma_0}}^{\gamma}$ принимают значения $\rho_{00}^{\gamma} = 1/\sqrt{3}$ и $\rho_{20}^{\gamma} = -\sqrt{2/3}$. Введены стандартные обозначения для $6j$ - и $9j$ -символов и для приведенных матричных элементов дипольного оператора \hat{D} , $G_{S_f L_f}^{S_p L_p}$ – генеалогический коэффициент, N – количество эквивалентных электронов в

ионизируемой оболочке промежуточного иона A^+ , $\hat{a} \equiv \sqrt{2a+1}$. Волновые функции электронов с орбитальным моментом l в непрерывном спектре, которые входят в матричные элементы дипольного оператора, нормированы на энергию и включают фазовый множитель $i^l e^{-i\delta_l}$, где δ_l – фаза рассеяния. Суммирование в (6) проводится по всем возможным дискретным состояниям промежуточного иона A^+ с энергиями ε_d , а интегрирование проводится по энергиям ε_c состояний непрерывного спектра иона. В данной статье не учитывается вклад от дискретных состояний и, таким образом, наши результаты могут описывать ПДТИ, если энергия фотона не попадает в область расположения дискретных или автоионизационных состояний иона A^+ . Формулы (5) и (6) получены в одноконfigurационном приближении и приближении LSJ-связи, поэтому суммирование по полным угловым моментам проводится аналитически.

Интегрированием функции угловой корреляции (4) по углам вылета одного из электронов можно получить угловые распределения первого или второго электрона, соответственно. Для электрона e_2 имеем

$$W(\theta_2) = \frac{W_0}{4\pi} (1 + \beta_2 P_2(\cos\theta_2) + \beta_4 P_4(\cos\theta_2) + \beta_6 P_6(\cos\theta_2)), \quad (7)$$

где $P_n(x)$ – полиномы Лежандра, β_n – параметры угловой асимметрии. Максимальный ранг $n = 6$ появляется ввиду того, что в рассматриваемом процессе поглощается три дипольных фотона, каждый из которых передает по единице углового момента системе. Общий коэффициент в (7) имеет вид

$$W_0 = \frac{2\pi(\pi\alpha\omega)^2}{3\hat{J}_i^2} \sum_{k_i, k_{\gamma_2}, k_p} \hat{k}_i \hat{k}_{\gamma_2} \hat{k}_p \rho_{k_i 0}(J_i) \rho_{k_{\gamma_2} 0}^{\gamma} \rho_{k_p 0}^{\gamma} (k_i 0 k_{\gamma_2} 0 | k_p 0) B(k_i, k_{\gamma_2}, k_p, k_p, 0). \quad (8)$$

где $\rho_{k_i 0}(J_i)$ – статистический тензор первой степени ионизации, интегрированный по углам вылета первого электрона.

В выражении (8) слагаемое с $k_i = 0$ имеет вид

$$W_0^{k_i=0} = \frac{2\pi(\pi\alpha\omega)^2}{3\hat{J}_i^2 \hat{l}_i^2} (-1)^{l_i - 2S_f} \sum_{k_p, l_2, l'_p} (-1)^{l_p + k_p} \rho_{k_p 0}^{\gamma}{}^2 \times \left\{ \begin{matrix} l_p & l'_p & k_p \\ 1 & 1 & l_i \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} l_p & l'_p & k_p \\ 1 & 1 & l_2 \end{matrix} \right\} T(l_2, l_p) T^*(l'_2, l'_p). \quad (9)$$

Оно связано с обобщённым двухфотонным сечением ионизации неполяризованного иона $A^+(\alpha_i J_i)$ линейно поляризованным излучением [15]:

$$\sigma = (\alpha\pi F_0)^{-2} \tau_0^{-1} W_0^{k_i=0}, \quad (10)$$

где сечение σ измеряется в единицах $\text{см}^4 \text{с}$, $\tau_0 = 2.42 \cdot 10^{-17} \text{с}$ – атомная единица времени, $F_0 = 3.22 \times 10^{34} \text{см}^{-2} \text{с}^{-1}$ – единица потока фотонов.

В численных расчетах используются волновые функции электронов, полученные методом Хартри-Фока в одноконфигурационном приближении с замороженным остовом [16] и экспериментальные значения энергии порогов. Для вычисления дипольного матричного элемента между состояниями континуума мы применяем метод работы [17].

Результаты и обсуждение

Нами вычислены сечение и параметры угловой асимметрии фотоэлектронов нерезонансной ПДТИ атома неона при энергиях выше порога ионизации 2р-оболочки (21.6 эВ). Сечение процесса приведено на рис. 2а; различные кривые соответствуют переходам в различные термы конечного иона $Ne^{2+}(2p^4 \ ^{2S_f+1}L_f)$. Рис. 2б демонстрирует параметры асим-

метрии угловых распределений фотоэлектронов для выстроенного состояния промежуточного иона $Ne^+(2p^5 \ ^2P_{3/2})$. Результаты могут быть применимы при энергиях вдали от областей резонансов, отмеченных на шкале энергий. В области выше порога $Ne^{2+}(2p^4 \ ^3P)$ (41 эВ) они характеризуют процесс надпороговой ионизации.

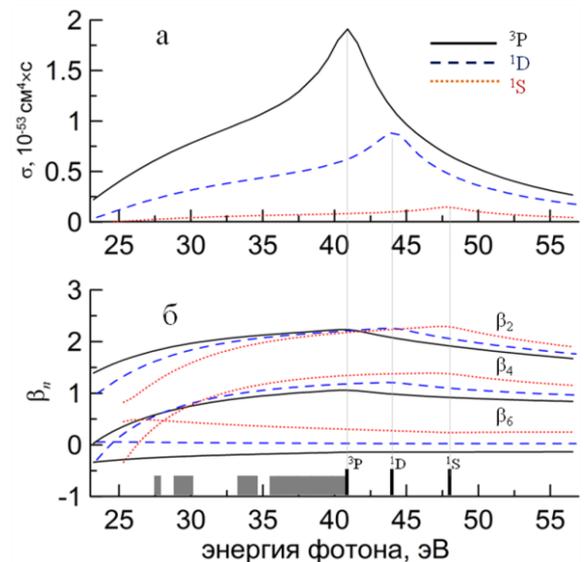


Рис. 2. Зависимость от энергии фотонов а) сечения, б) параметров угловой асимметрии β_2 , β_4 и β_6 для нерезонансной ПДТИ 2р-оболочки атома неона через промежуточное состояние иона $Ne^+(2p^5 \ ^2P_{3/2})$ для различных конечных состояний $Ne^{2+}(2p^4 \ ^1S, ^1D, ^3P)$. Области энергий дискретных состояний иона Ne^+ и его пороги ионизации $Ne^{2+}(2p^4 \ ^1S, ^1D, ^3P)$ отмечены на оси энергий фотонов.

Представленные на рис. 2а сечения имеют максимумы при энергиях порогов двукратной ионизации неона (41 эВ, 44.17 эВ и 47.88 эВ соответственно для термов конечных состояний $^3P, ^1D$ и 1S); при энергиях фотонов выше указанных порогов сечения убывают. Отношение сечений при удалении от порогов ионизации находятся в соответствии со статистическими весами конечных состояний

$Ne^{2+}(2p^4\ ^1S, ^1D, ^3P)$.

Параметры асимметрии (рис. 2б) зависят от энергии примерно одинаково для различных состояний $Ne^{2+}(2p^4\ ^1S, ^1D, ^3P)$. Параметры β_6 относительно малы. Заметим, что параметры β_6 для конечных термов 1S и 3P имеют противоположный знак, в то время как β_6 для 1D близко к нулю.

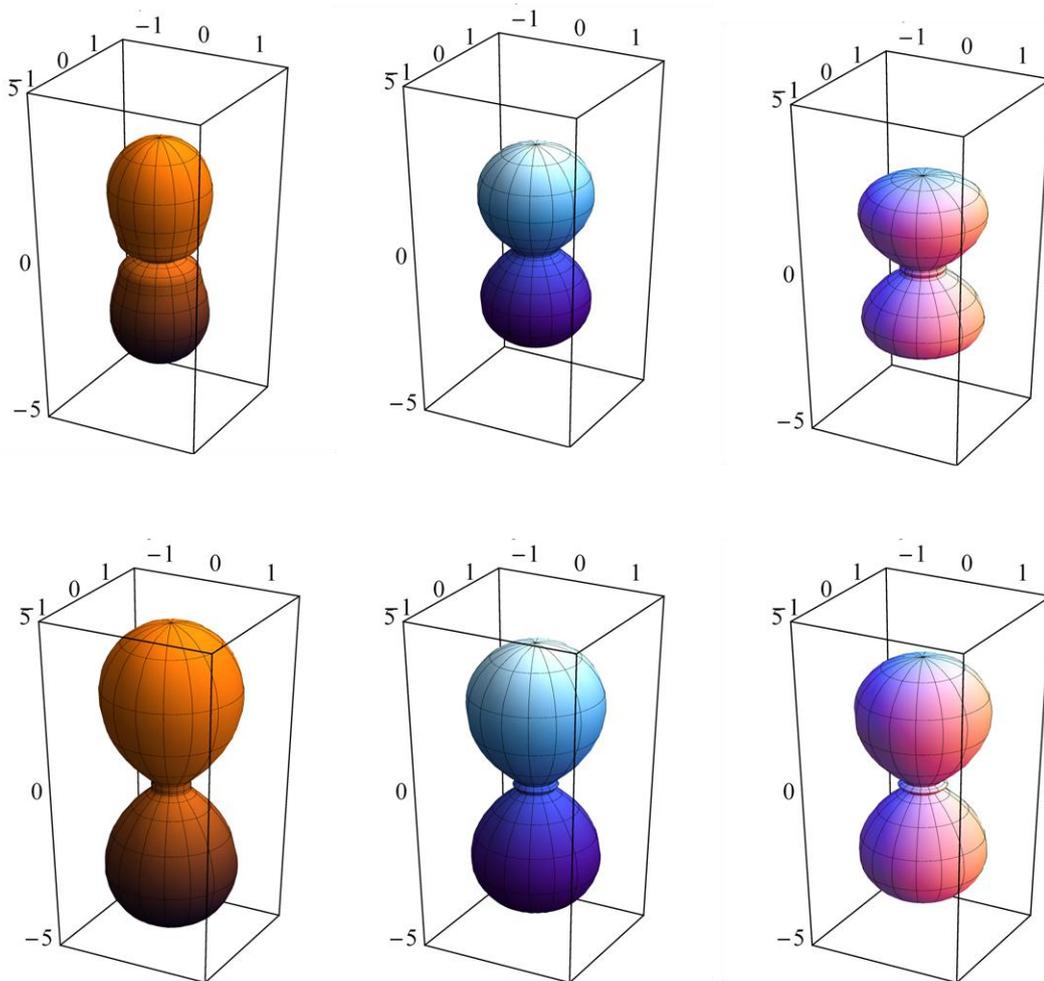


Рис. 3. Угловые распределения электрона e_2 в ПДИ для различных конечных состояний $Ne^{2+}(2p^4\ ^1S, ^1D, ^3P)$ при энергиях фотонов 27.8 эВ (верхний ряд) и 51.15 эВ (нижний ряд), соответствующих прямой двухфотонной и двухфотонной надпороговой ионизации $Ne^+(2p^5\ ^2P_{3/2})$, соответственно. Вектор линейной поляризации направлен вертикально. Нормировочный множитель один и тот же для всех угловых распределений.

Абсолютные значения параметров β_n уменьшаются с ростом их ранга, что соответствует угловым распределениям электрона e_2 , вытянутым вдоль направления линейной поляризации лазерного поля (рис. 3). Поскольку величина β_2 довольно велика, то вероятность вылета электрона

вдоль направления поляризации доминирует.

Выстроенность Ne^+ , образуемого на первой ступени (1), мала [8], поэтому параметры β_2 и β_4 для случая ионизации неполяризованного промежуточного иона (в этом случае $\beta_6 = 0$) $Ne^+(2p^5\ ^2P_{1/2})$ очень

близки приведённым на рис. 2б для $Ne^+(2p^5 2P_{3/2})$.

Заключение

Мы вычислили сечение процесса нерезонансной ПДТИ и параметры угловой асимметрии, которые характеризуют угловое распределение вылетевших фотоэлектронов, для атома Ne . Полученные

результаты могут быть использованы для оценки и выбора необходимых условий соответствующих экспериментов на ЛСЭ. Рассмотренные нами энергии фотонов хорошо отвечают диапазону, в котором проводятся эксперименты на FERMI [18].

Работа выполнена при поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований 12-02-01123, гранта Президента Российской Федерации МК-6509.2012.2 и фонда «Династия».

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Yamanouchi K., Chin S.L., Agostini P. and Ferrante G. Progress in Ultrafast Intense Laser Science, Berlin: Springer, 2006.
2. Braune M., Reinköster A., Viefhaus J., Lohmann B. and Becker U. – Hamburg: HASYLAB, Annual Report, 2007, P. 457.
3. Kurka M., Rudenko A., Foucar L. et al. Two-photon double ionization of Ne by free-electron laser radiation: a kinematically complete experiment // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2009. – №42. – P. 141002.
4. Motomura K., Fukuzawa H., Foucar L. et al. Multiple ionization of atomic argon irradiated by EUV free-electron laser pulses at 62 nm: evidence of sequential electron strip // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2009. – №42. – P. 221003.
5. Sorokin A.A., Bobashev S.V., Tiedtke K. and Richter M. Multi-photon ionization of molecular nitrogen by femtosecond soft x-ray FEL pulses // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2006. – №39. – L299.
6. Fukuzawa H., Motomura K., Liu X.-J. et al. Ion momentum spectroscopy of N_2 and O_2 molecules irradiated by EUV free-electron laser pulses // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2009. – №42. – P.181001.
7. Fukuzawa H., Liu X.-J., Prümper G. et al. Dead-time-free ion momentum spectroscopy of multiple ionization of Xe clusters irradiated by euv free-electron laser pulses // Phys. Rev. A., 2009. – №79– P. 031201.
8. Fritzsche S., Grum-Grzhimailo A.N., Gryzlova E.V. and Kabachnik N.M. Angular distributions and angular correlations in sequential two-photon double ionization of atoms // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2008. – №41, 165601.
9. Grum-Grzhimailo A.N., Gryzlova E.V., Strakhova S.I., Kabachnik N.M. and Fritzsche S. Angular distributions and correlations in sequential two-photon atomic double ionization // J. Phys.: Conf. Ser., 2009. – 194. – P. 012004.
10. Gryzlova E.V., Grum-Grzhimailo A.N., Kabachnik N.M. et al. Angular distributions of electrons in sequential two-photon double ionization of atoms by free electron laser radiation // Uzhhorod University Scientific Herald. Series Physics, 2009. – Issue 24. – P. 73.
11. Fukuzawa H., Gryzlova E.V., Motomura K. et al. Photoelectron spectroscopy of sequential three-photon double ionization of Ar irradiated by EUV free-electron laser pulses // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2010. – №43, P. 111001.
12. Braune M., Reinköster A., Viefhaus J., Lohmann B. and Becker U. Int. Conf. Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC), Book of Abstracts (Freiburg, 2007), P. Fr034.
13. Bityutskaya A.S., Grum-Grzhimailo A.N., Gryzlova E.V., Kabachnik N.M. and Strakhova S.I. Angular patterns of sequential three-photon double atomic ionization, Abstracts, Joint German- Russian Kick-Off Workshop, Hamburg: DESY, 2011.
14. Balashov V.V., Grum-Grzhimailo A.N. and Kabachnik N.M. Polarization and Correlation Phenomena in Atomic Collisions. A Practical Theory Course, New

- York: Kluwer Academic/Plenum Publishes, 2000. – P. 279.
15. Corni E. and Lambropoulos P. Extrapolation method for the evaluation of above threshold ionization cross sections for one- and two-electron systems // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 1995. – №28, P. 5043-5055.
16. Froese Fischer C., Brage T. and Jönsson P. Computational Atomic Structure: An MCHF Approach, Bristol: Institute of Physics Publishing, 1997.
17. Mercouris T., Komninos Y., Dionissopoulou S. and Nicolaides C.A. Computation of strong-field multiphoton processes in polyelectronic atoms: State-specific method and applications to H and Li⁻ // Phys. Rev. A, 1994. – №50. – P. 4109
18. <http://www.elettra.trieste.it/FERMI/>

Стаття надійшла до редакції 30.05.2013

A.S. Chetverkina¹, A.N. Grum-Grzhimailo²,
E.V. Gryzlova², S.I. Strakhova²

¹Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University, 119991, Moscow, Russia
e-mail: asybit@yandex.ru

²Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Leninskie Gory, 119991, Moscow, Russia

DOUBLE THREE-PHOTON ATOMIC IONIZATION WITH THE FORMATION OF INTERMEDIATE POLARIZED ION

Sequential double three-photon ionization of atoms is one of nonlinear processes caused by pulses of X-ray or vacuum-ultraviolet radiation from free electron laser. Theoretical description for the phenomenon is developed within the dipole approximation and the second order perturbation theory. Cross section of the double three-photon ionization and the photoelectron angular distributions are obtained for the neon atom.

Keywords: nonlinear processes, X-ray and vacuum-ultraviolet radiation, spectroscopy, atomic and ionic photo ionization.

А.С. Четверкіна¹, О.М. Грум-Гржімайло²,
Є.В. Гризлова², С.І. Страхова²

¹Фізичний факультет, МДУ ім. М.В. Ломоносова, 119991, Москва, Росія
e-mail: asybit@yandex.ru

²НДІ ядерної фізики ім. Д.В. Скобельцина, МДУ ім. М.В. Ломоносова, Москва, Росія

ПОДВІЙНА ТРЬОХФОТОННА ІОНІЗАЦІЯ АТОМІВ З ФОРМУВАННЯМ ПРОМІЖНОГО ПОЛЯРИЗОВАНОГО ІОНА

Послідовна подвійна трьохфотонна іонізація атомів - один з нелінійних процесів, що відбуваються під дією імпульсу рентгенівського або вакуумно-ультрафіолетового діапазону випромінювання від лазера на вільних електронах. Для даного явища розроблено теоретичний опис в рамках дипольного наближення і другого порядку теорії збурень. Отримано ефективний переріз подвійної трьохфотонної іонізації і кутові розподілу фотоелектронів для атома неону.

Ключові слова: нелінійні процеси, випромінювання рентгенівського та ультрафіолетового діапазону, спектроскопія, фотоіонізація атомів і іонів.