

АТТОСЕКУНДНАЯ ИНТЕРФЕРОМЕТРИЯ ПРИ УЧАСТИИ ДИСКРЕТНЫХ СОСТОЯНИЙ

М. М. Попова^{a,b*}, *С. Н. Юдин*^b, *Е. В. Грызлова*^b, *М. Д. Киселев*^{a,b,c,d},

А. Н. Грум-Гржимайло^{b,d}

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

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

^c *Лаборатория моделирования квантовых процессов,
Тихоокеанский государственный университет
680035, Хабаровск, Россия*

^d *Университет ИТМО, Физический факультет
197101, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 4 октября 2022 г.,
после переработки 4 октября 2022 г.
Принята к публикации 20 октября 2022 г.

Теоретически рассматриваются особенности RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions) спектроскопии в условиях, когда существенную роль играют переходы через состояния дискретного спектра. Применяется два подхода: численное решение скоростных уравнений с дискретизацией континуума и теория возмущений в третьем порядке по амплитуде. Оба подхода используют матричные элементы переходов и амплитуды фотоионизации, полученные высокоточным методом R -матрицы. В рамках этих подходов получены фотоэлектронные спектры, амплитуда и фаза RABBITT-осцилляций, изучено влияние интенсивности затравочного оптического поля и отстройки от резонанса при возбуждении дискретных состояний.

DOI: 10.31857/S004445102303001X
EDN: QDEONHW

1. ВВЕДЕНИЕ

Изучение динамики малых квантовых систем в сверхбыстром масштабе активно развивается в связи с появлением интенсивных и ультракоротких импульсных источников света в вакуумном ультрафиолетовом (ВУФ) и рентгеновском режимах. Развитие источников излучения, основанных на генерации гармоник высокого порядка (ННГ) [1, 2], привело к возникновению аттосекундной метрологии, что позволило исследовать динамику электронов в атомах, молекулах и твердых телах в естественной временной шкале [3–7]. Прогресс в технике генерации позволяет получать импульсы короче 100 ас [8–11].

Методы аттосекундной интерферометрии, основанные на фотоэмиссии, можно разделить на streaking-спектроскопию [12–15] с использованием единичного аттосекундного импульса и RABBITT, где используется последовательность импульсов [4, 16, 17]. Сравнительные преимущества и недостатки RABBITT- и streaking-спектроскопии обсуждаются в [18].

Метод RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions) основан на использовании последовательности ВУФ-импульсов для ионизации мишени совместно с затравочным ИК- или оптическим импульсом [19] и варьировании времени его задержки относительно ВУФ для извлечения информации об относительных фазах амплитуд переходов. Поскольку ВУФ-компоненты ω_N являются (как правило, нечетными) гармониками оптического/ИК лазера ω_{ir} , то

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

$\omega_N = N\omega_{ir}$. Высокочастотный импульс переводит электрон в состояние непрерывного спектра, называемое основной линией (mainline — ML), а интенсивное низкочастотное поле создает боковые линии (sidebands — SB) [20] при энергиях, соответствующих дополнительному поглощению или испусканию n низкочастотных фотонов $\omega_N \pm n\omega_{ir}$ (рис. 1). В низшем порядке теории возмущений можно показать, что интерференция между переходами, вызванными поглощением фотона с частотой ω_N с последующим поглощением фотона с частотой ω_{ir} и поглощением фотона ω_{N+2} с испусканием ω_{ir} , приводит к тому, что величина SB осциллирует на удвоенной частоте ИК-поля ω_{ir} при изменении времени его задержки τ относительно ВУФ:

$$SB(\tau) = a + b \cos(2\omega_{ir}\tau - \phi_{max}). \quad (1)$$

Для импульсов, содержащих большое число оптических циклов, изменение задержки импульса эквивалентно изменению фазы ИК-поля $\phi_{ir} = \omega_{ir}\tau$ относительно ВУФ.

Обзор ограничений, накладываемых на RABBITT-спектроскопию длиной импульса, фазовыми флуктуациями и статистикой измерений, представлен в [21].

Для описания и интерпретации RABBITT использовались подходы, основанные на различных вариациях теории возмущений [22–24], в том числе и при учете релятивистских поправок, приближении сильного поля [25], решении нестационарного уравнения Шредингера [26–30] и, наконец, нестационарной версии R -матрицы [31]. Два последних метода, несомненно, эффективны для моделирования, но практически не позволяют анализировать вклады различных процессов, т. е. являются, по сути, разновидностью численного эксперимента.

В настоящей работе мы предлагаем и тестируем подход, основанный на решении скоростных уравнений с использованием полученных с необходимой спектроскопической точностью дипольных матричных элементов переходов. Мы применяем метод стационарной R -матрицы [32] для описания переходов между состояниями дискретного спектра и континуума; метод устранения расходимости [33, 34] для описания переходов между состояниями континуума. Для проверки и анализа результатов решения скоростных уравнений мы проводим сравнение с результатами, полученными в рамках теории возмущений. Развиваемый нами метод применен к исследованию RABBITT осцилляций в примыкающей к порогу области непрерывного спектра атома неона (рис. 1).

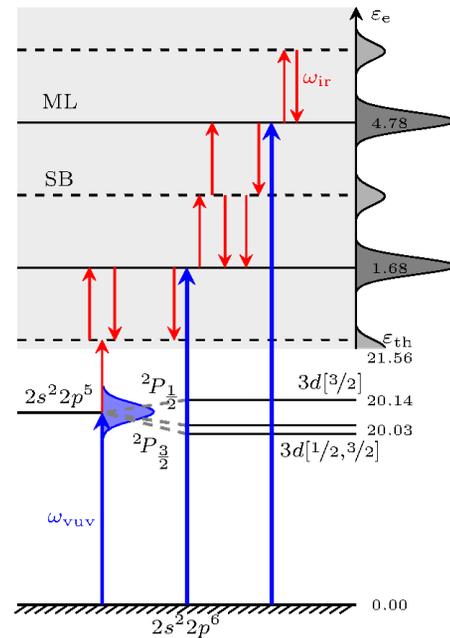


Рис. 1. Схема многочастотной «ВУФ+ИК»-ионизации атома неона при несущей длине волны $\lambda \approx 800$ нм и ВУФ-поле, состоящем из 13, 15 и 17 ее гармоник

Особенность этой области, привлекая в последнее время усиленное внимание как теоретиков, так и экспериментаторов [27, 35–37], — участие в формировании спектра переходов через дискретные состояния. Вклад последних доминирует в припороговой области, т. е. в нижайших основной и боковой линиях. Ранее подобное усиление некоторых переходов отмечалось в области автоионизационных, или квазидискретных, состояний [38–42].

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

2. ЭЛЕКТРОМАГНИТНОЕ ПОЛЕ

Поле представляет собой сумму инфракрасного поля (обозначаемого как «ir») и нескольких гармоник N -го порядка в ВУФ-диапазоне (обозначаемых « N »):

$$\mathbf{E}(t) = \sum_N \cos^2(t/\sigma_N) \mathbf{n}_\lambda g_\lambda^N E_N \cos(\omega_N t + \phi_N) + \mathbf{n}_\lambda g_\lambda^{ir} E_{ir} \cos^2(t/\sigma_{ir}) \cos(\omega_{ir} t + \phi_{ir}). \quad (2)$$

Здесь $\mathbf{n}_\lambda g_\lambda$ — вектор поляризации, представленный в виде разложения по ортам в циклическом базисе \mathbf{n}_λ [43]. Если ось z совпадает с направлением распространения гармоники, то $\lambda = \pm 1$, иначе допускается компонента $\lambda = 0$ (в частности, для линейно поляризованного вдоль оси z поля существует только компонента $\lambda = 0$). $E_{N,ir}$ — на-

пряженности соответствующей гармоники. В качестве огибающей мы используем полупериод косинуса, так как он обладает необходимыми условиями гладкости поля и его первой производной в начале и конце импульса. Отметим, что для гауссовского импульса $\exp(-x^2/2\sigma_\Gamma^2) \approx 1 - x^2/2\sigma_\Gamma^2$, а для косинуса $\cos^2(x/\sigma) \approx 1 - x^2/\sigma^2$, т.е., чтобы иметь такое же поведение в максимуме, как и при гауссовской огибающей, должно удовлетворяться соотношение $\sigma = \sqrt{2}\sigma_\Gamma$. При генерации ННГ ширина ВУФ-импульса $\sigma_{\Gamma,N}$ не зависит от номера гармоники и связана с шириной затравочного импульса как $\sigma_{\Gamma,N} = \sigma_{\Gamma,ir}/2$. Типичная длительность ННГ-импульса составляет порядка 10–20 фс, т.е. в нем укладываются десятки или даже сотни оптических циклов. ИК-импульс начинается в момент $-t_{ir} = -\pi/2\sigma_{ir}$, а ВУФ соответственно в $-t_N = -\pi/2\sigma_N$.

Векторный потенциал получается из напряженности (2) как

$$\mathbf{A}(t) = -c \int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t') dt' = \sum_h \mathbf{A}_h(t). \quad (3)$$

Векторный потенциал каждой из гармоник ($h = N, ir$) электромагнитного поля $\mathbf{A}_h(t)$ представлен в виде разложения:

$$\mathbf{A}_h(t) = c \sum_\lambda \mathbf{n}_\lambda g_\lambda^h A_h^+(t) e^{-i(\omega_h t + \phi_h)} + (-1)^{(1-\lambda)} \mathbf{n}_{-\lambda} g_{-\lambda}^{h*} A_h^-(t) e^{i(\omega_h t + \phi_h)}, \quad (4)$$

где $A_h^\pm(t)$ — коэффициент при $\exp(\mp i(\omega_h t + \phi_h))$, определяемый как

$$\begin{aligned} A_h^\pm(t) \exp(\mp i\omega_h t) &= \\ &= \frac{1}{2} \int_{-t_h}^t \cos^2(t'/\sigma_h) E_h \exp(\mp i\omega_h t') dt' \approx \\ &\approx \cos^2(t/\sigma_h) \frac{E_h}{\mp 2i\omega_h} \exp(\mp i\omega_h t), \end{aligned} \quad (5)$$

т.е. в рассматриваемом случае длинного импульса огибающая векторного потенциала практически неотличима от огибающей напряженности поля.

3. РЕШЕНИЕ СКОРОСТНЫХ УРАВНЕНИЙ (РСУ)

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

$$\hat{H} = \hat{H}_{at} + \hat{H}_{int}(t), \quad (6)$$

где \hat{H}_{at} и $\hat{H}_{int}(t)$ — атомный (невозмущенный) га-

мильтониан и гамильтониан взаимодействия с электромагнитным полем. Тогда многочастичная волновая функция электронов в атоме подчиняется уравнению Шредингера:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left(\hat{H}_{at} + \hat{H}_{int}(t) \right) \Psi(\mathbf{r}, t). \quad (7)$$

В электрическом дипольном приближении Гамильтониан взаимодействия имеет вид [44]

$$\hat{H}_{int}(t) = \frac{1}{c} A(t) \mathbf{p}. \quad (8)$$

Разложим $\Psi(\mathbf{r}, t)$ по собственным функциям $\phi_{n(\epsilon)}(\mathbf{r})$ невозмущенного гамильтониана \hat{H}_{at} :

$$\hat{H}_{at} \phi_{n,\epsilon}(\mathbf{r}) = \epsilon_{n(\epsilon)} \phi_{n(\epsilon)}(\mathbf{r}), \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \Psi(\mathbf{r}, t) &= \sum_n a_n(t) \phi_n(\mathbf{r}) e^{-i\epsilon_n t} + \\ &+ \int d\epsilon_\epsilon a_\epsilon(t) \phi_\epsilon(\mathbf{r}) e^{-i\epsilon_\epsilon t}. \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь индекс $n(\epsilon)$ обозначает полный набор квантовых чисел, необходимых для описания состояний дискретного и непрерывного спектров: угловые моменты в соответствующей схеме связи, их проекции и энергию состояния. Далее для краткости, если специально не оговорено иное, один индекс будет использоваться для обозначения состояний как дискретного, так и непрерывного спектра.

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

$$\frac{da_f(t)}{dt} = -i \sum_i \int_i e^{i(\epsilon_f - \epsilon_i)t} \langle \phi_f | \hat{H}_{int}(t) | \phi_i \rangle a_i(t). \quad (11)$$

Мы используем матричные элементы перехода в форме скорости

$$\begin{aligned} \langle \phi_f | \hat{H}_{int}(t) | \phi_i \rangle &= \frac{1}{c} \langle \phi_f | A(t) \mathbf{p} | \phi_i \rangle = \\ &= \sum_{h,\lambda^h} (g_\lambda^h A_h^+(t) e^{-i\omega_h t} + g_{-\lambda}^{h*} A_h^-(t) e^{i\omega_h t}) \times \\ &\times \frac{(J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f)}{\hat{J}_i} \langle \phi_n || \mathbf{p} || \phi_i \rangle, \end{aligned} \quad (12)$$

где $\langle \phi_f || \mathbf{p} || \phi_i \rangle$ — приведенный матричный элемент перехода, $(J_i M_i, 1\lambda | J_f M_f)$ — коэффициент Клебша–Гордана, $\hat{J} = \sqrt{2J+1}$.

Система уравнений (11) решалась численно с использованием приведенных матричных элементов, полученных методами, описанными в разд. 5.

Для описания состояний непрерывного спектра в (11) применялся метод дискретизации континуума,

в котором интегрирование заменяется суммированием,

$$\int a(\epsilon) d\epsilon \rightarrow \sum_i a(\epsilon_i) d\epsilon, \quad (13)$$

а возникающий при суммировании множитель $d\epsilon$ включается в коэффициенты разложения и матричные элементы:

$$a_\epsilon \sqrt{d\epsilon} \rightarrow a_{\epsilon_i}, \quad (14)$$

$$\langle \phi_n | \hat{H}_{int}(t) | \phi_\epsilon \rangle \sqrt{d\epsilon} \rightarrow \langle \phi_n | \hat{H}_{int}(t) | \phi_{\epsilon_i} \rangle, \quad (15)$$

$$\langle \phi_\epsilon | \hat{H}_{int}(t) | \phi_{\epsilon'} \rangle d\epsilon \rightarrow \langle \phi_\epsilon | \hat{H}_{int}(t) | \phi_{\epsilon'} \rangle. \quad (16)$$

Тогда $|a_{\epsilon_i}|^2$ — вероятность найти электрон с энергией в окрестности $d\epsilon$ точки ϵ_i .

Код реализован и зарегистрирован авторами статьи [45]. При расчетах диапазон энергий электронов непрерывного спектра составлял (0, 0.36) ат. ед., что позволяло исследовать боковые линии до SB18. Эффект от обрезания области интегрирования в представленной части спектра составляет порядка 1%. Вычисления проводились с равномерным шагом разбиения по энергии $d\epsilon$, величины этих шагов варьировались ($d\epsilon = 0.002 \div 0.004$ ат. ед.) для исследования сходимости. В реализованной программе изначально была заложена возможность изучать произвольные поляризации излучения, поэтому состояния континуума могли иметь любые возможные при данном моменте проекции. Размерность системы дифференциальных уравнений была порядка 10 000.

4. ТЕОРИЯ ВОЗМУЩЕНИЙ (ТВ)

Формулы, представленные в этом разделе, применимы для линейно поляризованных в одном направлении гармоник в системе координат, где ось z сонаправлена с вектором поляризации.

В рамках нестационарной теории возмущений коэффициенты $a_k(t)$ в уравнении (11) раскладываются в ряд

$$a_f(t) = a_f^{(0)}(t) + a_f^{(1)}(t) + a_f^{(2)}(t) + \dots, \quad (17)$$

где $a_f^{(0)}(t) = \delta_{fi}$ — решение в отсутствие возмущения. В первом порядке ТВ в уравнении (11) остается только одно слагаемое

$$\frac{da_f^{(1)}(t)}{dt} = -ie^{i(\epsilon_f - \epsilon_i)t} \langle \phi_f | \hat{H}_{int}(t) | \phi_i \rangle. \quad (18)$$

Дополнив ТВ приближением вращающейся волны, т. е. оставив только близкое к резонансу первое сла-

гаемое в (12), можно записать формальное решение уравнения (18) в виде

$$a_f^{(1)}(t) = -i \frac{1}{\sqrt{3}} \langle \phi_f | \mathbf{p} | \phi_i \rangle \times \\ \times \int_{-t_N}^{t_N} \sum_N A_N(t) e^{-i(\omega_N t + \phi_N)} e^{i(\epsilon_f - \epsilon_i)t} dt. \quad (19)$$

В первом порядке ТВ есть только однофотонные переходы под действием ВУФ-излучения, поэтому в фотоэлектронном спектре наблюдаются только основные линии (МЛ) при энергиях электронов $\epsilon_f = N\omega_{ir} - \epsilon_i$ (ϵ_i — энергия атома в основном состоянии), а какие-либо осцилляции отсутствуют.

Во втором порядке ТВ присутствуют двухфотонные переходы через дискретные возбужденные состояния и состояния непрерывного спектра, связанные со взаимодействием системы с ИК-полем. Формально решение (19) является начальным условием для (18), и для $a_f^{(2)}(t)$ имеем

$$\frac{da_f^{(2)}(t)}{dt} = -i \sum_k e^{i(\epsilon_f - \epsilon_n)t} \langle \phi_k | \hat{H}_{int}(t) | \phi_n \rangle a_n^{(1)}(t), \quad (20)$$

$$a_f^{(2)}(t) = \frac{(-i)^2}{\sqrt{3}J} (10, 10 | J0) \langle \phi_f | \mathbf{p} | \phi_n \rangle \langle \phi_n | \mathbf{p} | \phi_i \rangle \times \\ \times \int_{-t_{ir}}^{t_{ir}} A_{\omega_{ir}}^\pm(t) e^{\pm i(\omega_{ir}t + \phi_{ir})} e^{i(\epsilon - \epsilon_n)t} \times \\ \times \int_{-t_N}^{t \leq t_N} \sum_N A_N(t') e^{-i(\omega_N t' + \phi_N)} e^{i(\epsilon_n - \epsilon_i)t'} dt' dt. \quad (21)$$

Здесь знак \pm отвечает за удержание значимого члена в разложении несущей $\cos(\omega_{ir}t + \phi_{ir})$ при расчете переходов с поглощением ($-$) и испусканием ($+$) фотона. В дальнейшем будем обозначать первый канал как $(N) + 1$, а второй — как $(N) - 1$, где число в скобках — номер ВУФ-гармоники, а знак определяет поглощение или испускание ИК-фотона. Амплитуда « $(N) + 1$ » зависит от фазы ИК-поля как $\exp(-i\phi_{ir})$, а амплитуда « $(N + 2) - 1$ », приводящая к состояниям той же энергии, — как $\exp(i\phi_{ir})$. Их интерференция приводит к тому, что величина SB осциллирует на удвоенной частоте ω_{ir} .

Так как в ТВ вероятность обнаружить фотоэлектрон в основной фотолинии и в боковых полосах описывается квадратом суммы переходов с участием нечетного и четного числа фотонов n , соответственно, второй порядок теории возмущений не влияет на основные линии МЛ.

Таблица 1. Нижние дипольно-разрешенные возбужденные состояния атома неона, их энергия, приведенный матричный элемент возбуждения из основного состояния (RME) и лидирующие конфигурации

Состояние	E , эВ	RME	Лидирующие конфигурации
$2p^5(2P_{3/2})3s[\frac{3}{2}]$	16.67	-0.25	$-0.92 2p^53s^3P\rangle - 0.39 2p^53s^1P\rangle$
$2p^5(2P_{1/2})3s[\frac{1}{2}]$	16.85	0.60	$-0.38 2p^53s^3P\rangle + 0.92 2p^53s^1P\rangle$
$2p^5(2P_{3/2})4s[\frac{3}{2}]$	19.69	-0.19	$-0.69 2p^54s^3P\rangle - 0.71 2p^54s^1P\rangle$
$2p^5(2P_{1/2})4s[\frac{1}{2}]$	19.78	-0.18	$0.71 2p^54s^3P\rangle - 0.69 2p^54s^1P\rangle$
$2p^5(2P_{3/2})3d[\frac{1}{2}]$	20.03	0.10	$0.89 2p^53d^3P\rangle - 0.43 2p^53d^1P\rangle - 0.12 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(2P_{3/2})3d[\frac{3}{2}]$	20.04	-0.17	$0.27 2p^53d^3P\rangle + 0.72 2p^53d^1P\rangle - 0.64 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(2P_{1/2})3d[\frac{3}{2}]$	20.14	0.13	$-0.36 2p^53d^3P\rangle - 0.54 2p^53d^1P\rangle - 0.76 2p^53d^3D\rangle$
$2p^5(2P_{3/2})5s[\frac{3}{2}]$	20.57	-0.12	$-0.62 2p^55s^3P\rangle - 0.78 2p^55s^1P\rangle$
$2p^5(2P_{1/2})5s[\frac{1}{2}]$	20.66	0.08	$-0.76 2p^55s^3P\rangle + 0.60 2p^55s^1P\rangle$

Второй порядок по амплитуде соответствует четвертому порядку по сечению. Следовательно, для основных линий МЛ для достижения того же уровня точности мы должны учесть

интерференцию амплитуд первого и третьего порядков.

Амплитуда в третьем порядке теории возмущений равна

$$\begin{aligned}
a_f^{(3)}(t) = & \frac{(-i)^3}{\sqrt{3}\hat{J}_{nkJ_n}} \sum_{nkJ_n} \frac{1}{\hat{J}_n} (10, 10 | J'_n 0)(10, J'_n 0 | J' 0) \langle \phi_f | \mathbf{p} | \phi_k \rangle \langle \phi_k | \mathbf{p} | \phi_n \rangle \langle \phi_n | \mathbf{p} | \phi_i \rangle \times \\
& \times \int_{-t_{ir}}^{t_{ir}} A_{\omega_{ir}}^{\pm}(t) e^{\pm i(\omega_{ir}t + \phi_{ir})} e^{i(\varepsilon_f - \varepsilon_k)t} \int_{-t_{ir}}^t A_{\omega_{ir}}^{\pm}(t') e^{\pm i(\omega_{ir}t' + \phi_{ir})} e^{i(\varepsilon_k - \varepsilon_n)t'} \times \\
& \times \int_{-t_N}^{t'' \leq t_N} \sum_N A_n(t'') e^{-i(\omega_N t'' + \phi_N)} e^{i(\varepsilon_k - \varepsilon_i)t''} dt'' dt' dt. \quad (22)
\end{aligned}$$

Амплитуды « $(N) + 1 - 1$ » и « $(N) - 1 + 1$ », очевидно, как и первый порядок ТВ, не зависят от фазы ИК-поля; амплитуды « $(N + 2) - 2$ » и « $(N - 2) + 2$ » ведут себя как $\exp(\pm 2i\phi_{ir})$. Вероятность обнаружить фотоэлектрон в основной линии МЛ

$$|a_f^{(1+3)}|^2 \approx |a_f^{(1)}|^2 + 2 \operatorname{Re} [a_f^{(1)} a_f^{(3)*}]. \quad (23)$$

Слагаемые, отвечающие за интерференцию первого « (N) » и третьего « $(N \pm 2) \mp 2$ » порядков, как и в SB, осциллируют на удвоенной частоте ИК-поля $2\omega_{ir}$.

При ионизации инертного газа ($J_i = 0$) линейно поляризованными в одном направлении гармониками для переходов, вызванных четным числом фотонов, возможны только четные полные моменты J , вызванных нечетным числом фотонов — только нечетные J .

5. СПЕКТРОСКОПИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Дипольные матричные элементы переходов между дискретными состояниями и между дискретными состояниями и состояниями континуума были получены в $J\kappa$ -схеме связи методом R -матрицы [32]. Таким образом, квантовыми числами, характеризующими состояние, были полный момент J_f ионного остова $2p^{5^2}P_{J_f}$, орбитальный момент электрона дискретной nl или непрерывной εl части спектра, промежуточное квантовое число κ — результат их векторного сложения, $\kappa = J_f + l$, и, наконец, полный момент системы $J = \kappa + 1/2$, где $1/2$ — спин электрона. Выбор $J\kappa$ -схемы связан с необходимостью аккуратного учета переходов из состояний дискретного спектра в состояния непрерывного спектра с различным полным моментом конечного иона J_f

(расщепленным на 0.1 эВ) в низкоэнергетической области спектра.

В расчетах использовалась та же спектроскопическая модель, что и в [46]: учитывались все возможные термы конфигураций $1s^2 2s^2 2p^5 ns$ ($n = 3, 4, 5, 6$), $1s^2 2s^2 2p^5 nd$ ($n = 3, 4, 5$), $1s^2 2s^2 2p^4 3s 3p$, $3p 4s$, и $1s^2 2s^1 2p^5 3s 3d$ и использовались экспериментальные энергии порогов [47].

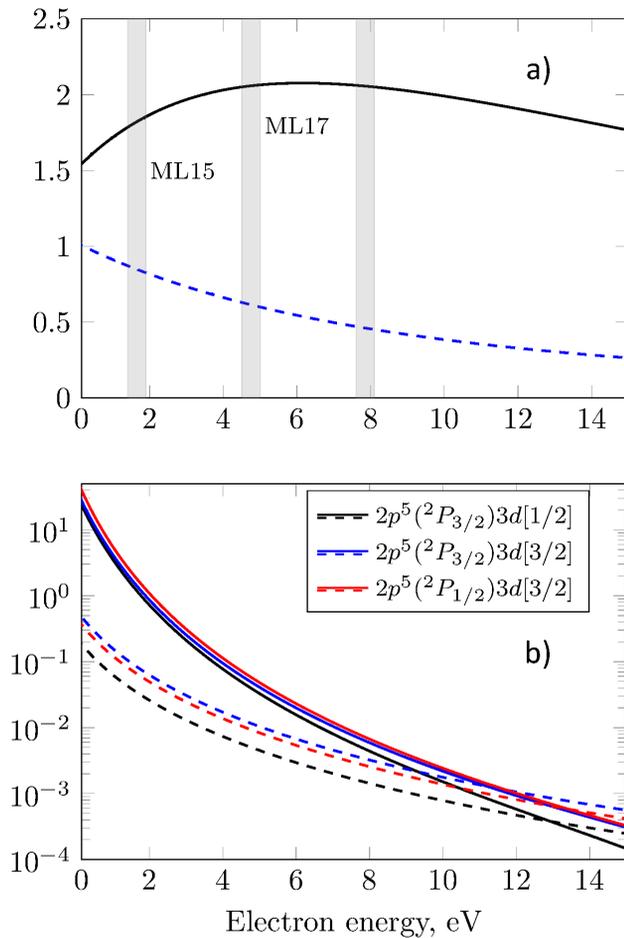


Рис. 2. *a)* Сумма квадратов приведенных матричных элементов перехода в s -волны (синяя штриховая линия) и d -волны (черная сплошная линия) при ионизации из основного состояния. Серые вертикальные полосы обозначают положение основных линий (ML19 участвует в образовании SB18, но не показана на спектрах). *b)* Сумма квадратов матричных элементов ионизации из возбужденных состояний в каналы с участием p -волны (штриховые линии) и f -волны (сплошные линии)

В табл.1 приведены дискретные состояния, включенные в расчеты, их энергии, приведенные дипольные матричные элементы перехода из основного состояния и лидирующие конфигурации. По коэффициентам смешивания видно, что, за исключением нижней конфигурации с возбуждением

$3s$ -орбитали, остальные состояния описываются скорее в Jk -схеме связи. Энергии возбуждения дискретных состояний таковы, что для нашей цели — исследования роли дискретных состояний — разумно выбрать область $3d$ -состояний, так как, в отличие от $3s$ и $4s$, они могут быть ионизованы одним фотоном 800 нм и эффективно возбуждены его гармоникой $N = 13$, и при этом неплохо отделены по энергии от ближайших состояний $4s$ и $5s$.

На рис. 2 представлены суммы квадратов модулей матричных элементов переходов из основного состояния в каналы с участием s - и d -волны (*a*) и из состояний $2p^5 3d$ в каналы с участием p - и f -волны (*b*). В то время как для переходов из основного состояния оба канала сопоставимы по величине, для переходов из возбужденных состояний каналы с f -волной превосходят каналы с участием p -волны на два порядка.

Вычисление матричных элементов перехода между состояниями непрерывного спектра (континуум–континуум) проводилось в предположении, что для этих состояний можно пренебречь любыми корреляциями фотоэлектрона и электронов остаточного иона. Сначала с помощью программного пакета MCHF [48] была найдена самосогласованная волновая функция иона $2p^5 2P$, а затем — волновые функции электронов в поле этого иона P_{el} . Затем методом, описанным в работах [33, 34], вычислялись радиальные матричные элементы континуум–континуум $R_{el, \epsilon' l'}$. Необходимо отметить, что матричные элементы связи состояний непрерывного спектра $R_{el, \epsilon' l'}$ имеют полюс при $\epsilon \rightarrow \epsilon'$, который в подходе [33] выделяется в явном виде как

$$\delta(\epsilon_i - \epsilon_j) \sqrt{2\epsilon} \text{sign}(l_i - l_j) \cos(\sigma_{l_i} + \delta_{l_i} - \sigma_{l_j} - \delta_{l_j}). \quad (24)$$

Здесь δ_l и σ_l — кулоновская фаза и фаза рассеяния.

Связь $R_{el, \epsilon' l'}$ и приведенных матричных элементов в Jk -схеме связи можно получить, используя квантовую теорию углового момента [49]:

$$\begin{aligned} \langle \epsilon', (J_f l') k', \frac{1}{2}; J' || \hat{D} || (J_f l) k, \epsilon, \frac{1}{2}; J \rangle = \\ = \langle \epsilon', l' || \hat{D} || \epsilon, l \rangle \times \\ \times (-1)^{J_f + l - J - 1/2} \hat{k} \hat{k}' \hat{j} \hat{j}' \begin{Bmatrix} J_f & l & k \\ 1 & k' & l' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} \frac{1}{2} & J & k \\ 1 & k' & J' \end{Bmatrix}, \quad (25) \end{aligned}$$

$$\langle \epsilon', l' || \hat{D} || \epsilon, l \rangle = \hat{l}(l_0, 10 | l_0) R_{el, \epsilon' l'}. \quad (26)$$

Конструкция в фигурных скобках — это $6j$ -символ Вигнера.

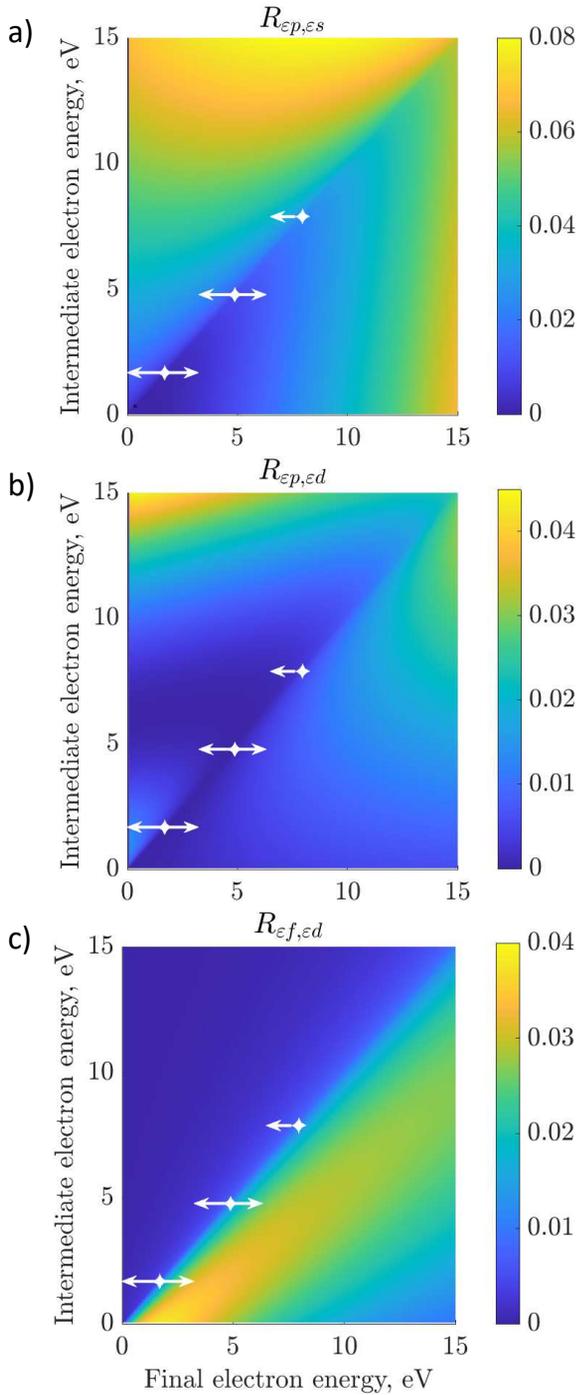


Рис. 3. Квадраты радиальной части матричных элементов переходов между состояниями континуума: (a) из *s*-волны в *p*-волну; (b) из *d* в *p*; (c) из *d* в *f*. Точками отмечены энергии основных линий, а стрелочками влево (вправо) — боковые частоты, соответствующие переходам с испусканием (поглощением) фотона

На рис. 3 приведены квадраты радиальных частей (26), точками отмечены энергии основных линий, а стрелочками — энергии боковых линий, т. е. части, дающие максимальный вклад за счет времен-

ного интеграла (19). Переходы в *p*-волну с поглощением и испусканием фотона сопоставимы по величине и в области низких энергий (до 5 эВ) невелики. Переходы из *d*-волны в *f*-волну с точностью до двух-трех процентов совпадают с формулой Гордона [50, 51] и существенно асимметричны: идут в основном с поглощением фотона и дают определяющий вклад в низкоэнергетической части спектра.

6. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для расчетов мы выбрали параметры поля в соответствии с реализуемыми сейчас на установках ННГ; поле включает в себя нечетные гармоники с 11 по 19 с напряженностью $E_N = 10^{-4}$ ат. ед. и длительностью $\Gamma_N = 10$ фс, и инфракрасное поле с напряженностью в диапазоне $E_{ir} = (2.5-10) \cdot 10^{-3}$ ат. ед. и в два раза большей длительностью $\Gamma_{ir} = 20$ фс. Фазы гармоник являются изменяемыми параметрами, и здесь мы положили их нулевыми. В этой работе мы исследуем окрестность *3d*-резонанса и будем изменять несущую частоту ω_{ir} . Разумный диапазон перестройки длины волны ИК-гармоники: 798, 800, 802, 804 и 806 нм, этому соответствуют частоты ω_{ir} : 1.5537, 1.5498, 1.5459, 1.5421, 1.5383 эВ, и соответственно частоты 13-й гармоники $13\omega_{ir}$: 20.20, 20.15, 20.10, 20.05, 20.00 эВ. Подчеркнем, что изменение частоты ИК-поля автоматически означает изменение частоты всех гармоник, так как это поле является для них затравочным.

На рис. 4a представлены результаты расчетов при длине волны затравочного поля 800 нм по теории возмущений и методом решения скоростных уравнений. Пики при 1.8 и 4.8 эВ — это основные линии, результат ионизации 15-й и 17-й гармониками (ML15, ML17); пики при 0.2, 3.2 и 6.2 эВ — это боковые частоты (SB14, SB16, SB18). Подчеркнем, что, хотя в расчетах учитывалась 19-я гармоника, спектр обрзан при энергии, соответствующей боковой линии SB18, так как диапазон релевантных данных на $2\omega_{ir}$ меньше, чем диапазон энергий, учитываемых в расчетах. Положения пиков, полученных РСУ, отличаются для различных интенсивностей ИК-поля из-за динамического штарковского сдвига и приближается к положениям по ТВ для меньшей напряженности $E_{ir} = 2.5 \cdot 10^{-3}$ ат. ед. Вероятности генерации боковых линий SB16 и SB18 для напряженностей $E_{ir} = 2.5 \cdot 10^{-3}, 5 \cdot 10^{-3}, 10^{-2}$ ат. ед. относятся как 1 : 4 : 16, т. е. для них сохраняется пертурбативный режим. Для частоты SB14, где сильную роль играют переходы через дискретные состояния, пер-

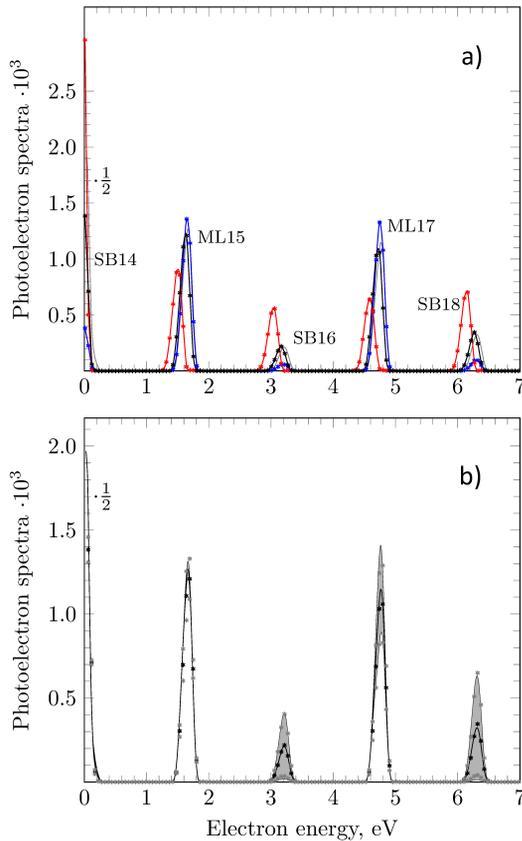


Рис. 4. *a)* Усредненный по фазе спектр фотоэлектронов при длине волны затравочного поля 800 нм, полученный PCY для напряженности ИК-поля $E_{ir} = 2.5 \cdot 10^{-3}$ ат.ед. (синяя линия), $5 \cdot 10^{-3}$ ат.ед. (черная), 10^{-2} ат.ед. (красная). Тонкая серая линия — результат ТВ для $E_{ir} = 5 \cdot 10^{-3}$ ат.ед. *b)* Усредненный спектр (черная линия — ТВ, черные точки — PCY), максимальная и минимальная величины фотоэлектронных пиков (серая линия — ТВ, серые точки — PCY) для напряженности $E_{ir} = 5 \cdot 10^{-3}$ ат.ед. Разница между максимальной и минимальной величинами фотоэлектронных пиков в ТВ окрашена серым цветом. Для удобства сравнения результаты PCY здесь и далее сдвинуты по энергии к положениям по ТВ

турбативный режим нарушается.

На рис. 4*b* представлены результаты расчетов усредненного спектра и максимальной и минимальной величин фотоэлектронных пиков для $E_{ir} = 5 \cdot 10^{-3}$ ат.ед. Для удобства сравнения здесь и далее результаты, полученные PCY, сдвинуты по энергии к положениям по ТВ. Как спектры, так и амплитуда осцилляций, за исключением ближайших к порогу SB14 и ML15 линий, полученные обоими методами, совпадают. Разница в первых двух является результатом эффектов высшего порядка и будет предметом дальнейшего исследования.

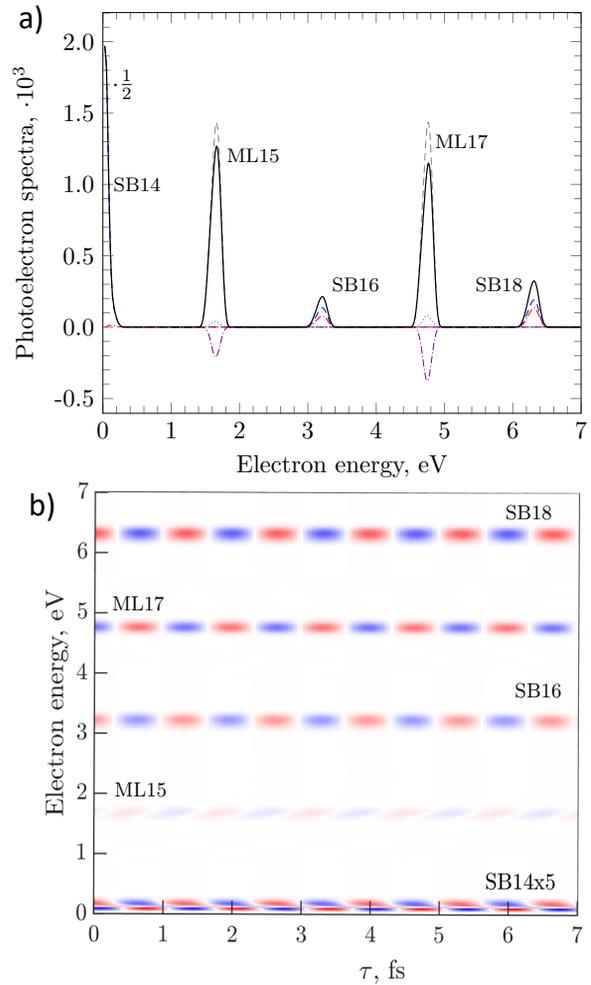


Рис. 5. *a)* Усредненный по фазе ИК-поля спектр при 800 нм и $E_{ir} = 5 \cdot 10^{-3}$ ат.ед., полученный по теории возмущений. Жирная черная линия обозначает итоговый спектр; серая штриховая — первый порядок ТВ; красная штрихпунктирная — второй порядок ТВ, происходящий с испусканием ИК-фотона; синяя штриховая — второй порядок ТВ с поглощением ИК-фотона; сиреневая штрихпунктирная — вклад интерференции первого и третьего порядков; голубыми точками отмечен вклад от третьего порядка ТВ. *b)* Осцилляции (RABBIT traces) как функции задержки ИК-импульса и энергии фотоэлектронов. Величина осцилляций в SB14 представлена с фактором 5

На рис. 5*a* показаны вклады отдельных переходов в итоговый спектр. Ожидаемо, что интерференция первого и третьего порядков (сиреневая штрихпунктирная линия в области ML) должна иметь тот же порядок малости, что и боковые линии SB. Величина SB растет с ростом энергии, и переходы между состояниями непрерывного спектра, происходящие с испусканием ИК-фотона (красная штрихпунктирная линия) систематически ниже, чем переходы, происходящие с поглощением ИК-фотона (синяя штриховая линия). Роль переходов из состо-

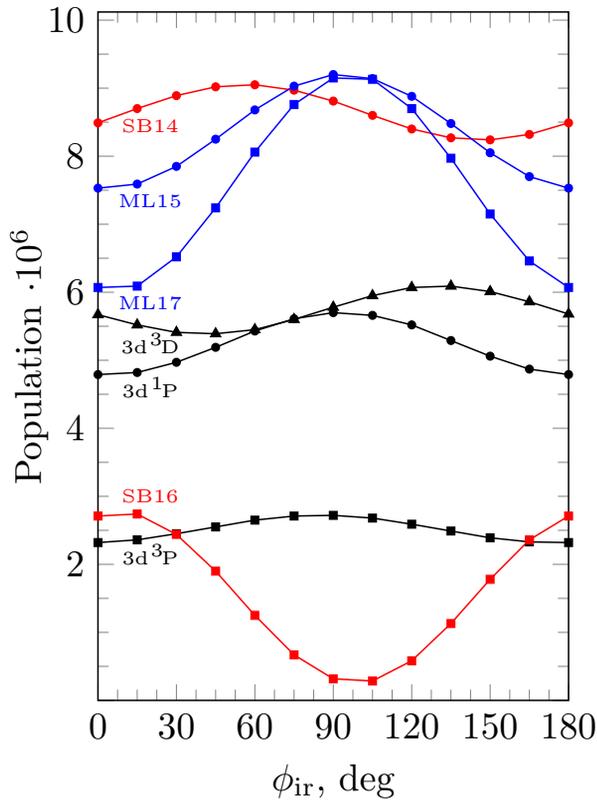


Рис. 6. Зависимости от фазы ИК-поля заселенности дискретных состояний $2p^{5/2}P_{3/2}3d[\frac{1}{2}]$, $2p^{5/2}P_{3/2}3d[\frac{3}{2}]$ и $2p^{5/2}P_{1/2}3d[\frac{3}{2}]$, обозначенных по лидирующей конфигурации как 3P , 1P и 3D соответственно, и состояний непрерывного спектра SB14, ML15, SB16, проинтегрированных по энергии (площадь соответствующего пика). Символами отмечены значения фаз, при которых проводился расчет

яний непрерывного спектра в припороговую боковую линию SB14 крайне мала. Для двухфотонных переходов, идущих с поглощением ИК-фотона, доминируют амплитуды перехода в f -волну, для идущих с испусканием — в p -волну (см. рис. 3) в соответствии с обобщением тенденции Фано (Fano's Propensity Rule) [52].

На рис. 5b показано традиционное для RABBITT-спектроскопии представление данных: двумерная зависимость величины осцилляций от задержки ИК-импульса (фазовый сдвиг) и энергии фотоэлектрона (спектр при данной величине задержки с вычетом усредненного по фазе ИК-импульса спектра). Амплитуда осцилляций растет с ростом энергии фотоэлектрона, а фазы отличаются для различных линий, причем в ML и SB практически противоположны. Поскольку для эффективной интерференции и значительных осцилляций необходим сопоставимый вклад от переходов, происходящих с поглощением $(N + 1)$ и испусканием $(N + 2) - 1$ ИК-фотонов, то ожидаемо,

что осцилляции в SB14 будут незначительны (на рис. 4b они представлены с увеличением в 5 раз).

Вероятность эмиссии электрона при каждой энергии зависят от ϕ_{ir} как $\cos(\phi_{max} - \phi_{ir})$, где ϕ_{max} — фаза, при которой величина боковой линии максимальна. Для расчетов по ТВ эта зависимость следует из (18)–(23). Для РСУ это необходимо проверить, так как высшие порядки могут давать вклады, осциллирующие в два, четыре и более раз быстрее. На рис. 6 приведены зависимости от фазы для заселенности дискретных состояний $2p^{5/2}(P_{3/2})3d[\frac{1}{2}]$, $2p^{5/2}(P_{3/2})3d[\frac{3}{2}]$, $2p^{5/2}(P_{1/2})3d[\frac{3}{2}]$ и различных линий (SB14, ML15, SB16) в непрерывном спектре, интегрированных по энергии. Видно, что при данной интенсивности ИК-поля зависимость от фазы хорошо аппроксимируется косинусом. Анализ методом наименьших квадратов показал, что аппроксимация расчетов косинусом осуществляется с относительной точностью выше, чем 10^{-2} , кроме линии SB14, где точность порядка 0.1.

Поскольку при любой фиксированной энергии зависимость от фазы ИК-поля ϕ_{ir} представляется косинусом, двумерный рис. 3b сводится к одномерному, т. е. зависимости амплитуды осцилляций и их фазы от энергии. На рис. 7 эти зависимости приведены для пяти разных длин волн затравочного ИК-поля: поскольку изменение длины волны проявляется только для нижних линий SB14 и ML15, весь спектр приведен только для энергии ИК-фотона 800 нм. Некоторый намек на дублетную структуру, особенно заметный при $\lambda = 798$ и 800 нм, является проявлением тонкого расщепления порога ионизации $2p^{5/2}P_{3/2,1/2}$ при ионизации, идущей преимущественно через верхнюю компоненту $2p^5(^2P_{1/2})3d[\frac{3}{2}]_1$; при увеличении длины волны начинают эффективно возбуждаться и компоненты $2p^5(^2P_{3/2})3d[k]_1$, которые преимущественно ионизируются на нижний порог $2p^{5/2}P_{3/2}$. Из-за совпадения величины расщепления компонент $3d$ -состояния и порога ионизации в спектре остается одна линия. ТВ систематически недооценивает переходы через континуум в нижнюю ML15 при любой энергии затравочного ИК-поля и в меньшей степени в нижнюю SB14. Величина и форма последнего, очевидно, оказывается наиболее чувствительной к небольшим изменениям частоты и является максимальной для 802 нм. В ТВ фаза осцилляций резко меняется для разных компонент резонанса, что является одним из проявлений теоремы Левинсона о связи асимптотического поведения амплитуды с числом связанных состояний [53, 54].

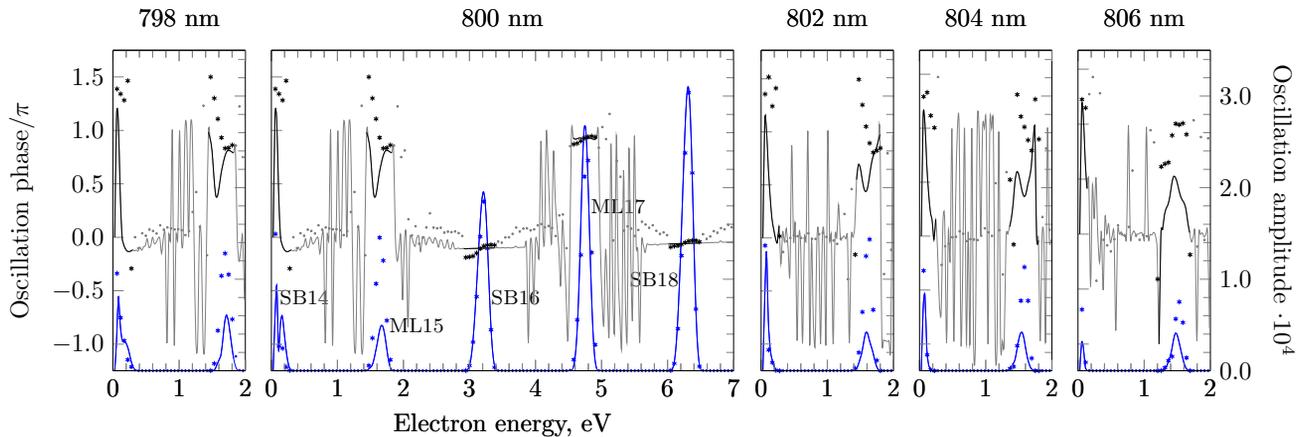


Рис. 7. Величины осцилляций (синие линии и точки) и их фазы (черные линии и точки), рассчитанные по ТВ и РСУ для $E_{ir} = 5 \cdot 10^{-3}$ ат. ед., для различных длин волн затравочного ИК-поля. Результаты ТВ представлены сплошными кривыми, результаты РСУ — точками

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлены два подхода для описания ионизации атомов комбинированным многочастотным полем ИК-лазера и его высших гармоник: основанный на нестационарной теории возмущений по третий порядок включительно и основанный на решении системы скоростных уравнений.

Проведены демонстрационные расчеты для ионизации атома неона при параметрах полей, типичных для современной RABBITT-спектроскопии. Получены спектры фотоэлектронов для различных времен задержки (фазового сдвига) ИК-поля относительно ВУФ-гармоник. Определены величины и фазы осцилляций RABBITT для энергий электронов от порога до 7 эВ.

Показано, что при современных интенсивностях полей теория возмущений применима для описания фотоэлектронных спектров в области гладкого континуума, но гораздо хуже воспроизводит поведение примыкающих к порогу основной и боковой линий.

Показано, что возбуждение дискретных состояний с последующей ионизацией — механизм, ответственный за формирование припороговой боковой линии — приводит к ее резкому отличию от остальных. Резонансный механизм обуславливает сильную зависимость припороговой линии от частоты ИК-поля, проявляющуюся как в формировании и изменении ее структуры, так и в скачкообразном изменении фазы осцилляций.

Финансирование. Работы в разд. 2–4 выполнены при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-52-12023) и Министерства науки и высшего образо-

вания Российской Федерации (проект № 0818-2020-0005) с использованием вычислительных ресурсов ЦКП «Центр данных ДВО РАН». Исследования в разд. 5 выполнены при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-42-04412).

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov et al., *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
2. А. Ф. Стержантов, М. Ю. Рябикин, В. В. Стрелков, В. Т. Платоненко, *УФН* **186**, 449 (2016).
3. F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).
4. P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger et al., *Science* **292**, 1689 (2001).
5. R. Pazourek, S. Nagele, and J. Burgdörfer, *Faraday Discuss* **163**, 353 (2013).
6. J. Vos, L. Cattaneo, S. Patchkovskii et al., *Science* **360**, 1326 (2018).
7. M. Ossiander, J. Riemensberger, S. Neppl et al., *Nature* **361**, 374 (2018).
8. G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari et al., *Science* **314**, 443 (2006).
9. E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter et al., *Science* **320**, 1614 (2008).
10. R. López-Martens, K. Varjú, P. Johnsson et al., *Phys. Rev. Lett.* **94**, 033001 (2005).

11. V. V. Strelkov, E. Mével, and E. Constant, *New J. Phys.* **10**, 083040 (2008).
12. E. Constant, V. D. Taranukhin, A. Stolow, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **56**, 3870 (1997).
13. M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann et al., *Nature* **414**, 509 (2001).
14. J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173903 (2002).
15. M. Schultze, M. Fieß, N. Karpowicz et al., *Science* **328**, 1658 (2010).
16. Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski et al., *Science* **302**, 1540 (2003).
17. K. Klünder, J. M. Dahlström, M. Gisselbrecht et al., *Phys. Rev. Lett.* **106**, 143002 (2011).
18. L. Cattaneo, J. Vos, M. Lucchini et al., *Opt. Express* **24**, 29060 (2016).
19. V. Vénier, R. Taïeb, and A. Maquet, *Phys. Rev. A* **54**, 721 (1996).
20. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, *Нелинейная ионизация атомов лазерным излучением*, Физматлит, Москва (2001).
21. M. Isinger, D. Busto, S. Mikaelsson et al., *Phil. Trans. Roy. Soc. A: Math. Phys. Eng. Sci.* **377**, 20170475 (2019).
22. J. Benda, Z. Mašín, and J. D. Gorfinkiel, *Phys. Rev. A* **105**, 053101 (2022).
23. E. Lindroth and J. M. Dahlström, *Phys. Rev. A* **96**, 013420 (2017).
24. J. Vinbladh, J. M. Dahlström, and E. Lindroth, *Phys. Rev. A* **100**, 043424 (2019).
25. P. K. Maroju, C. Grazioli, M. D. Fraia et al., *Nature* **578**, 386 (2020).
26. A. Harth, N. Douguet, K. Bartschat et al., *Phys. Rev. A* **99**, 023410 (2019).
27. A. S. Kheifets and A. W. Bray, *Phys. Rev. A* **103**, L011101 (2021).
28. D. Bharti, D. Atri-Schuller, G. Menning et al., *Phys. Rev. A* **103**, 022834 (2021).
29. A. Kheifets, *Atoms* **9**, 66 (2021).
30. J. M. Dahlström, A. L'Huillier, and J. Mauritsson, *J. Phys. B* **44**, 095602 (2011).
31. B. I. Schneider, K. R. Hamilton, and K. Bartschat, *Atoms* **10**, 26 (2022).
32. O. Zatsarinny, *Comput. Phys. Commun.* **174**, 273 (2006).
33. T. Mercouris, Y. Komninos, S. Dionissopoulou, and C. A. Nicolaides, *J. Phys. B* **29**, 13 (1996).
34. S. A. Novikov and A. N. Hopersky, *J. Phys. B* **44**, 235001 (2011).
35. M. Swoboda, T. Fordell, K. Klünder et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 103003 (2010).
36. D. M. Villeneuve, P. Hockett, M. J. J. Vrakking, and H. Niikura, *Science* **356**, 1150 (2017).
37. K. R. Hamilton, K. Bartschat, M. Moiola et al., in *MPS-2022 International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces, Book of Abstracts*, 13, Turku, Finland (2022).
38. M. Kotur, D. Guenot, Á. Jiménez-Galán et al., *Nature Comm.* **7**, 10566 (2016).
39. V. Gruson, L. Barreau, Á. Jiménez-Galan et al., *Science* **354**, 734 (2016).
40. M. A. Fareed, V. V. Strelkov, M. Singh et al., *Phys. Rev. Lett.* **121**, 023201 (2018).
41. Á. Jiménez-Galán, L. Argenti, and F. Martín, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 263001 (2014).
42. B. Ghomashi, N. Douguet, and L. Argenti, *Phys. Rev. A* **99**, 053407 (2019).
43. Д. А. Варшалович, В. К. Херсонский, Е. В. Орленко, А. Н. Москалев, *Квантовая теория углового момента и ее приложения*, т. 1, Физматлит, Москва (2017).
44. I. I. Sobelman, *Atomic Spectra and Radiative Transitions*, Springer, Berlin-Heidelberg (1992).
45. С. Н. Юдин, С. М. Бурков, А. Н. Грум-Гржимайло, М. Д. Киселев, В. И. Севериненко, *Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ*, №2021681060 от 17.12.2021 г.
46. М. М. Попова, Е. V. Gryzlova, M. D. Kiselev, and A. N. Grum-Grzhimailo, *Symmetry* **13**, 1015 (2021).

47. A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team, *NIST Atomic Spectra Database* (ver. 5.8), [Online]. Available: <https://physics.nist.gov/asd> [2022, October 3]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA (2020).
48. C. F. Fischer, T. Brage, and P. Jonsson, *Computational Atomic Structure: An MCHF Approach*, IOP Publ., Bristol (1997).
49. 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).
50. W. Gordon, *Ann. Physik* **394**, 1031 (1929).
51. А. А. Крыловецкий, Н. Л. Манаков, С. И. Мармо, *ЖЭТФ* **119**, 45 (2001) [A. A. Krylovetsky, N. L. Manakov, and S. I. Marmo, *JETP* **92**, 37 (2001)].
52. D. Busto, J. Vinbladh, S. Zhong et al., *Phys. Rev. Lett.* **123**, 133201 (2019).
53. N. Levinson, *Mat. Fys. Medd. K. Dan. Vidensk. Selsk.* **25**, 9 (1949).
54. Л. Д. Ландау и Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика: нерелятивистская теория*, Физматлит, Москва (2004).