

ИОНИЗАЦИЯ АТОМОВ БИХРОМАТИЧЕСКИМ ПОЛЕМ КРАТНЫХ $\omega + 2\omega$ ЧАСТОТ ПРОИЗВОЛЬНОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ

М. М. Попова^{a,b}, Е. В. Грызлова^b, М. Д. Киселев^{a,b,c}, А. Н. Грум-Гржимайло^b*

^a *Физический факультет, Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия*

^b *Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия*

^c *Тихоокеанский государственный университет
680035, Хабаровск, Россия*

Поступила в редакцию 15 марта 2022 г.,
после переработки 24 марта 2022 г.
Принята к публикации 25 марта 2022 г.

Изучены особенности электронной эмиссии из атомов в поле основной и второй гармоник лазера для условий, приближенных к реализованным сейчас на лазерах на свободных электронах. Получены общие выражения для угловой анизотропии и поляризации спина фотоэлектронов. Выражения применены для описания ионизации валентной оболочки атомов инертных газов и проиллюстрированы расчетами для неона. Исследована возможность управления характеристиками электронной эмиссии посредством изменения относительной фазы между гармониками, т. е. реализации одного из видов когерентного контроля.

DOI: 10.31857/S0044451022070000
EDN: EDYBTT

1. ВВЕДЕНИЕ

Концепция квантового когерентного контроля объединяет обширное множество эффектов, в основе которых лежит управление динамикой квантовой системы или ее мониторинг с помощью независимо регулируемых параметров. Когерентный контроль является мощным инструментом для демонстрации фундаментальных принципов квантовой механики и имеет непосредственное практическое приложение для изучения быстропротекающих процессов [1, 2], используется в атомной физике [3], физике твердого тела [4], а также химии и биологии [5].

Впервые принцип когерентного контроля, заключающийся в создании двух (или более) путей перехода системы $|i\rangle$ в определенное конечное состояние $|f\rangle$ и управлении интерференцией соответствующих амплитуд, был сформулирован в работах [6, 7], хотя теоретические [8, 9] и экспериментальные

[10] указания на существование этой возможности были известны и раньше.

Простейший способ реализации когерентного контроля над фотоионизацией — использование бихроматического поля, состоящего из двух компонент: основной гармоники частоты ω и n -кратной гармоники частоты $n\omega$. В такой системе когерентный контроль осуществляется за счет того, что параметры гармоник (фазу, интенсивность, поляризацию и т. д.) можно изменять независимо. Электроны с энергией $\varepsilon_f = n\omega - |\varepsilon_{th}|$ (ε_{th} — порог ионизации) могут возникать в результате как однофотонной, так и многофотонной (под- или надпороговой) ионизации атома A с образованием остаточного иона A^+ :

$$A + \left\{ \begin{array}{l} \hbar\omega + \dots + \hbar\omega \\ \hbar(n\omega) \end{array} \right\} \rightarrow A^+ + e^-. \quad (1)$$

В оптическом диапазоне когерентный контроль впервые был продемонстрирован в работе [11]. Интерференция возникала при ионизации атомов ртути когерентным $(\omega + 3\omega)$ -излучением и проявлялась в изменении полного сечения ионизации при изменении фазы между ω - и 3ω -компонентами поля.

* E-mail: mm.popova@physics.msu.ru

В системах со сферической симметрией электроны, возникающие в результате одно- и двухфотонной ионизации $(\omega + 2\omega)$ -полем, обладают разной четностью и интерференция не может проявиться в интегральном по углу сечении, однако существенным образом модифицирует его угловую зависимость. Впервые когерентный контроль с использованием $(\omega + 2\omega)$ -полей был осуществлен в работах [12, 13]. Создание мощных оптических лазеров стимулировало развитие таких важных направлений исследований, как бихроматическая ионизация $(\omega + 2\omega)$ -полем оптического или инфракрасного диапазонов в режиме многофотонного поглощения, генерации гармоник или сильного поля [14–18]. Нарушение сферической симметрии атома, позволяющее наблюдать эффекты когерентного контроля в интегральных по углу характеристиках, может быть индуцировано постоянным электрическим полем [19, 20].

Прогресс в технике генерации когерентного высокочастотного излучения, вызванный развитием лазеров на свободных электронах (ЛСЭ), позволил распространить эти исследования на вакуумно-ультрафиолетовый (ВУФ) и рентгеновский диапазоны. Излучение, генерируемое ЛСЭ, содержит примеси высших гармоник, иногда нежелательные и способные исказить постановку эксперимента. Было показано [21], что в широком диапазоне энергий и интенсивностей излучения даже небольшой примеси порядка 0.1 % может быть достаточно, чтобы вероятность ионизации под воздействием высших гармоник оказалась сравнимой или даже большей вероятности ионизации под действием основной гармоники.

Для первых ЛСЭ когерентность излучения была невелика, и только после разработки схемы затравки (seeding) оказалось возможным генерировать излучение с пространственной и временной когерентностью, достаточной для реализации когерентного контроля. Впервые возможность когерентного контроля в высокочастотном диапазоне была продемонстрирована на ЛСЭ FERMI [22] в эксперименте [23], где исследовалась фотоионизация неона под действием линейно поляризованного $(\omega + 2\omega)$ -излучения. Энергия основной гармоники $\omega = 19.68$ эВ была близка к энергии перехода в возбужденное состояние $2s^2 2p^5 ({}^2P_{1/2}) 4s [{}^1_2]$ (см. рис. 1), что увеличило вероятность двухфотонной ионизации. Теоретическая интерпретация этого эксперимента была проведена нашей группой и базировалась на ранее изложенном подходе [24]. Подход основан на применении алгебры угловых моментов [25] для представления наблюдаемых величин в

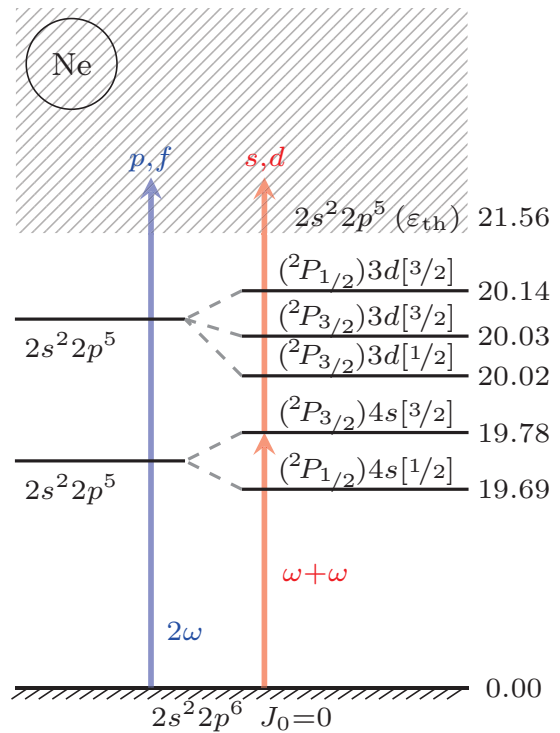


Рис. 1. Схема $(\omega + 2\omega)$ -ионизации атома неона при частоте основной гармоники ω в диапазоне энергий 19.6–20.2 эВ

терминах амплитуд переходов и расчете этих амплитуд в рамках нестационарной теории возмущений с использованием матричных элементов, полученных с помощью современных, широко используемых спектроскопических программных комплексов (например, MCHF [26], BSR [27]). Для проверки применимости теории возмущений использовалось сравнение с результатами численного решения нестационарного уравнения Шредингера (TDSE) [28].

Позднее подход был применен к исследованию когерентного контроля над угловыми распределениями электронов при $(\omega + 2\omega)$ -ионизации в других диапазонах энергии [29], для линейно и циркулярно поляризованных гармоник [30–32]. Также был рассмотрен вопрос о степени спиновой поляризации фотоэлектронов в этом процессе и возможности ей манипулировать [33, 34].

Задача настоящей работы — обобщить подход, развитый нами в работах [24, 30, 31, 33, 34], на случай полей произвольной поляризации и применить его к описанию $(\omega + 2\omega)$ -ионизации нейтрального неона в диапазоне энергий основной гармоники 19.6–20.2 эВ, покрывая тем самым область $4s$ – $3d$ -резонансов $(\omega < \epsilon_{th} < 2\omega)$, см. рис. 1).

Эксперименты в этом направлении активно продолжаются [3, 35–37], поэтому мы ожидаем, что данное обобщение будет полезно для анализа проведенных и подготовки новых экспериментов на ЛСЭ.

2. ТЕОРИЯ

Везде, где не указано иное, используется атомная система единиц.

2.1. Параметры излучения

Если электромагнитное поле \mathbf{E} состоит из двух компонент с центральными частотами ω и 2ω , то его вектор напряженности задается суммой

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

где $E_{\omega(2\omega)}(t)$ — медленно меняющиеся огибающие, определяющие форму импульса, $\mathbf{e}_{\omega(2\omega)}$ — единичные векторы поляризации полей, ϕ — относительная разность фаз между гармониками.

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. 2 а). Тогда поле ω может быть представлено в виде разложения по базису циклических ковариантных ортов [38] $\mathbf{n}_{\lambda=\pm}$: $\mathbf{e}_{\omega} = e^{+}\mathbf{n}_{+} + e^{-}\mathbf{n}_{-}$. Для второй гармоники 2ω в этой системе координат возможно появление компоненты $e^0\mathbf{n}_{\lambda=0}$, сонаправленной с осью z . Выбор разложения эллипсов поляризации в циклическом базисе связан с удобством построения статистического тензора электрического поля (см. табл. 1–3).

Траектория движения вектора напряженности суммарного поля замкнута за период $T = 2\pi/\omega$, а ее форма зависит от взаимной ориентации и спиральности эллипсов поляризации гармоник. Примеры результирующего поля для некоторых из них представлены на рис. 2 б–д. Для двух приведенных примеров рис. 2 б, в результирующее поле лежит в плоскости, которая остается плоскостью симметрии и для наблюдаемых фотоэлектронов; для двух других примеров рис. 2 г, д результирующее поле трехмерно.

Частоты полей подобраны так, чтобы энергия фотона 2ω была выше порога ионизации атома ($2\omega > \varepsilon_{th}$), а энергия фотона ω — ниже ($\omega < \varepsilon_{th}$). Тогда, если интенсивность излучения $I \ll I_{at} = 3.61 \cdot 10^{16}$ Вт/см², процесс $(\omega + 2\omega)$ (1) может

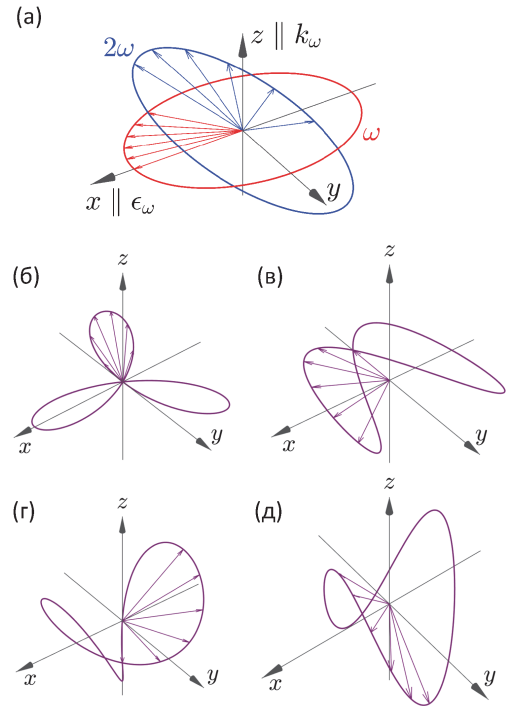


Рис. 2. (а) Система координат; (б–д) огибающие вектора напряженности электромагнитного поля \mathbf{E} для рассматриваемых в статье поляризаций и взаимных ориентаций гармоник, $E_{\omega} = E_{2\omega}$. Стрелки показывают направление и величину мгновенного электрического поля: (б) циркулярно поляризованные в одной плоскости xy гармоники противоположных спиральностей; (в) гармоники, линейно поляризованные в ортогональных (x и y) направлениях при разности фаз $\pi/4$; (г) линейно поляризованная $\mathbf{e}_{\omega} \parallel x$ и циркулярно поляризованная $\mathbf{e}_{2\omega} \in zy$ гармоники; (д) циркулярно поляризованная $\mathbf{e}_{\omega} \in xy$ и линейно поляризованная $\mathbf{e}_{2\omega} \parallel z$ гармоники

быть описан в рамках нестационарной теории возмущений [39]. Кроме того, в области частот и интенсивностей, характерных для современных ЛСЭ ($I \sim 10^{12}–10^{14}$ Вт/см², $\omega \sim 10–100$ эВ), применимо дипольное приближение, а выбор представления (форма длины или скорости) не является критическим [40].

2.2. Описание системы

Пусть набор собственных векторов $\{\psi_k\}$ и собственных значений $\{E_k\}$ невозмущенного гамильтониана известен, в момент времени t_0 система находится в начальном состоянии $\psi_i \in \{\psi_k\}$, а возмущение $U(t)$ переводит систему из состояния ψ_i в состояние $\psi_f \in \{\psi_k\}$. В рамках нестационарной теории возму-

щений амплитуду ионизации можно факторизовать на множитель, зависящий от характеристик импульса, и множитель, определяющий амплитуду ионизации при бесконечно длинном импульсе. За время действия возмущения от начального момента времени t_i до конечного t_f система перейдет в состояние, описываемое матрицей плотности

$$\rho_{ff'} = \sum_{nn'} |\psi_f\rangle \langle \psi_f | U^{(n)} | \psi_i\rangle \times \langle \psi_i | U^{(n')} | \psi_{f'}\rangle \langle \psi_{f'} |, \quad (3)$$

где n — порядок теории возмущений. В (3) вклад каждого последующего члена в вероятность перехода обычно меньше предыдущего. Однако для реализации предложенной схемы когерентного контроля необходимо, чтобы второй и первый порядки были сопоставимы. Это может быть достигнуто уменьшением интенсивности второй гармоники $E_{2\omega}$ относительно интенсивности первой гармоники E_ω . Пусть начальное “нейтральный атом” ψ_i и конечное “ион + свободный электрон с импульсом \mathbf{k}_e ” $\psi_f = \psi_f(\mathbf{k}_e)$ состояния характеризуются полным моментом $J_{i(f)}$, его проекцией $M_{i(f)}$ и другими квантовыми числами $\zeta_{i(f)}$, которые могут потребоваться для дальнейшей идентификации этих состояний.

В первом исчезающем порядке для процесса (1) в сумму (3) будет входить амплитуда перехода от компоненты электромагнитного поля с частотой 2ω :

$$\langle \psi_f | U^{(1)} | \psi_i\rangle = -i \langle \zeta_f J_f M_f | \mathbf{e}_{2\omega} \hat{\mathbf{D}} | \zeta_i J_i M_i\rangle T_{\varepsilon_i, \varepsilon_f}^{(1)}, \quad (4)$$

$$T_{\varepsilon_i, \varepsilon_f}^{(1)} = e^{-i\phi} \int_{t_i}^{t_f} E_{2\omega}(t') e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_i - 2\omega t')} dt', \quad (5)$$

отвечающая однофотонной ионизации под действием второй гармоники; а от компоненты с частотой ω — амплитуда

$$\langle \psi_f | U^{(2)} | \psi_i\rangle = (-i)^2 \sum_n \langle \zeta_f J_f M_f | \mathbf{e}_\omega \hat{\mathbf{D}} | \zeta_n J_n M_n\rangle \times \langle \zeta_n J_n M_n | \mathbf{e}_\omega \hat{\mathbf{D}} | \zeta_i J_i M_i\rangle T_{\varepsilon_i, \varepsilon_n, \varepsilon_f}^{(2)}, \quad (6)$$

$$T_{\varepsilon_i, \varepsilon_n, \varepsilon_f}^{(2)} = \int_{t_i}^{t_f} E_\omega(t') e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_n - \omega)t'} \times \int_{t_i}^{t'} E_\omega(t'') e^{i(\varepsilon_n - \varepsilon_i - \omega)t''} dt'' dt', \quad (7)$$

отвечающая двухфотонной ионизации через промежуточные состояния $|\zeta_n J_n M_n\rangle$. Здесь $\varepsilon_{i(n,f)} \in \zeta_{i(n,f)}$ — энергии соответствующих состояний, \sum_n обозначает суммирование по дискретным промежуточным состояниям $|\zeta_n, J_n\rangle$ и интегрирование по состояниям континуума, $\hat{\mathbf{D}}$ — электрический дипольный оператор перехода, представимый в виде разложения по проекциям на циклические ковариантные орты в выбранной системе координат:

$$\mathbf{e}_{\omega(2\omega)} \hat{\mathbf{D}} = \sum_\lambda e_{\omega(2\omega)}^\lambda D_\lambda. \quad (8)$$

Мы полагаем, что остаточный ион не детектируется, поэтому для определения матрицы плотности электрона нужно взять след матрицы плотности (3) по состояниям $|J_c M_c\rangle$ ионного остова. Матрица плотности электрона, как и любой частицы со спином $1/2$, представляется в следующем виде:

$$\left\langle \frac{1}{2} m_s | \rho | \frac{1}{2} m'_s \right\rangle = \frac{W}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_z & P_x - iP_y \\ P_x + iP_y & 1 - P_z \end{pmatrix}. \quad (9)$$

Подчеркнем, что и матрица плотности (9), и параметры поляризации спина электрона $\mathbf{P} = (P_x, P_y, P_z)$ являются функциями энергии фотозлектрона и направления электронной эмиссии $\{\vartheta, \varphi\}$. Свертка (9) по проекции спина электрона дает его угловое распределение $W = W(\vartheta, \varphi)$ — вероятность регистрации электрона в соответствующем направлении.

Построение наблюдаемых из (3) может быть довольно громоздким из-за большого числа комбинаций проекций моментов M_i, M_f и др. Удобнее воспользоваться формализмом статистических тензоров [25], с помощью которых можно а) сразу исключить зависимость от проекций моментов и б) факторизовать динамическую (спектроскопическую) и геометрическую части.

Статистический тензор спина электрона получается из матрицы плотности (9) по определению:

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{m_s m'_s} (-1)^{1/2 - m'_s} \left(\frac{1}{2} m_s \frac{1}{2} - m'_s k_s q_s \right) \times \left\langle \frac{1}{2} m_s | \rho | \frac{1}{2} m'_s \right\rangle, \quad (10)$$

где введено стандартное обозначение для коэффициентов Клебша – Гордана. Полезно представить обратное к (10) преобразование к угловому распреде-

лению и компонентам спина фотоэлектронов в явном виде:

$$W = \sqrt{2}\rho_{00}, \quad (11)$$

$$P_z = \rho_{10}/\rho_{00}, \quad (12)$$

$$P_x = -(\rho_{11} - \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00}), \quad (13)$$

$$P_y = -i(\rho_{11} + \rho_{1-1})/(\sqrt{2}\rho_{00}). \quad (14)$$

2.3. Статистические тензоры системы одного и двух фотонов

В отличие от случая статистических тензоров электрона, построение статистического тензора системы фотонов является нетривиальным. Статистический тензор бихроматического электромагнитного поля в дипольном приближении согласно определению имеет вид

$$\begin{aligned} \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) &= \\ &= \sum_{M_\gamma M'_\gamma} (-1)^{J'_\gamma - M'_\gamma} \langle J_\gamma M_\gamma, J'_\gamma - M'_\gamma | k_\gamma q_\gamma \rangle \times \\ &\times \langle J_\gamma M_\gamma | \gamma + 2\gamma \rangle \langle \gamma + 2\gamma | J'_\gamma M'_\gamma \rangle, \end{aligned} \quad (15)$$

где J_γ, M_γ — момент и проекция момента фотона (системы из двух эквивалентных фотонов) $|\gamma\rangle(|2\gamma\rangle)$:

$$|\gamma\rangle = \sum_\lambda e_{2\omega}^\lambda |1\lambda\rangle, \quad (16)$$

$$|2\gamma\rangle = \sum_{M_\gamma \lambda \lambda'} e_\omega^\lambda e_\omega^{\lambda'} (1\lambda, 1\lambda' | J_\gamma M_\gamma) |1\lambda\rangle |1\lambda'\rangle. \quad (17)$$

Результирующий момент двух дипольных фотонов J_γ может принимать только значения 0 или 2, что является следствием симметризации волновой функции системы двух бозонов. 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 ($\omega + 2\omega$):

$$\rho_{k_\gamma q_\gamma} = \rho_{k_\gamma q_\gamma}^{2\omega, 2\omega} + \rho_{k_\gamma q_\gamma}^{\omega + \omega, \omega + \omega} + \left(\rho_{k_\gamma q_\gamma}^{\omega + \omega, 2\omega} + \rho_{k_\gamma q_\gamma}^{2\omega, \omega + \omega} \right). \quad (18)$$

Компоненты статистических тензоров, представленные в виде разложения по проекциям на орты $\mathbf{n}_{\lambda=0, \pm}$, представлены в табл. 1–3 (индексы “ $\omega(2\omega)$ ” опущены для краткости записи). Следует отметить

Таблица 1. 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	$(e^0e^{-*} - e^+e^{0*})/\sqrt{2}$
22	e^+e^{-*}

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

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

связь между используемой в настоящей работе параметризацией и параметризацией в собственной системе фотона (ось квантования z^0 параллельна импульсу фотона \mathbf{k}_γ , $|\gamma^0\rangle = e_0^+ \mathbf{n}_+^0 + e_0^- \mathbf{n}_-^0$). Она определяется соответствующим поворотом системы координат и выражается через D -функции Вигнера [25]:

$$|\gamma^0\rangle = \sum_\lambda e^\lambda D_{\lambda 0}^1(\varphi_{\mathbf{k}_\gamma}, \vartheta_{\mathbf{k}_\gamma}, 0) |1\lambda\rangle.$$

В собственной системе можно определить степени циркулярной и линейной поляризаций $P_c = |e_0^+|^2 - |e_0^-|^2$ и $P_l = \sqrt{1 - P_c^2}$, эллиптичность поля $\varepsilon = \sqrt{(1 - P_l)/(1 + P_l)}$ и спиральность $\lambda = \text{sign}(P_c)$.

Как видно из табл. 1, 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 $q = 0$.

Таблица 3. 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	$e^{+2}(e^{-*})^2$

Из табл. 2 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.

Как видно из табл. 3, полный момент $J = 0$ возможен, только если поле содержит и правую, и левую компоненты, т. е. $P_c \neq 1$. 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.

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 соответствующими этим наблюдаемым тензорами эффективности детекторов $\varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f)$:

$$\begin{aligned} \mathcal{O} &= \text{Tr} [\rho(J_f, J_{f'}) \varepsilon(J_f, J'_{f'})^*] \equiv \\ &\equiv \sum_{k_f q_f} \sum_{J_f J'_f} \sum_{\zeta_f \zeta'_f} \rho_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) \times \\ &\quad \times \varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f)^*. \end{aligned} \quad (19)$$

Для построения тензора конечной системы “ион + электрон” в соответствии с общими правилами [25] в амплитудах (4) и (6) необходимо выделить приведенные амплитуды ионизации $A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f}$, не зависящие от характеристик поля и проекций моментов:

$$\begin{aligned} \langle \psi_f | U^{(1)} | \psi_i \rangle &= \hat{J}_f^{-1} A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f} \langle lm | \mathbf{n}_e \rangle^{\zeta_i \zeta_f} \times \\ &\quad \times \sum_{\lambda} e_{2\omega}^{\lambda} (J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f), \end{aligned} \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \langle \psi_f | U^{(2)} | \psi_i \rangle &= \hat{J}_f^{-1} A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f} \langle lm | \mathbf{n}_e \rangle^{\zeta_i \zeta_f} \times \\ &\quad \times \sum_{J_\gamma M_\gamma \lambda \lambda'} e_{\omega}^{\lambda} e_{\omega}^{\lambda'} (J_i M_i, J_\gamma M_\gamma | J_f M_f) \times \\ &\quad \times (1\lambda, 1\lambda' | J_\gamma M_\gamma), \end{aligned} \quad (21)$$

где $\langle lm | \mathbf{n}_e \rangle^{\zeta_i \zeta_f}$ — разложение единичного вектора импульса фотоэлектрона $\mathbf{n}_e = \mathbf{k}_e/k$ по сферическим гармоникам $Y_{lm}(\vartheta, \varphi)$, явный вид которого зависит от порядка связи моментов, и $\hat{a} = \sqrt{2a+1}$.

Тогда тензор конечной системы примет следующий вид:

$$\begin{aligned} \rho_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) &= \sum_{\substack{J_i J_\gamma J'_f \\ k_i, \gamma q_i, \gamma}} \rho_{k_i q_i}(\zeta_i J_i, \zeta'_i J'_i) \times \\ &\quad \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma J'_\gamma) \hat{k}_i \hat{k}_\gamma (k_i q_i, k_\gamma q_\gamma | k_f q_f) \begin{Bmatrix} J_i & J_\gamma & J_f \\ J_i & J'_\gamma & J'_f \\ k_i & k_\gamma & k_f \end{Bmatrix} \times \\ &\quad \times A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f} A_{J_i J'_\gamma J'_f}^{\zeta_i \zeta_f*}. \end{aligned} \quad (22)$$

Здесь конструкция в фигурных скобках — это стандартное обозначение $9j$ -символа Вигнера. Зависимость от фазы между полями сохраняется в (22) только для слагаемых, в которых приведенные амплитуды $A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f}$ и $A_{J_i J'_\gamma J'_f}^{\zeta_i \zeta_f*}$ происходят от ионизации различными гармониками, т. е. только для интерференционных членов.

Для дальнейших преобразований в (19) необходимо определить порядок связи моментов. Мы выбрали $j\kappa$ -схему связи, в которой полный момент иона \mathbf{J}_c сначала связывается с орбитальным моментом электрона \mathbf{l} в промежуточное квантовое число $\mathbf{J}_c + \mathbf{l} = \boldsymbol{\kappa}$, а затем — со спином фотоэлектрона в полный момент системы $\mathbf{J} - \boldsymbol{\kappa} + 1/2 = \mathbf{J}$. Приведенная амплитуда однофотонного перехода в $j\kappa$ -связи имеет вид

$$\begin{aligned} A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f} &= \\ &= -i \langle \varepsilon_f, (J_c l) \kappa_f \frac{1}{2} : J_f || D || \varepsilon_i, J_i \rangle T_{\varepsilon_i, \varepsilon_f}^{(1)}. \end{aligned} \quad (23)$$

Здесь уже конкретизировано, от каких квантовых чисел зависит амплитуда: $\zeta_i = \{\varepsilon_i\}$, $\zeta_n = \{\varepsilon_n\}$ и $\zeta_f = \{\varepsilon_f, (J_c, l)\kappa_f\}$. Для двухфотонного перехода

$$A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f} = (-1)^{J_i + J_n} \hat{J}_\gamma \sum_n \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & J_\gamma \\ J_i & J_f & J_n \end{matrix} \right\} T_{\varepsilon_i, \varepsilon_n, \varepsilon_f}^{(2)} \times \\ \times \langle E, (J_c l) \kappa_f \frac{1}{2} : J_f D \varepsilon_n, J_n \rangle \times \\ \times \langle \varepsilon_n, J_n || D || \varepsilon_i, J_i \rangle. \quad (24)$$

Каждая пара амплитуд, отвечающих за интерференцию одно- и двухфотонных переходов (23) и (24), имеет одинаковую зависимость от фазы между гармониками

$$A_{J_i J_\gamma J_f}^{\zeta_i \zeta_f} A_{J_i J'_\gamma J'_f}^{\zeta'_i \zeta'_f *} \sim \exp \left[\mp i(\phi - \delta_{J_f J'_f}) \right],$$

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 интерференцию, будет иметь зависимость

$$\cos(\phi - \phi_{max}), \quad (25)$$

где фаза ϕ_{max} будет определена ниже.

Полагая, что конечный ион с полным моментом J_c не детектируется, из общего тензора эффективности регистрации частиц в конечном состоянии,

$$\varepsilon_{k_f q_f}(\zeta_f J_f, \zeta'_f J'_f) = \sum_{\substack{k_s q_s \\ k_l q_l}} \varepsilon_{k_s q_s} \left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right) \varepsilon_{k_l q_l}(\kappa_f, \kappa'_f) \times \\ \times \hat{k}_l \hat{k}_s \hat{J}_f \hat{J}'_f(k_l q_l, k_s q_s | k_f q_f) \left\{ \begin{matrix} \kappa_f & \frac{1}{2} & J_f \\ \kappa'_f & \frac{1}{2} & J'_f \\ k_l & k_s & k_f \end{matrix} \right\}, \quad (26)$$

можно выделить часть, связанную с наблюдением электронов в определенном направлении $\{\vartheta, \varphi\}$:

$$\varepsilon_{k_l q_l}(\kappa_f, \kappa'_f) = \\ = \hat{k}_f \hat{k}'_f (-1)^{\kappa_f + l' + J_c + k_l} \left\{ \begin{matrix} k_l & l & l' \\ J_c & \kappa'_f & \kappa_f \end{matrix} \right\} \varepsilon_{k_l q_l}(l, l'), \quad (27)$$

где $\varepsilon_{k_l q_l}(l, l')$ — тензор эффективности регистрации электронов в направлении $\{\vartheta, \varphi\}$,

$$\varepsilon_{k_l q_l}(l, l') = (-1)^{l'} \hat{l} \hat{l}' (l 0, l' 0 | k_l 0) \frac{\sqrt{4\pi}}{k_l} Y_{k_l q_l}^*(\vartheta, \varphi). \quad (28)$$

Компоненты тензора эффективности регистрации спина электрона в лабораторной системе координат записываются как

$$\varepsilon_{k_s q_s} \left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right) = \\ = \sum_{m_s m'_s} (-1)^{1/2 - m'_s} \left(\frac{1}{2} m_s \frac{1}{2} - m'_s k_s q_s \right) \times \\ \times \left\langle \frac{1}{2} m_s | \varepsilon | \frac{1}{2} m'_s \right\rangle, \quad (29)$$

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 [25].

Для анализа угловой зависимости эмиссии электронов и их поляризации \mathbf{P} в (19) 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 (22) и (26)–(28) в (19). Тогда статистический тензор спина электрона, детектируемого в направлении $\{\vartheta, \varphi\}$, представляется в виде

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_i, \gamma, f, l, q_i, \gamma, f, l} B_{k_i k_\gamma k_l k_s k_f}(J_i J_\gamma, J_i J'_\gamma) \times \\ \times \rho_{k_i q_i}(J_i, J_i) \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma J'_\gamma) \times \\ \times (k_i q_i, k_\gamma q_\gamma | k_f q_f)(k_l q_l, k_s q_s | k_f q_f) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi). \quad (30)$$

Для мишени с $J_i = 0$ полный момент системы $J_f = J_\gamma$, $k_i = 0$ и $k_f = k_\gamma = k$, и статистический тензор может быть записан в виде

$$\rho_{k_s q_s} = \sum_{k_l, \gamma, q_l, \gamma} B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \times \\ \times (k_l q_l, k_s q_s | k_\gamma q_\gamma) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi). \quad (31)$$

Здесь для краткости мы положили

$$B_{0 k_\gamma k_l k_s k_\gamma}(J_i J_\gamma, J_i J'_\gamma) \equiv B_{k_l k_s k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma).$$

Для статистических тензоров фотона и спина электрона справедливы перестановочные соотношения

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

а для динамического параметра —

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

2.5. Спектроскопия

В расчетах использовалась та же спектроскопическая модель, что и в работе [34].

Расчеты проводились методом R -матрицы [27] с использованием экспериментальных энергий порогов [41]. Учитывались все возможные термы конфигураций $1s^2 2s^2 2p^5 n s$ ($n = 3, 4, 5, 6$), $1s^2 2s^2 2p^5 n d$ ($n = 3, 4, 5$), $1s^2 2s^2 2p^4 3s 3p$, $3p 4s$ и $1s^2 2s^2 1p^5 3s 3d$.

Результаты расчетов в различных потенциальных моделях [30, 42, 43] указывают на весомый, однако слабо зависящий от энергии фотона ω ($\omega < \varepsilon_{th} < 2\omega$), вклад переходов через состояния континуума в конечное f -состояние. Эти переходы были учтены добавлением постоянного члена в амплитуды ионизации в эти состояния.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

3.1. Угловое распределение электронов

Все дальнейшие рассуждения справедливы для мишеней с $J_i = 0$ (инертные газы), а численные результаты, если не указано иное, представлены для энергии основной гармоники, соответствующей возбуждению $2p^5(^2P_{3/2})4s \left[\frac{3}{2}\right]$ резонанса неона, импульса длиной $N = 500$ оптических циклов (порядка 100 фс) с огибающей $E_{\omega(2\omega)}(t) = \sin^2(\omega t/2N)$, напряженностей компонент электромагнитного поля $|E_\omega| = 5.338 \cdot 10^{-3}$ ат. ед., $E_{2\omega}/E_\omega = \sqrt{0.001}$, и нулевой разности фаз между ними $\phi = 0$. Такая огибающая обеспечивает плавность включения и выключения импульса, что частично устраняет различия расчетов в представлении длины и скорости [44, 45]. Приведенные ниже результаты получены в представлении длины, так как для линейной поляризации они лучше согласуются с имеющимися экспериментальными данными [23].

По определению (11) угловое распределение фотоэлектронов (PAD) получается из (31) в виде разложения по сферическим гармоникам:

$$W(\vartheta, \varphi) = \sum_{kq} \beta_{kq} Y_{kq}(\vartheta, \varphi), \quad (32)$$

где 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 коэффициента Клебша–Гордана в (28), (31) следует вывод, что вклад в угловое распределение (32) дают только четные ранги фотонных статистических тензоров $\rho_{kq}^{2\omega, 2\omega}$ и $\rho_{kq}^{\omega+\omega, \omega+\omega}$ и только нечетные — 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.

Как следует из (25), зависимость формы углового распределения (32) от фазы между полями всегда может быть параметризована:

$$W = S_1(\vartheta, \varphi) + S_2(\vartheta, \varphi) \cos(\phi - \phi_{max}(\vartheta, \varphi)), \quad (33)$$

где $S_1(\vartheta, \varphi)$ и $S_2(\vartheta, \varphi)$ — вклады от некогерентной суммы одно- и двухфотонных переходов и их интерференции соответственно, 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 [31].

Основываясь на сказанном выше, мы предлагаем выбрать следующий критерий когерентного контроля:

$$C(\vartheta, \varphi) = \frac{W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{max}} - W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{max}+\pi}}{W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{max}} + W(\vartheta, \varphi)_{\phi=\phi_{max}+\pi}}. \quad (34)$$

Отметим, что он является обобщением критериев, принятых в работах [30, 31] 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

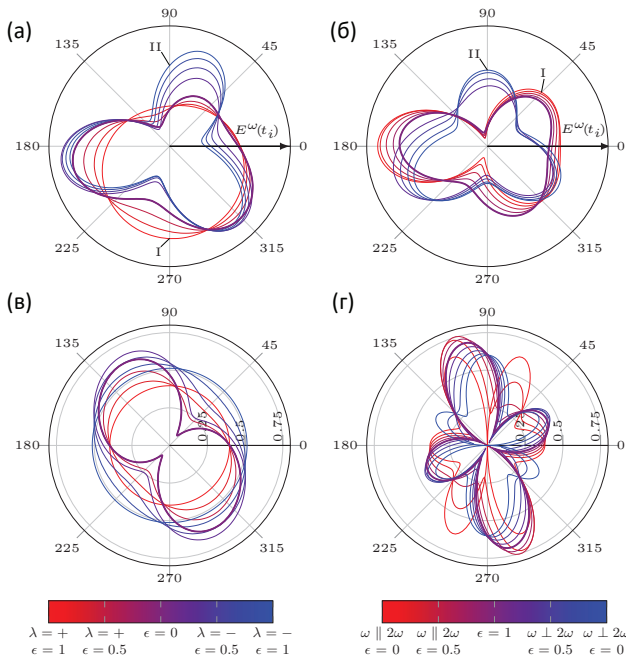


Рис. 3. (В цвете онлайн) Трансформация формы PAD в плоскости поляризации гармоник ($\phi = 0$): (а) круговой правополяризованной основной гармоники ($\epsilon = 1, \lambda = +$) при изменении эллиптичности и спиральности второй гармоники от круговой правополяризованной ($\epsilon = 1, \lambda = +$, красная линия) до круговой левополяризованной ($\epsilon = 1, \lambda = -$, синяя); (б) линейно поляризованной основной гармоники ($\epsilon = 0$) 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). (в,г) Степень когерентного контроля $C(d, \varphi)$ (34) для (а,б) соответственно

при изменении поляризации полей между выделенными конфигурациями с простой параметризацией, которые были рассмотрены ранее в работах [30, 31, 34], а именно для линейно и циркулярно поляризованных полей, находящихся в одной плоскости xy (рис. 3). 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 — с $k = 1, 3$, $q = \pm 1, \pm 3$. Таким образом, в (32) 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 рас-

смотрением PAD в ее сечении.

Слагаемое с $q = \pm 3$, соответствующее тензору третьего ранга, происходит от интерференции компонент противоположных спиральностей (см. табл. 2), 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. Поскольку 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 [32] за счет уменьшения числа каналов.

Неинтерференционные члены с $q = \pm 2, \pm 4$, соответствующие тензорам второго и четвертого ранга, возникают при значениях эллиптичности полей $\epsilon < 1$ (см. табл. 1 и 3) и максимальны для линейно поляризованных полей $\epsilon = 0$. Они приводят к появлению слагаемых с симметрией D_{2h} и D_{4h} .

На рис. 3 а красная и синяя линии (I) и (II) соответствуют предельным случаям гармоник круговой поляризации с одинаковой и противоположной спиральностями соответственно, рассмотренными в [31]. Жирной фиолетовой линией выделен PAD для линейно поляризованной второй гармоники $\epsilon = 0$, неакцентированные линии соответствуют промежуточным значениям эллиптичности $\epsilon < 1$. 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.

Другой пример трансформации (см. рис. 3 б): при фиксированной линейной поляризации основной гармоники поляризация второй меняется от линейной вдоль оси x до линейной вдоль оси y за счет изменения эллиптичности ϵ от 0 до 1 и обратно. Красная и синяя линии (I) и (II) соответствуют предельным случаям параллельно и перпендикулярно поляризованных полей, рассмотренных в работах [30, 34]. В первом случае PAD аксиально симметрично относительно оси x , во втором появляется плоскость симметрии yz , перпендикулярная плоскости xy , содержащей векторы поляризации. Случай, когда вторая гармоника поляризована циркулярно и произведенный ей вклад в угловое распределение обладает аксиальной симметрией, выделен жирной фиолетовой линией.

Угловые распределения, выделенные жирной фиолетовой линией на рис. 3 а, б, отвечают случаям,

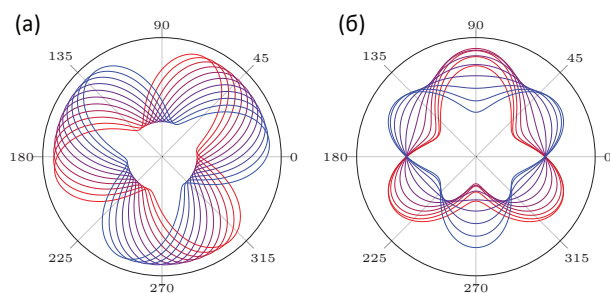


Рис. 4. (В цвете онлайн) Трансформация формы PAD в плоскости поляризации гармоник при изменении фазы между полями ϕ от 0 до π с шагом 0.1π для (а) гармоник круговой поляризации противоположных спиральностей, поляризованных в одной плоскости, (б) линейно поляризованных в перпендикулярных направлениях гармоник

когда основная (вторая) гармоника обладает круговой поляризацией и вторая (основная) — линейной вдоль оси x . В обоих случаях огибающая поля обладает плоскостью симметрии xz , которая при этом не является плоскостью симметрии углового распределения.

На рис. 3 в, г показана степень когерентного контроля $C(\vartheta, \varphi)$ (34) для поляризаций полей, показанных на рис. 3 а, б соответственно. Синяя и красная линии на рис. 3 в 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 гармоник (рис. 3 в) угловая зависимость $C(\vartheta, \varphi)$ является более плавной, чем для линейно поляризованной (рис. 3 г), а ярко выраженные экстремумы возникают только тогда, когда вторая гармоника поляризована линейно.

Важно отметить, что, несмотря на внешнюю схожесть, PAD для гармоник круговой поляризации противоположных спиральностей и для линейно поляризованных гармоник в перпендикулярных направлениях (три максимума и минимума, отстоящие по φ на $2\pi/3$) по-разному ведут себя при изменении фазы между полями ϕ . Первое PAD при изменении фазы поворачивается вокруг оси z , сохраняя форму (рис. 4 а), а второе имеет три максимума, ориентированных в $\varphi = \pi/2, \pm 5\pi/6$, величина которых регулируется фазой между гармониками (см. рис. 4 б). Это объясняется тем, что в первом случае параметры анизотропии PAD нечетного порядка $\beta_{k=odd}$ являются комплексными, а во втором случае все $\beta_{k=odd}$ мнимые, а значит, имеют одинаковую фазу $\pi/2$. Хо-

тя в обоих угловых распределениях максимальные степени когерентного контроля $C(\vartheta, \varphi)$ в плоскости поляризации сравнимы (порядка 50% для выбранных параметров, см. рис. 3 в, г), их угловые зависимости существенно различаются: в первом случае какие-либо выделенные направления отсутствуют, а во втором такое направление, связанное с вектором поляризации второй гармоники $\mathbf{e}_{2\omega} \parallel y$, присутствует. Схожая ситуация — все $\beta_{k=odd}$ действительные, т. е. имеют одинаковую фазу равную нулю — наблюдается также для ионизации полями, линейно поляризованными в одном направлении.

3.2. Поляризация спина электрона

В этом разделе мы применяем развитый метод к описанию поляризации спина фотоэлектронов. Поляризацию спина электронов, испущенных при ионизации неполяризованного атома, можно наблюдать, если существует какой-либо механизм пространственного и (или) энергетического разделения электронов, имеющих различные проекции спина на выделенную ось. Обычно в литературе [46, 47] рассматривается ситуация, когда это разделение возникает за счет тонкого расщепления конечных состояний иона и, как и другие эффекты, вызванные электрон-электронными корреляциями, может усиливаться в области автоионизационных состояний или куперовских минимумов в сечениях. Для выбранной мишени расщепление конечных состояний иона $2p^5\ ^2P_{1/2,3/2}$, вызванное спин-орбитальным взаимодействием, невелико (0.1 эВ) и фотоэлектроны, соответствующие разным состояниям конечного иона, как правило, не разрешаются в экспериментах на ЛСЭ. Амплитуды ионизации основного состояния не имеют каких-либо структурных особенностей в исследуемой области энергий и меняются плавно. Напротив, парциальные сечения ионизации возбужденных состояний, расщепленных в результате спин-орбитального взаимодействия (в нашем случае $2p^5\ (^2P_{1/2,3/2})4s\ [\frac{1}{2}, \frac{3}{2}]$, $2p^5\ (^2P_{1/2,3/2})3d\ [\frac{1}{2}, \frac{3}{2}]$), могут различаться значительно [48]. Таким образом, за счет селективного возбуждения фотоном с энергией ω дискретных состояний может наблюдаться существенная поляризация спина электрона. Поляризация спина, приобретаемая в процессе прямой однофотонной ионизации, пренебрежимо мала; в процессе двухфотонной ионизации поляризация присутствует, но направление спина определяется только геометрией системы; наконец, интерференция между одно- и двухфотонными каналами ионизации

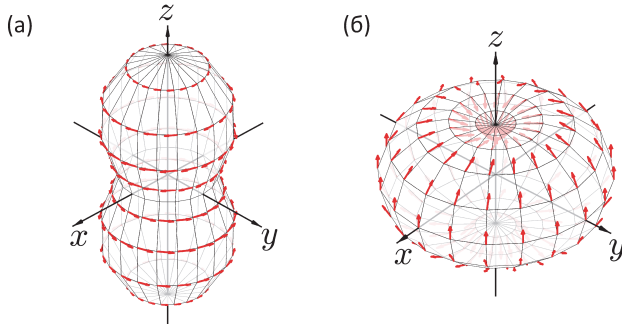


Рис. 5. Поведение вектора поляризации фотоэлектрона при однофотонной ионизации полем, поляризованным линейно параллельно оси z (а) и циркулярно в плоскости xy (б)

приводит к существенному изменению как величины поляризации, так и направления.

Из (31), пользуясь определениями (12)–(14), можно получить следующие выражения для компонент спиновой поляризации электрона, в которых явным образом выделена зависимость от углов $\{\vartheta, \varphi\}$:

$$P_z(\vartheta, \varphi) = W^{-1}(\vartheta, \varphi) \sum_{J_\gamma J'_\gamma k_l, \gamma q_l, \gamma} B_{k_l 1 k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \times \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma)(k_l q_l, 10 | k_\gamma q_l) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi), \quad (35)$$

$$P_x(\vartheta, \varphi) = -W^{-1}(\vartheta, \varphi) \sum_{J_\gamma J'_\gamma k_l, \gamma q_l, \gamma} B_{k_l 1 k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \times \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \left((k_l q_l, 11 | k_\gamma q_\gamma) - (k_l q_l, 1 -1 | k_\gamma q_\gamma) \right) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi), \quad (36)$$

$$P_y(\vartheta, \varphi) = -iW^{-1}(\vartheta, \varphi) \sum_{J_\gamma J'_\gamma k_l, \gamma q_l, \gamma} B_{k_l 1 k_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \times \rho_{k_\gamma q_\gamma}(J_\gamma, J'_\gamma) \left((k_l q_l, 11 | k_\gamma q_\gamma) + (k_l q_l, 1 -1 | k_\gamma q_\gamma) \right) Y_{k_l q_l}(\vartheta, \varphi). \quad (37)$$

Для изучения влияния интерференции полезно напомнить, как ведет себя вектор поляризации при однофотонной ионизации линейно и циркулярно поляризованными полями. При ионизации линейно поляризованным полем спин фотоэлектрона \mathbf{s}_e перпендикулярен вектору поляризации линейно поляризованной гармоники $\mathbf{e}_{2\omega}$ и импульсу фотоэлектрона \mathbf{k}_e : $\mathbf{s}_e \parallel [\mathbf{k}_e \times \mathbf{e}_{2\omega}]$ (рис. 5 а). При ионизации циркулярно поляризованным полем поляризация спина

содержит все три компоненты, но в рассматриваемой системе спин преимущественно ориентирован в плоскости $(\mathbf{e}_{2\omega}, \mathbf{k}_e)$ (рис. 5 б), что вызвано доминированием d -волны. Еще раз отметим, что сама величина спиновой поляризации для однофотонного процесса крайне мала ($|\mathbf{P}| < 10^{-3}$).

Среди множества геометрий, возможных для комбинации двух гармоник, интересно найти такие, для которых интерференция одно- и двухфотонных переходов приводит к появлению компонент спина, запрещенных в традиционной фотоионизации. Самыми многообещающими являются случаи, когда одна из гармоник линейно поляризована, так как ни однофотонная, ни двухфотонная ионизации не допускают эмиссии фотоэлектронов, поляризованных в направлении вектора поляризации поля (см. рис. 5 а). Ситуации, когда обе гармоники поляризованы линейно, параллельно и перпендикулярно, были рассмотрены ранее [33, 34]. Здесь мы сфокусируемся на ситуации, когда вторая из гармоник обладает круговой поляризацией.

1. Геометрия G1. Основная гармоника ω линейно поляризована параллельно оси x и вторая гармоника 2ω циркулярно поляризована в плоскости yz . Вектор напряженности для такой геометрии представлен на рис. 2 г.

В отсутствие интерференции измеримая (для атома неона) спиновая поляризация появляется только за счет двухфотонной ионизации через возбужденные состояния $2p^5(2P_{1/2,3/2})ns \left[\frac{1}{2}, \frac{3}{2} \right]$, ее вектор перпендикулярен направлению вылета электрона и лежит в плоскости yz (подобно рис. 5 а). Интегральная по углам поляризация спина равна нулю, однако при наблюдении фотоэлектронов, испущенных в определенном направлении $\{\theta, \varphi\}$, она может оказаться довольно высокой. Максимальная величина поляризации, вообще говоря, необязательно достигается в минимуме сечения. Подробнее двухфотонная ионизация линейно поляризованным полем рассмотрена в работе [34].

Отметим, что для геометрии G1 изменение относительной фазы гармоник эквивалентно повороту вокруг оси $x \parallel \mathbf{e}_\omega$ без изменения абсолютных величин наблюдаемых. Поэтому, без потери общности, мы выбираем плоскость наблюдения фотоэлектронов xz . Интерференционные эффекты “перестраивают” направление вектора спиновой поляризации (рис. 6 а), и теперь его ориентация вдоль осей z и y не равновероятна. Для выбранной фазы ориентация вдоль оси z явно обладает преимуществом. Угловое распределение фотоэлектронов и компоненты P_x симметричны относительно плоскости yz , ком-

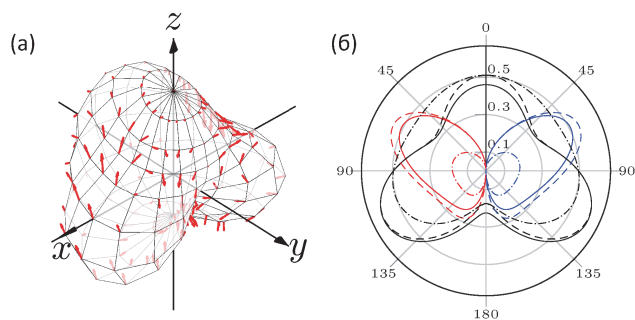


Рис. 6. (В цвете онлайн) Для геометрии G1: (а) PAD, направление и относительная величина спиновой поляризации \mathbf{P} фотоэлектронов, вылетающих в определенном направлении $\mathbf{k}_e = \{\theta, \varphi\}$; (б) PAD (черная линия) и компонента спиновой поляризации P_z (красный цвет для $P_z > 0$, 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)

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 .

Для выбранной плоскости наблюдения фотоэлектронов xz существование компоненты P_z возможно только за счет интерференции. Эта компонента обращается в нуль в плоскости yz и достигает максимума в некотором направлении $\{\theta, \varphi\}$, определяемом динамическими особенностями системы и параметрами поля (в частности, разницей фаз ϕ). На рис. 6б построена форма углового распределения и величины спиновой поляризации P_z для трех разных фаз, одна из которых $\phi = 20^\circ$ выбрана так, чтобы обеспечивать максимум величины спиновой поляризации. Рисунок демонстрирует, что величина P_z , а значит и P_y , эффективно контролируется с помощью вариации фазы ϕ .

Наконец, проследим изменение компонент спиновой поляризации фотоэлектронов P_z в зависимости от энергии фотона ω . Поскольку поляризация фотоэлектронов при многофотонной ионизации неона возникает в основном за счет спин-орбитального расщепления промежуточных состояний, при энергиях фотона ω , далеких от энергий, соответствующих их резонансному возбуждению, она пренебрежимо мала. На рис. 7 изображен интегральный спектр фотоэмиссии $\int W(\omega; \vartheta, \varphi) d\Omega$ для геометрии G1 и компонента P_z при энергиях фотона ω , соответствующих возбуждению состо-

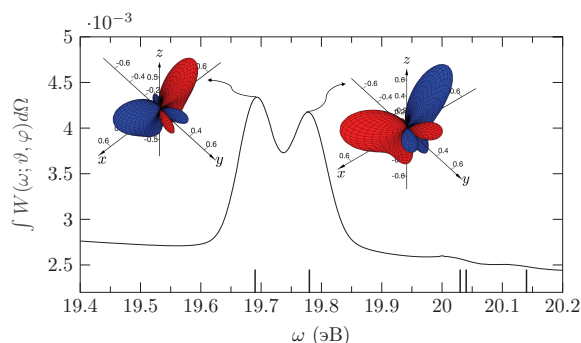


Рис. 7. (В цвете онлайн) Спектр фотоэмиссии для геометрии G1. На вставках изображена компонента P_z при энергиях фотона ω , соответствующих возбуждению $4s$ -резонансов (красный цвет для $P_z > 0$, синий — для $P_z < 0$). Вертикальными линиями отмечены положения возбужденных состояний (см. рис. 1)

ятий $2p^5(2P_{1/2,3/2})4s [\frac{1}{2}, \frac{3}{2}]$. Преимущественное направление спина фотоэлектронов при возбуждении этих резонансов противоположно, что свидетельствует о высокой селективности возбуждения состояний с различными проекциями спина. Область $2p^5(2P_{1/2,3/2})3d [\frac{1}{2}, \frac{3}{2}]$ возбуждается слабо, и спиновая поляризация при энергиях фотона ω , приходящихся на эту область, небольшая в первую очередь из-за доминирующего вклада однофотонной ионизации.

2. Геометрия G2. Основная гармоника ω циркулярно поляризована в плоскости xy и вторая гармоника 2ω линейно поляризована параллельно оси z . Вектор напряженности поля для этой геометрии представлен на рис. 2д.

Как и в геометрии G1, в отсутствие интерференции измеримая спиновая поляризация появляется только за счет двухфотонной ионизации. Вектор поляризации \mathbf{P} почти перпендикулярен плоскости xy , компонента, лежащая в этой плоскости

$$P_{xy} = \sqrt{P_x^2 + P_y^2} \ll P_z.$$

Степень поляризации фотоэлектронов достигает 0.8–1. Такую высокую выстроенность можно объяснить одновременной работой двух механизмов, отвечающих за появление поляризации фотоэлектронов: это и разница в сечениях образования фотоэлектронов с разной проекцией спина, и эффект передачи момента (динамическая поляризация и трансфер в терминологии [49, 50]).

Степень поляризации спина при двухфотонной ионизации полем круговой поляризации очень вы-

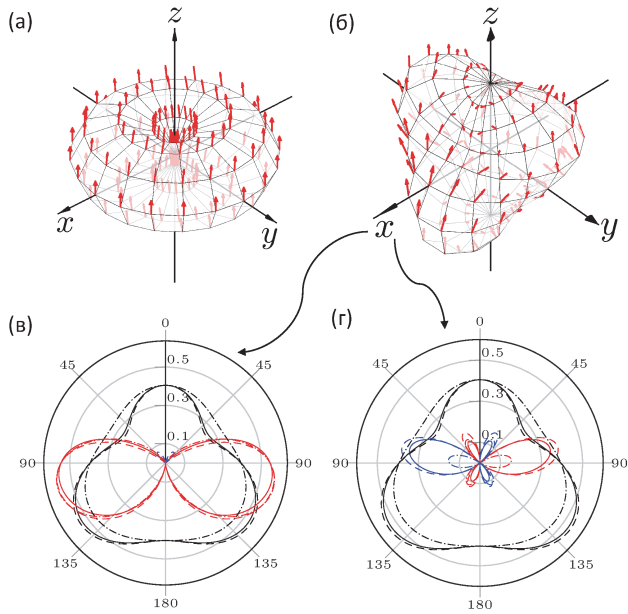


Рис. 8. (В цвете онлайн) PAD, направление и относительная величина спиновой поляризации \mathbf{P} фотоэлектронов, вылетающих в определенном направлении $\mathbf{k}_e = \{\theta, \varphi\}$: при двухфотонной ионизации циркулярно поляризованным полем (а); для геометрии G2 (б). Сечение плоскостью xz для компоненты P_z (в) и P_x (г) при фазе между гармониками 0 (сплошная линия), $\pi/9$ (штриховая линия), $\pi/2$ (штрихпунктирная линия). Красный цвет для $P_{z(x)} > 0$, синий — для $P_{z(x)} < 0$

сока и, естественно, интерференция с однофотонной ионизацией линейно поляризованной гармоникой может только переориентировать ее (рис. 8): существенно увеличивается компонента P_{xy} , а уменьшение величины полной степени поляризации $|\mathbf{P}|$ объясняется вкладом от неполяризованных фотоэлектронов, испущенных в результате однофотонной ионизации. Возможность когерентного контроля за счет фазы между гармониками ϕ сильно ограничена. При изменении фазы ϕ компонента P_{xy} не изменяет своей величины, а только направление, поворачиваясь на тот же угол, что и угловое распределение. Существуют две ортогональные плоскости, содержащие ось z и являющиеся плоскостями симметрии углового распределения и компоненты P_z , но их азимутальный угол зависит от динамических параметров системы.

На рис. 9 изображен спектр фотоэмиссии $\int W(\omega; \vartheta, \varphi) d\Omega$ для геометрии G2 и компонента P_z при энергиях фотона ω , соответствующих возбуждению состояний $2p^5(^2P_{1/2,3/2})4s[\frac{1}{2}, \frac{3}{2}]$. Как и для геометрии G1 (см. рис. 7), наблюдается

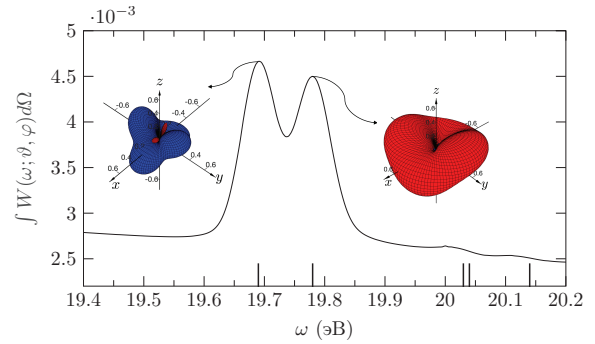


Рис. 9. (В цвете онлайн) Спектр фотоэмиссии для геометрии G2. На вставках изображена компонента P_z при энергиях фотона ω , соответствующих возбуждению $4s$ -резонансов (красный цвет для $P_z > 0$, синий — для $P_z < 0$). Вертикальными линиями отмечены положения возбужденных состояний (см. рис. 1)

инверсия преимущественного направления спина фотоэлектронов.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлен обобщенный подход для описания ионизации атомов бихроматическим полем кратных частот $\omega + 2\omega$, основанный на формализме статистических тензоров. Проанализированы эффекты, вызванные интерференцией одно- и двухфотонных амплитуд переходов, такие как нарушение симметрии углового распределения и изменение поляризации спина фотоэлектрона. Показана роль фазы между гармониками как управляющего параметра для когерентного контроля над этими наблюдаемыми. Предсказано появление новых компонент поляризации спина, вызванное интерференцией. Проведены демонстрационные расчеты для ионизации атома неона при условиях, близких к реализуемым на современных лазерах на свободных электронах.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-52-12023); Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (проект № 0818-2020-0005) с использованием вычислительных ресурсов ЦКП «Центр данных ДВО РАН».

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Gustafsson et al., *Phys. Rev. Lett.* **97**, 013001 (2006).
2. P. K. Maroju, C. Grazioli, M. Di Fraia et al., *Nature* **578**, 386 (2020).
3. D. You, K. Ueda, E. V. Gryzlova et al., *Phys. Rev. X* **10**, 031070 (2020).
4. M. J. Stevens, A. L. Smirl, R. D. R. Bhat et al., *Phys. Rev. Lett.* **90**, 136603 (2003).
5. A. H. Zewail, *J. Phys. Chem. A* **104**, 5660 (2000).
6. P. Brumer and M. Shapiro, *Chem. Phys. Lett.* **126**, 541 (1986).
7. M. Shapiro, W. H. John, and P. Brumer, *Chem. Phys. Lett.* **149**, 451 (1988).
8. Е. А. Манькин, А. М. Афанасьев, *ЖЭТФ* **48**, 931 (1965).
9. Е. А. Манькин, А. М. Афанасьев, *ЖЭТФ* **52**, 1246 (1967).
10. K. Aron and P. M. Johnson, *J. Chem. Phys.* **67**, 5099 (1977).
11. C. Chen, Y.-Y. Yin, and D. S. Elliott, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 507 (1990).
12. Н. Б. Баранова, Б. Я. Зельдович, А. Н. Чудинов, А. А. Шульгинов, *ЖЭТФ* **98**, 1857 (1990).
13. Д. З. Андерсон, Н. Б. Баранова, К. Грин, Б. Я. Зельдович, *ЖЭТФ* **102**, 39 (1992).
14. M. V. Fedorov and N. P. Poluektov, *Opt. Express* **6**, 117 (2000).
15. P. V. Demekhin, A. N. Artemyev, A. Kastner, and T. Baumert, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 253201 (2018).
16. S. Kerbstadt, D. Pengel, D. Johannmeyer et al., *New J. Phys.* **19**, 103017 (2017).
17. I. Babushkin, Á. J. Galán, J. R. C. de Andrade et al., *Nature Phys.* **18**, 417 (2022).
18. V. A. Tulsy, M. Baghery, U. Saalman, and S. V. Popruzhenko, *Phys. Rev. A* **98**, 053415 (2018).
19. N. L. Manakov, V. D. Ovsiannikov, and A. F. Starace, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4791 (1999).
20. P. Kalaitzis, D. Spasopoulos, and S. Cohen, *Phys. Rev. A* **100**, 043409 (2019).
21. L. A. A. Nikolopoulos and P. Lambropoulos, *Phys. Rev. A* **74**, 063410 (2006).
22. E. Allaria, R. Appio, L. Badano et al., *Nature Photon.* **6**, 699 (2012).
23. K. C. Prince, E. Allaria, C. Callegari et al., *Nature Photon.* **10**, 176 (2016).
24. A. N. Grum-Grzhimailo, E. V. Gryzlova, E. I. Staroselskaya et al., *Phys. Rev. A* **91**, 063418 (2015).
25. V. V. Balashov, A. N. Grum-Grzhimailo, and N. M. Kabachnik, *Polarization and Correlation Phenomena in Atomic Collisions: A Practical Theory Course*, Kluwer Acad./Plenum Publ., New York (2000).
26. C. Froese Fischer, T. Brage, and P. Jonsson, *Computational Atomic Structure: An MCHF Approach*, IOP Publ., Bristol (1997).
27. O. Zatsarinny, *Comput. Phys. Commun.* **174**, 273 (2006).
28. A. N. Grum-Grzhimailo, A. D. Kondorskiy, and K. Bartschat, *J. Phys. B* **39**, 4659 (2006).
29. N. Douguet, E. V. Gryzlova, E. I. Staroselskaya et al., *Eur. Phys. J. D* **71**, 1 (2017).
30. E. V. Gryzlova, A. N. Grum-Grzhimailo, E. I. Staroselskaya et al., *Phys. Rev. A* **97**, 013420 (2018).
31. E. V. Gryzlova, M. M. Popova, A. N. Grum-Grzhimailo et al., *Phys. Rev. A* **100**, 063417 (2019).
32. N. Douguet, A. N. Grum-Grzhimailo, E. V. Gryzlova et al., *Phys. Rev. A* **93**, 033402 (2016).
33. E. V. Gryzlova, M. M. Popova, and A. N. Grum-Grzhimailo, *Phys. Rev. A* **102**, 053116 (2020).
34. M. M. Popova, E. V. Gryzlova, M. D. Kiselev, and A. N. Grum-Grzhimailo, *Symmetry* **13**, 1015 (2021).
35. C. Callegari, A. N. Grum-Grzhimailo, K. L. Ishikawa et al., *Phys. Rep.* **904**, 1 (2021).
36. M. Di Fraia, O. Plekan, C. Callegari et al., *Phys. Rev. Lett.* **123**, 213904 (2019).
37. P. Ranitovic, C. W. Hogle, P. Rivière et al., *Proc. Nat. Acad. Sci.* **111**, 912 (2014).
38. Д. А. Варшалович, А. Н. Москалев, В. К. Херсонский, *Квантовая теория углового момента*, Наука, Ленинград (1975).
39. A. Messiah, *Quantum Mechanics*, Dover Publ. (1961).
40. H. R. Reiss, *J. Phys. B* **47**, 204006 (2014).

41. A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team, *NIST Atomic Spectra Database* (ver. 5.8), <https://physics.nist.gov/asd> [2021, April 21], National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA (2020).
42. R. Moccia, N. K. Rahman, and A. Rizzo, *J. Phys. B* **16**, 2737 (1983).
43. Е. И. Старосельская, А. Н. Грум-Гржимайло, Вестник Московского университета. Серия 3: физика, астрон. **5**, 45 (2015).
44. G. Grynbergt and E. Giacobino, *J. Phys. B* **12**, 93 (1979).
45. V. Vèniard and B. Piraux, *Phys. Rev. A* **41**, 4019 (1990).
46. N. A. Cherepkov, *J. Phys. B* **12**, 1279 (1979).
47. T. Nakajima and P. Lambropoulos, *Europhys. Lett.* **57**, 25 (2002).
48. R. Kau, I. D. Petrov, V. L. Sukhorukov, and H. Hotop, *J. Phys. B* **29**, 5673 (1996).
49. H. Klar, *J. Phys. B* **13**, 4741 (1980).
50. N. M. Kabachnik, *AIP Conf. Proc.* **295**, 73 (1993).