

УДК 535.33, 533.9, 543.423.1

А.Н. Грум-Гржимайло¹, Е.В. Грызлова¹, А.С. Четверкина^{1,2}

¹Научно-исследовательский институт ядерной физики

им. Д.В. Скобельцина, МГУ им. М.В. Ломоносова, 119234, Россия, Москва

² Физический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 119234, Россия, Москва

e-mail: *algrgr1492@yahoo.com*

НЕЛИНЕЙНЫЕ ЯВЛЕНИЯ В АТОМАХ ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ С ИЗЛУЧЕНИЕМ ВУФ И МЯГКОГО РЕНТГЕНОВСКОГО ДИАПАЗОНОВ

Теоретическое описание угловых распределений фотоэлектронов в простейших нелинейных процессах в атомах в рентгеновском и вакуумно-ультрафиолетовом диапазоне обобщается с выходом за рамки дипольного приближения. На примере последовательной двухфотонной двойной ионизации атома неона показано, что вклад от электрических квадрупольных переходов можно наблюдать на уже действующих рентгеновских лазерах на свободных электронах.

Ключевые слова: нелинейные явления, фотоионизация атомов, рентгеновское излучение, недипольное взаимодействие, лазеры на свободных электронах.

Введение

Многофотонная ионизация атомов активно изучается уже десятки лет. Эти исследования важны для углубленного понимания нелинейных процессов и для приложений. Современная теория нелинейных фотопроцессов разрабатывалась для атомов в сильных полях лазеров оптического диапазона и основана на электрическом дипольном приближении (E1) для взаимодействия атома с полем излучения. До недавнего времени недипольные эффекты (эффекты запаздывания) в многофотонной ионизации рассматривались только для особого случая, когда частота оптического фотона находилась в резонансе с электрическим квадрупольным (E2) переходом (например, [1, 2]). С появлением лазеров на свободных электронах (ЛСЭ), генерирующих интенсивные коротковолновые фемтосекундные импульсы, так называемых синхротронных источников четвертого поколения, началось активное изучение нелинейных фотопроцессов в ВУФ и рентгеновском диапазонах, т.е. в той области, где вклад недипольных амплитуд может быть существенным. Из экспериментов с синхротронными источниками третьего поколения и теоретических расчетов хоро-

шо известно, что уже при энергиях фотонов в несколько сотен электронвольт угловые распределения фотоэлектронов в однофотонной («линейной») ионизации оказываются чувствительными к интерференции E1 и E2 амплитуд [3, 4]. Эти поправки первого порядка к дипольному приближению приводят к дополнительным слагаемым в формулах для угловых распределений фотоэлектронов. При энергиях в области 1 кэВ отмечен даже вклад от амплитуд фотоионизации более высокой мультипольности [5]. При ионизации внутренних атомных оболочек, когда энергии фотонов по необходимости достигают кэВ, вклад от недипольных переходов в угловые распределения фотоэлектронов бывает заметным уже вблизи порога ионизации. Недипольные эффекты должны присутствовать в ВУФ/рентгеновских нелинейных атомных процессах как минимум при этих же энергиях, поскольку, по крайней мере, для одного из поглощаемых фотонов в переходах участвуют те же каналы ионизации, что и в однофотонном линейном процессе.

В этой работе мы выходим за рамки дипольного приближения в описании простых нелинейных явлений при фотоионизации атомов и оцениваем величину недипольных эффектов на примере

последовательной двухфотонной двойной ионизации (ПДДИ) атома неона.

Общее рассмотрение

При ионизации атомов интенсивными фемтосекундными импульсами ЛСЭ доминирующим каналом ионизации двумя высокочастотными фотонами является ПДДИ, которая рассматривается как двухступенчатый процесс. На первой ступени атом ионизируется первым фотоном с образованием промежуточного иона и вылетом первого фотоэлектрона:

$$\hbar\omega_1 + A(\alpha_0 J_0) \rightarrow A^+(\alpha_i J_i) + e_1(\ell_1 j_1).$$

Образовавшийся ион $A^+(\alpha_i J_i)$, вообще говоря, будет поляризован. На второй ступени промежуточный ион ионизируется далее фотоном $\hbar\omega_2$ с испусканием второго электрона:

$$\hbar\omega_2 + A^+(\alpha_i J_i) \rightarrow A^{++}(\alpha_f J_f) + e_2(\ell_2 j_2).$$

Здесь J_0, J_i и J_f – полные угловые моменты нейтрального атома, промежуточного однозарядного иона и конечного двухзарядного иона; $\alpha_0, \alpha_i, \alpha_f$ – наборы квантовых чисел, необходимых для однозначного определения соответствующих состояний. Вылетающие электроны характеризуются орбитальным (ℓ) и полным (j) угловыми моментами. Предложенная нами схема ПДДИ внешней оболочки атома неона приведена на рис. 1а. Этот процесс неоднократно наблюдался и активно изучался теоретически (например, [6-8]). До сих пор угловые распределения электронов измерялись при частотах фотонов, недостаточных для наблюдения недипольных эффектов.

Если же один из фотонов имеет оптическую частоту, то происходит двухфотонная однократная ионизация (ДОИ) атома; при этом в спектре фотоэлектронов возникают боковые частоты. На рис. 1б приводится пример ДОИ из К-оболочки атома неона. ДОИ тоже наблюдалась при сов-

местном воздействии ЛСЭ и оптического лазера и интерпретировалась теоретически в рамках дипольного приближения [9].

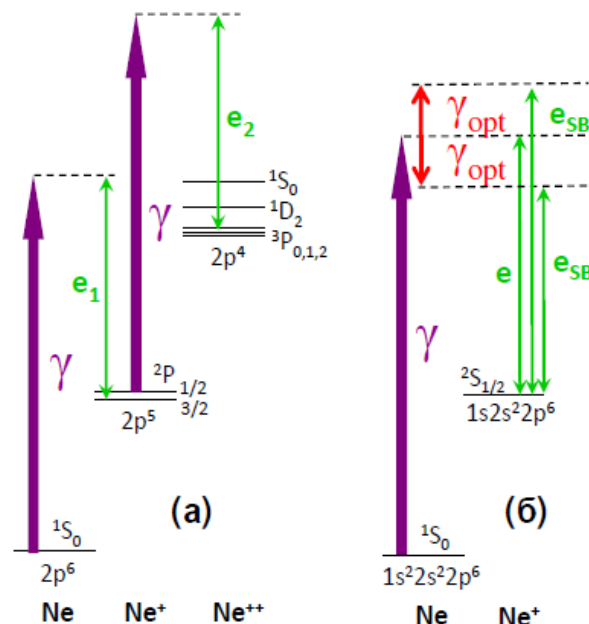


Рис. 1. Схема ПДДИ (а) и ДОИ (б) атома неона.

При теоретическом изучении угловых распределений фотоэлектронов первые поправки к дипольному приближению в ПДДИ возникают от интерференции $E1$ и $E2$ амплитуд ионизации того электрона, который детектируется. Вклад от интерференции $E1$ и $E2$ амплитуд ионизации другого электрона исчезает при шпуровании по квантовым числам ненаблюдаемой частицы. В ДОИ (рис. 1б) первые недипольные поправки происходят от интерференции $E1$ и $E2$ амплитуд ионизации единственным рентгеновским фотоном. Обобщение теории угловых распределений фотоэлектронов в ПДДИ, развитой нами ранее на основе двухступенчатой модели и формализма матрицы плотности и статистических тензоров [6], на учет произвольных мультиполей электромагнитного поля проведено нами недавно в [10], где получены общие формулы для произвольно поляризованных фотонов. Для линейно поляризованного излучения ЛСЭ угловое распределение электронов e_2 имеет вид [10]:

$$\frac{d^2W}{dEd\Omega} = \frac{W_E}{4\pi} [1 + \beta_2 P_2(\cos \theta_2) + \beta_4 P_4(\cos \theta_2) + (\delta_0 + \gamma_2 \cos^2 \theta_2 + \gamma_4 \cos^4 \theta_2) \sin \theta_2 \cos \varphi_2], \quad (1)$$

где $\delta_0, \beta_2, \beta_4, \gamma_2, \gamma_4$ – параметры асимметрии, ось z системы координат направлена вдоль вектора линейной поляризации излучения, а ось x – вдоль его волнового вектора. Параметры β_2 и β_4 , определяются только дипольными E1 амплитудами, тогда как параметры $\delta_0, \gamma_2, \gamma_4$ – результат интерференции E1 и E2 амплитуд.

Формулу (1) можно сопоставить с выражением для углового распределения электронов в однократной фотоионизации (линейный процесс) с учетом первых недипольных поправок:

$$\frac{d^2W}{dEd\Omega} = \frac{W_E}{4\pi} \left[1 + \beta P_2(\cos \theta) + (\delta + \gamma \cos^2 \theta) \sin \theta \cos \varphi \right]. \quad (2)$$

По сравнению с (2), формула (1) для нелинейного двухфотонного процесса содержит два новых динамических параметра β_4 и γ_4 , которые отличны от нуля только для выстроенных состояний промежуточного иона. Эта выстроенность, вообще говоря, зависит от степени когерентности уровней промежуточного иона $A^+(\alpha_i J_i)$, образуемого на первой ступени ПДДИ. В следующем разделе будет приведен пример влияния когерентности возбуждения промежуточного иона на угловые распределения электронов e_2 .

В ОДИ при параллельных линейных поляризациях рентгеновского и оптического фотонов угловое распределение фотоэлектронов также описывается формулой (1). Отличие от ПДДИ состоит в том, что при расчете амплитуд ОДИ необходимо использовать, как минимум, второй порядок теории возмущений. Кроме того, при облучении атомов двумя независимыми лазерами надо рассматривать различные комбинации поляризаций двух фотонов. Общий формализм для описания ОДИ вне рамок дипольного приближения будет представлен в другой работе. В частном случае двух линейно поляризованных коллинеарных лазерных пучков, как показано на рис. 2, формула для углового распределения электронов включает большое число слагаемых. Многие из них сокращаются в линейном дихроизме, определяемом как разность угловых

распределений для двух взаимно перпендикулярных направлений поляризации одного из лазеров, при фиксированном направлении поляризации другого лазера:

$$LD(\psi / \psi + 90) = W_\psi(\theta, \varphi) - W_{\psi+90^\circ}(\theta, \varphi).$$

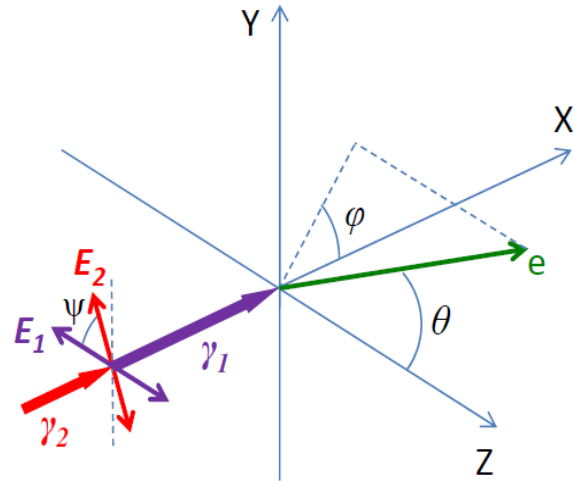


Рис. 2. Геометрия коллинеарных линейно поляризованных лазерных пучков при ОДИ.

В частности,

$$LD(45/135) = \sin 2\psi \sin \varphi \times \left[\sum_{n=2,4} C_n^1 P_n^1(\cos \theta) + \cos \varphi \sum_{n=3,5} C_n^2 P_n^2(\cos \theta) \right],$$

где $P_n^k(\cos \theta)$ - присоединенные полиномы Лежандра, C_n^k – коэффициенты, выражаемые через амплитуды двухфотонной ионизации, причем первое слагаемое в квадратной скобке – это результат дипольного E1 приближения, а второе слагаемое – результат интерференции амплитуд E1 и E2 переходов.

Исследуем теперь насколько велики недипольные эффекты в нелинейном процессе ПДДИ.

Последовательная двухфотонная ионизация атома неона

Мы используем ПДДИ неона в качестве примера, поскольку известно, что в однофотонной ионизации внешней оболочки атома неона недипольные эффекты достигают значительной величины [5]. Для расчетов дипольных и квадрупольных

амплитуд фотоіонізації ми використовували метод Хартри-Фока, реалізований в [11].

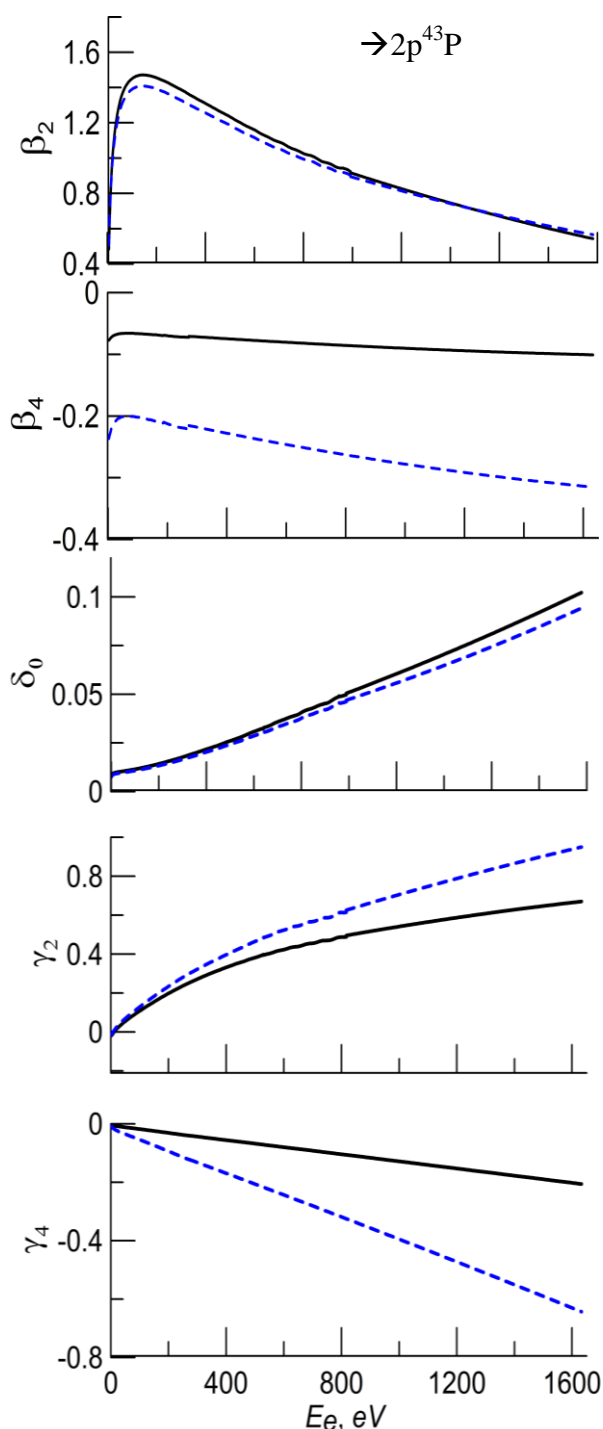


Рис. 3. Параметри асиметрії фотоелектрона e_2 в дипольному приближенні (β_2 і β_4) і з урахування перших недипольних поправок (δ_0 , γ_2 і γ_4) в залежності від енергії фотоелектрона при ПДДІ неона в $Ne^{++}(^3P)$. Сплошная лінія – некогерентне возбудження станів $Ne^{++} 2p^5 \ ^2P_{1/2}, \ ^2P_{3/2}$ проміжного іона, пунктир – когерентна сума по станам $Ne^{++} 2p^5 \ ^2P_{1/2}, \ ^2P_{3/2}$ (LS зв'язь).

Для розрахування амплитуд першої ступені ПДДІ ми оптимізували $1s, 2s, 2p$ орби-

тали на основному стані атома неона, згодом знаходили в полі замороженого остова хвильові функції електрона в неперервному спектрі для різних каналів іонізації $1s^2 2s^2 2p^5 \ ^2P + E\ell \ ^2L_1$. Аналогічно, для другої ступені, орбітали $1s, 2s, 2p$ оптимізували на основному стані іона неона $1s^2 2s^2 2p^5 \ ^2P$, після чого визначалися залежності від терма хвильові функції електрона в неперервному спектрі $1s^2 2s^2 2p^4 L_f S_f + E\ell \ ^2L_2$. Розраховані таким чином амплитуди переходу в континуум не залежать від повного куткового моменту фотоелектронів і всієї системи, що спрощує остаточні вирази для параметрів асиметрії.

Вимірювання продольної когерентності фемтосекундного випромінювання ЛСЗ поки є великою проблемою. В той же час від цієї когерентності залежить квантовий стан проміжного іона. Межевими випадками є некогерентне збудження станів тонкої структури $2p^5 \ ^2P_{1/2}, \ ^2P_{3/2}$ і випадок LS-зв'язі, т.е. вироджена тонка структура. На рис. 3 представлені результати розрахування параметрів асиметрії в дипольному приближенні (β_2, β_4) і з урахування перших недипольних поправок ($\delta_0, \gamma_2, \gamma_4$). Результати наведені для терма $2p^4 \ ^3P$ кінцевого іона і двох межових випадків когерентності проміжного стану іона. Видно, що, починаючи з енергій фотоелектрона 100-200 еВ, недипольні параметри стають порівнянними за амплітудою з дипольним параметром β_4 , а при енергії 1 кВВ вже помітно його перевищують. Вплив когерентності може бути суттєвим.

На рис. 4 показані кутові розподіли фотоелектронів від другої ступені ПДДІ в площині реакції: 0° і 90° відповідають напрямку лінійної поляризації і напрямку імпульсу випромінювання. Внесок від недипольних складових призводить до значущого порушення аксимальної симетрії кутового розподілу відносно напрямку поляризації випромінювання (0°) і великої асиметрії «вперед-назад».

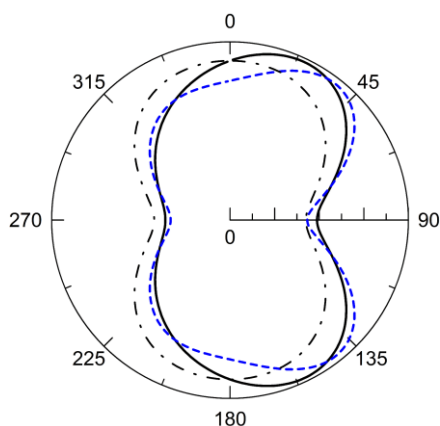


Рис. 4. Угловые распределения фотоэлектронов второй ступени в ПДДИ $2p$ оболочки атома неона при энергии фотонов 1.6 кэВ. Сплошная линия – некогерентное возбуждение состояний $\text{Ne}^{++} 2p^5 \ ^2P_{1/2}, \ ^2P_{3/2}$; пунктир – когерентная сумма по состояниям $\text{Ne}^{++} 2p^5 \ ^2P_{1/2}, \ ^2P_{3/2}$ (LS-связь); штрихпунктир: когерентное возбуждение (LS-связь) в дипольном приближении.

Недипольные нелинейные эффекты предсказанной величины должны быть наблюдаемыми на уже работающих ЛСЭ, таких как LCLS (Стэнфорд, США) и SACLA (Япония) и с необходимостью должны будут учитываться в теоретическом описании процессов, где вылетающие электроны разрешаются по углу.

Работа выполнена при поддержке гранта Президента Российской Федерации № МК-6509.2012.2, гранта РФФИ № 12-02-0112 и гранта фонда «Династия».

СПИСОК ИСПОЛЬЗУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Lyras A. et al. Multiphoton ionization of cesium via quadrupole transitions: Photoelectron angular distributions and polarization effects on total ionization rates // *Phys. Rev. A* – 1988. – 37. – 403.
2. Lépine F. et al. Observation of Large Quadrupolar Effects in a Slow Photoelectron Imaging Experiment // *Phys. Rev. Lett.* – 2004. – 93. – 233003.
3. Hemmers O., Guillemin R. and Lindle D.W. Nondipole effects in soft X-ray photoemission // *Radiat. Phys. Chem.* – 2004. – 70. – 123.
4. Guillemin R., Hemmers O., Lindle D.W. and Manson S.T. Experimental investigation of nondipole effects in photoemission at the advanced light source // *Radiat. Phys. Chem.* – 2006. – 75. – 2258.
5. Derevianko A. et al. Electric-Octupole and Pure-Electric-Quadrupole Effects in Soft-X-Ray Photoemission // *Phys. Rev. Lett.* – 2000. – 84. – 2116.
6. 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.
7. Rouzée A. et al. Angle-resolved photoelectron spectroscopy of sequential three-photon triple ionization of neon at 90.5 eV photon energy // *Phys. Rev. A*. – 2011. – 83. – 031401.
8. Kurka M. 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. – 141002.
9. Meyer M. et al. Two-colour experiments in the gas phase // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* – 2010. – 43. – 194006.
10. Grum-Grzhimailo A.N., Gryzlova E.V. and Meyer M. Non-dipole effects in the angular distribution of photoelectrons in sequential two-photon atomic double ionization // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* – 2012. – 45. – 215602.
11. Froese Fischer C., Brage T. and Jönsson P. *Computational Atomic Structure: An MCHF Approach* (Bristol: Institute of Physics Publishing), 1997.

A.N. Grum-Grzhimailo¹, E.V. Gryzlova¹, A.S. Chetverkina^{1,2}

¹Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University
119234, Moscow, Russian Federation

²Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University

119234, Moscow, Russian Federation

e-mail: *algrgr1492@yahoo.com*

NONLINEAR PHENOMENA IN ATOMS INTERACTING WITH VUV AND SOFT X-RAY RADIATION

Theoretical description of photoelectron angular distributions in the simplest nonlinear atomic processes in X-ray and VUV is extended beyond the dipole approximation. On the example of sequential two-photon double ionization of neon it is shown that the contribution of the electric quadrupole transitions can be observed in already operating X-ray free electron lasers.

Key words: nonlinear phenomena, photoionization of atoms, X-rays, nondipole interaction, free-electron lasers.

УДК 535.33, 533.9, 543.423.1

А.Н. Грум-Гржимайло¹, Є.В. Гризлова¹, А.С. Четверкіна^{1,2}

¹Науково-дослідний інститут ядерної фізики

ім. Д.В. Скобельцина, МДУ ім. М.В. Ломоносова, 119234, Росія, Москва

²Фізичний факультет МДУ ім. М.В. Ломоносова, 119234, Росія, Москва

e-mail: *algrgr1492@yahoo.com*

НЕЛІНІЙНІ ЯВИЩА В АТОМАХ ПРИ ВЗАЄМОДІЇ З ВИПРОМІНЮВАННЯМ У ВУФ І М'ЯКОМУ РЕНТГЕНІВСЬКОМУ ДІАПАЗОНІ

Розглянуто теоретичний опис кутових розподілів фотоелектронів у найпростіших нелінійних процесах, які відбуваються в атомах у рентгенівському і вакуумно-ультрафіолетовому діапазоні спектру. Проведено узагальнення для випадку виходу за рамки дипольного наближення. На прикладі послідовної двофотонної, подвійної іонізації атома неону показано, що внесок від електронних квадрупольних переходів можна спостерігати на вже діючих рентгенівських лазерах на вільних електронах.

Ключові слова: нелінійні явища, фотоіонізація атомів, рентгенівське випромінювання, недіпольна взаємодія, лазери на вільних електронах.