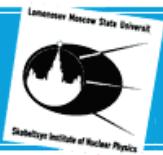


Этюды по фотоионизации

А.Н. Грум-Гржимайло,
Е.В. Грызлова



Skobeltsyn
Institute of Nuclear Physics

Lomonosov Moscow State University

NATURE COMMUNICATIONS | (2018)9:4659

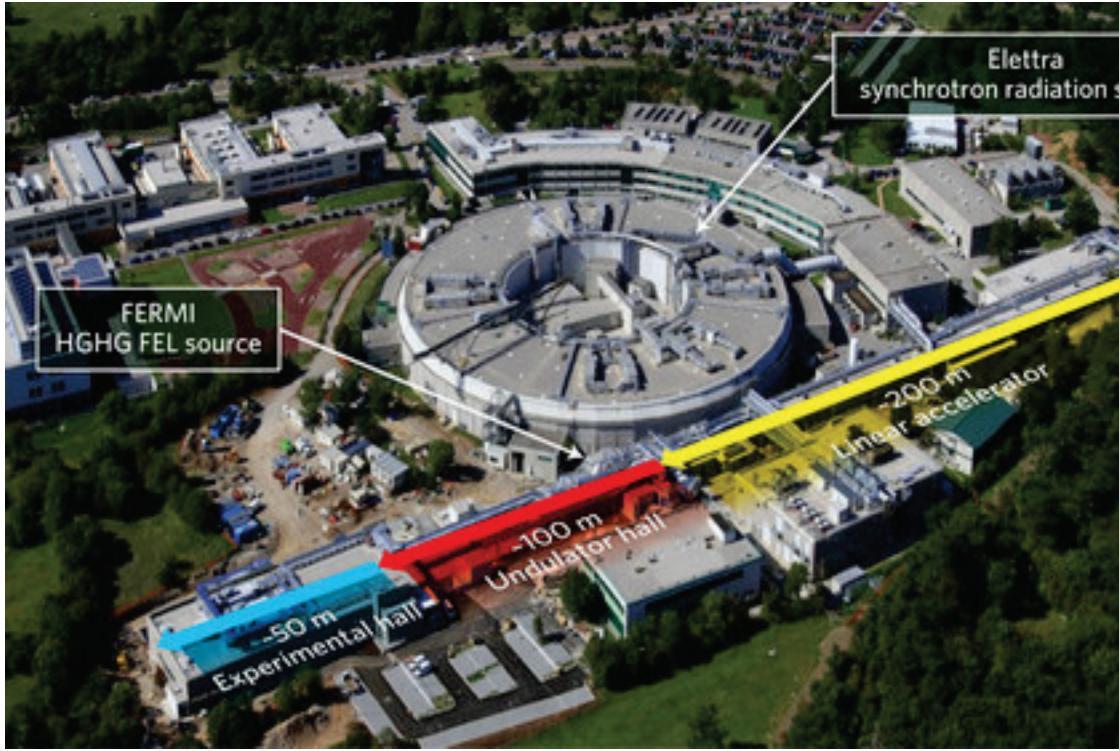
Symmetry breakdown of electron emission in extreme ultraviolet photoionization of argon

M. Ilchen^{1,2}, G. Hartmann^{2,3}, E.V. Gryzlova⁴, A. Achner¹, E. Allaria¹  ⁵, A. Beckmann⁶, M. Braune³, J. Buck^{1,3}, C. Callegari¹  ⁵, R.N. Coffee⁷, R. Cucini¹  ⁵, M. Danailov⁵, A. De Fanis¹, A. Demidovich⁵, E. Ferrari⁸, P. Finetti¹  ⁵, L. Glaser³, A. Knie¹  ², A.O. Lindahl⁹, O. Plekan⁵, N. Mahne⁵, T. Mazza¹, L. Raimondi⁵, E. Roussel⁵, F. Scholz¹  ³, J. Seltmann³, I. Shevchuk³, C. Svetina¹⁰, P. Walter^{3,7}, M. Zangrandi¹  ^{5,11}, J. Viefhaus³, A.N. Grum-Grzhimailo^{1,4} & M. Meyer¹

NATURE PHYSICS | www.nature.com/naturephysics

Complete reconstruction of bound and unbound electronic wavefunctions in two-photon double ionization

P.A. Carpeggiani  ^{1,2,11}, E.V. Gryzlova  ^{3,11}, M. Reduzzi^{1,2}, A. Dubrouil¹, D. Faccialá^{1,2}, M. Negro^{1,2}, K. Ueda⁴, S.M. Burkov⁵, F. Frassetto  ⁶, F. Stienkemeier  ⁷, Y. Ovcharenko^{8,9}, M. Meyer⁹, O. Plekan¹⁰, P. Finetti¹⁰, K.C. Prince¹⁰, C. Callegari  ¹⁰, A.N. Grum-Grzhimailo^{3*} and G. Sansone^{7*}



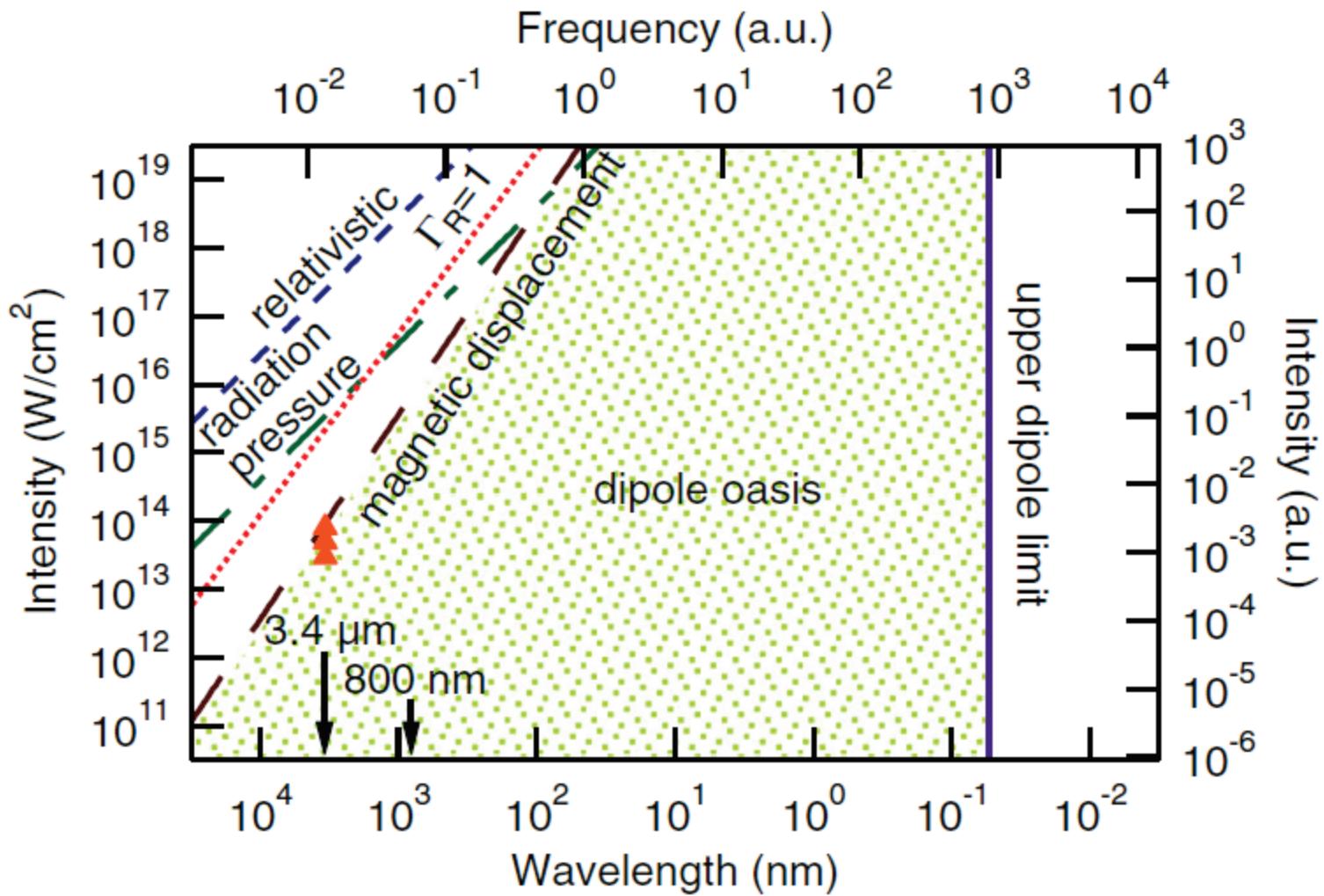
Некоторые параметры экспериментов:

Bandwidth: 0.15% FWHM, 88 ± 8 meV at 56.2 - 56.7 eV

Estimated pulse duration ~ 50 fs, $100 \mu\text{J}/\text{pulse}$, $10^{13}\text{-}10^{14}$ ph/pulse

Gaussian spatial profile of $22 \mu\text{m}$ diameter (FWHM) at focus

Averaged over spot size and duration intensity $\sim 1.2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$



Понятие о «полном эксперименте» ("Perfect" or "complete" experiment)

THE "COMPLETE EXPERIMENT" IN β DECAY

Ya. A. SMORODINSKIĬ

J. Exptl. Theoret. Phys. (U.S.S.R.) 36, 1606-1608 (May, 1959)

In an earlier paper¹ Puzikov, Ryndin, and the writer determined how many experiments are required for the reconstruction of the scattering matrix for scattering of nucleons by nucleons (the "complete experiment"). The results of that paper have been extended to the case of arbitrary spins of the colliding particles,² and also to the case of inelastic processes.³ The analogous problem can also be solved for β decay.

Ya.A. Smorodinsky (1959)

... how many experiments are required for the reconstruction of the scattering matrix for scattering of nucleons by nucleons (the "complete experiment").

Bederson, B.: The 'Perfect' scattering experiment.

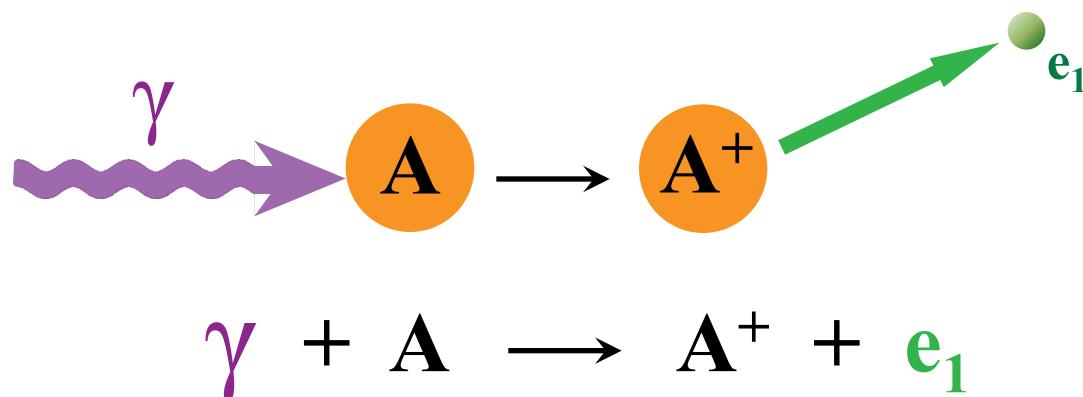
I. Comm. Atom. Mol. Phys. **1**, 41–45 (1969)

How many independent differential scattering experiments are required in order to fully determine all the parameters which are calculable from potential scattering theory?

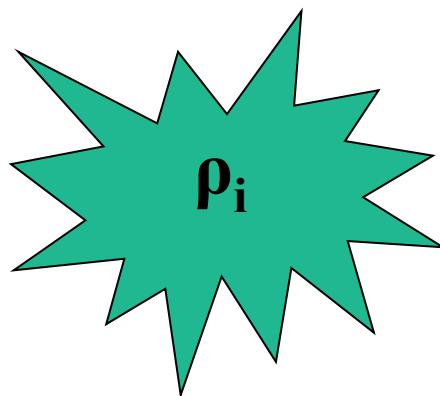
Reid, K.L.: Photoelectron angular distributions.

Annu. Rev. Phys. Chem. **54**, 397–424 (2003)

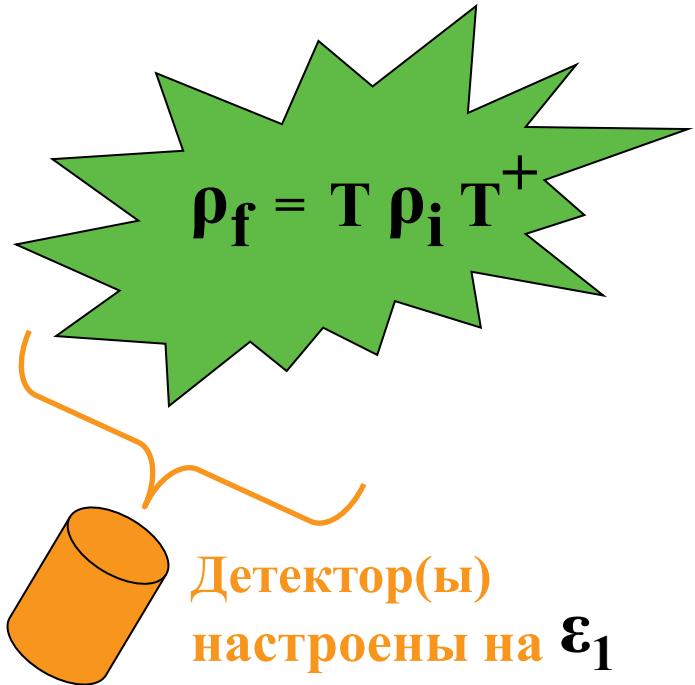
In experiments aimed at determining information about photoionization dynamics, the 'Holy Grail' is the complete experiment.



Общая идея ‘полного’ эксперимента



T



Выбираем базисные наборы для начального состояния и для состояний детектора:

$$|\xi_n\rangle, |\chi_k\rangle$$

Измеренная интенсивность

$$W_1 = \text{Tr} (\rho_f \epsilon_1)$$

$$W_1 = \sum_{nn'kk'} \langle \xi_n | \rho_i | \xi_{n'} \rangle \langle \chi_{k'} | \epsilon_1 | \chi_k \rangle T_{n \rightarrow k} T_{n' \rightarrow k'}^*$$

где $T_{n \rightarrow k} = \langle \chi_k | T | \xi_n \rangle$ - амплитуды

Общая идея ‘полного’ эксперимента

Провести полный эксперимент означает выбрать состояния детектора $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \dots$ и, возможно, изменять начальное состояние ρ_i , чтобы найти все независимые амплитуды $T_{n \rightarrow k}$ из системы уравнений, определяемой измеренными W_1, W_2, \dots

Эксперимент может быть полным только в рамках определенной теоретической модели, которая дает число независимых амплитуд, которые необходимо определить в эксперименте(ах) и рабочие выражения для наблюдаемых величин через амплитуды.

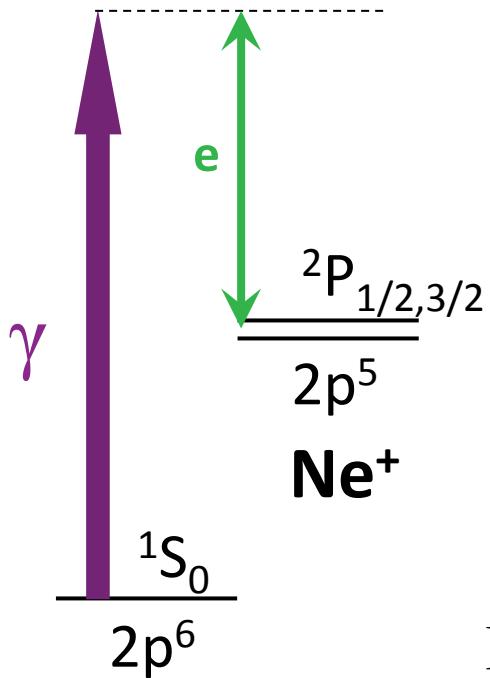
Рецепты полного эксперимента модельно зависимы!

Мотивация:

- Наиболее полная проверка теории
- Нахождение любой наблюдаемой величины

Пример: $h\nu + Ne(2p^6 1S_0) \rightarrow Ne^+(2p^5 2P_{1/2}) + e^-(\varepsilon s_{1/2}, \varepsilon d_{3/2})$

$h\nu + Ne(2p^6 1S_0) \rightarrow Ne^+(2p^5 2P_{3/2}) + e^-(\varepsilon s_{1/2}, \varepsilon d_{3/2}, \varepsilon d_{5/2})$



Дипольное приближение,
нерелятивистское приближение
(LS-связь): две амплитуды

$h\nu + Ne(2p^6 1S_0) \rightarrow Ne^+(2p^5 2P) + e^-(\varepsilon s, \varepsilon d)$

Трехпараметрическая модель
Купера-Зара (Cooper-Zare)

Приведенные амплитуды:

Ne

$$D_S = |d_S| \exp(i\varphi_S) \quad \varphi = \varphi_s - \varphi_d$$
$$D_d = |d_d| \exp(i\varphi_d)$$

Откуда получить приведенные амплитуды?

Пути к полному эксперименту по атомной фотоионизации:

- Угловые распределения вылетающих электронов («фотоэлектронов»)
- Спиновая поляризация фотоэлектронов
- Фотоионизация поляризованных атомов
- Поляризация остаточных ионов:
 - (а) поляризация или угловое распределение вторичной флуоресценции
 - (б) угловое распределение автоионизационных (Оже) электронов
- Измерения продуктов фотоионизации на совпадения.

Пример: $h\nu + Ne(2p^6 \ ^1S_0) \rightarrow Ne^+(2p^5 \ ^2P) + e^- (\varepsilon s, \varepsilon d)$

$$D_s = |d_s| \exp(i\varphi_s)$$

$$\varphi = \varphi_s - \varphi_d$$

$$D_d = |d_d| \exp(i\varphi_d)$$

Сечение фотоионизации:

$$\sigma = 4\pi^2 a_0^2 \alpha \omega \frac{2}{3} (|d_s|^2 + 2|d_d|^2)$$

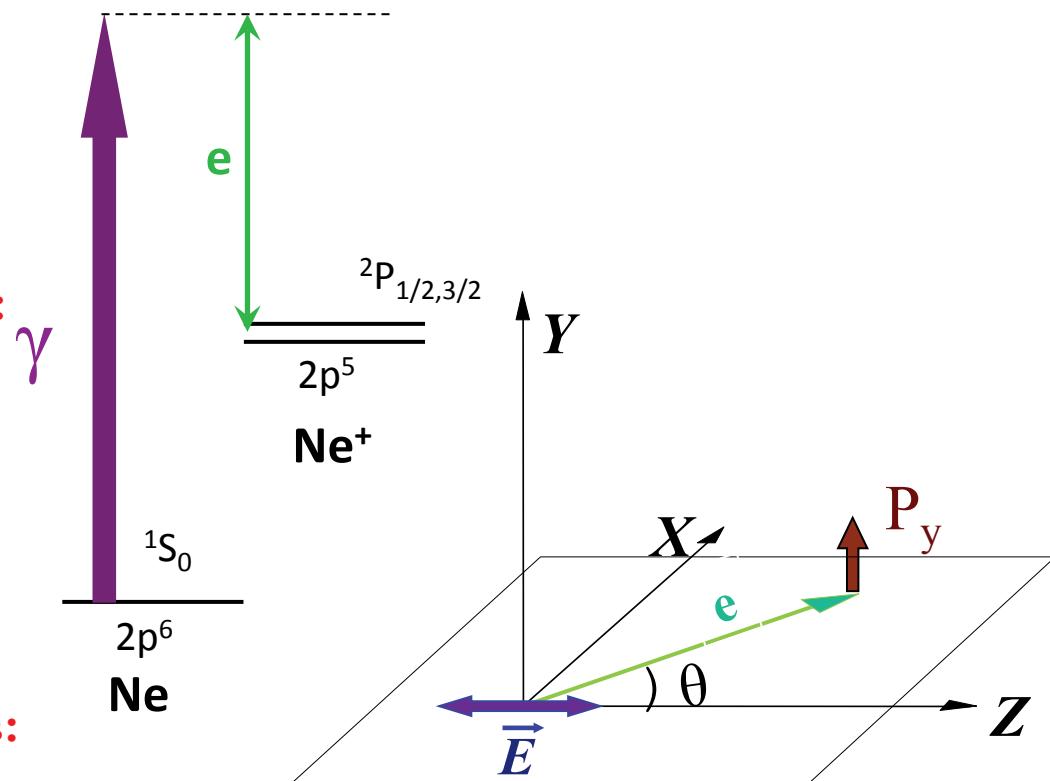
**Угловое распределение электронов
(линейно поляризованные фотоны):**

$$W(\theta) = \frac{W_0}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos \theta)]$$

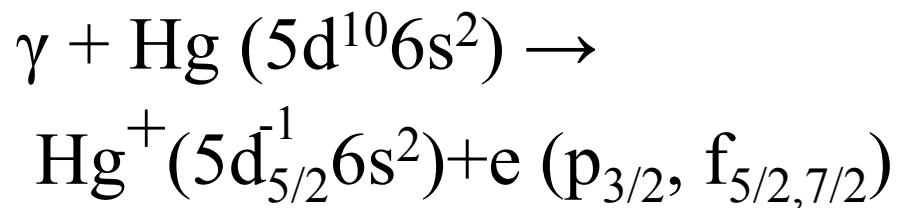
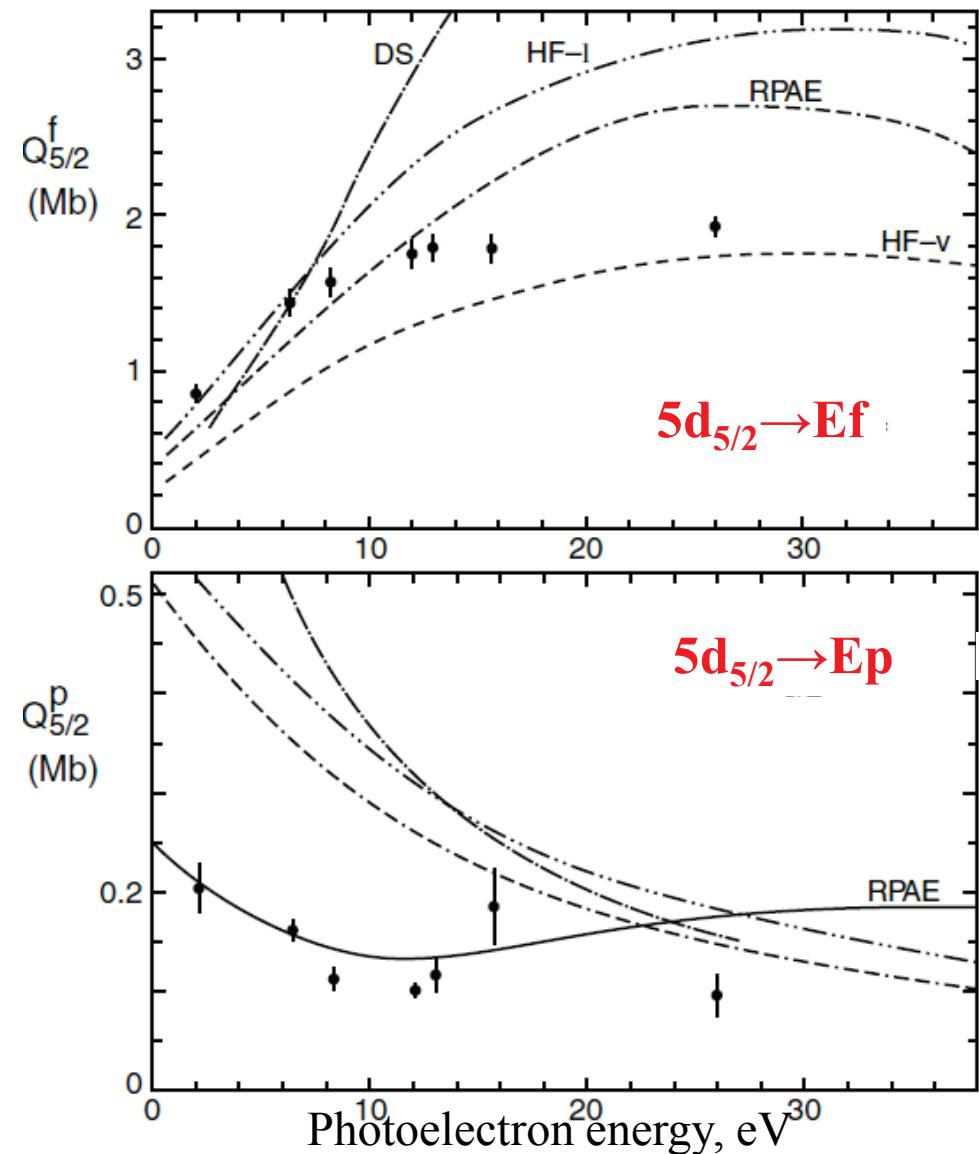
$$\beta = \frac{2|d_d|^2 - 4|d_s||d_d| \cos \varphi}{|d_s|^2 + 2|d_d|^2}$$

Спиновая поляризация электронов:

$$P_{y,1/2} = -2P_{y,3/2} = \frac{6|d_s||d_d| \sin \varphi}{2|d_s|^2 + 5|d_d|^2 - 2|d_s||d_d| \cos \varphi} \sin 2\theta$$

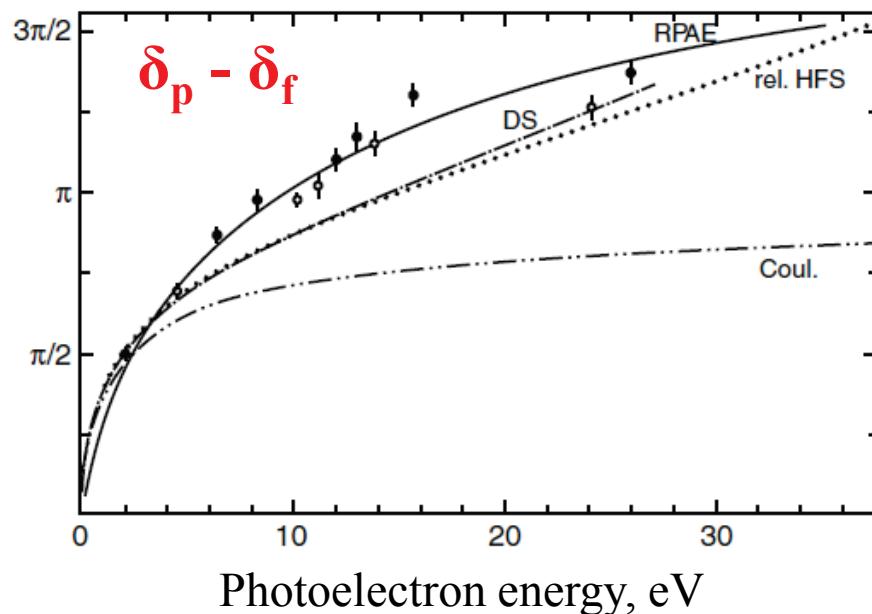


Полный эксперимент на Hg

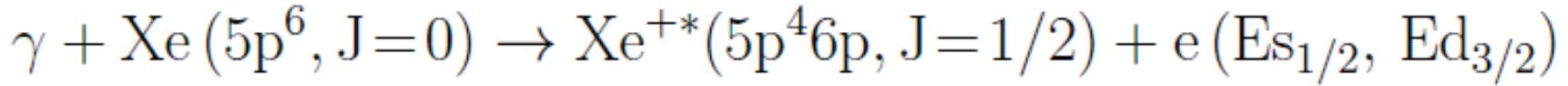


Эксперименты:

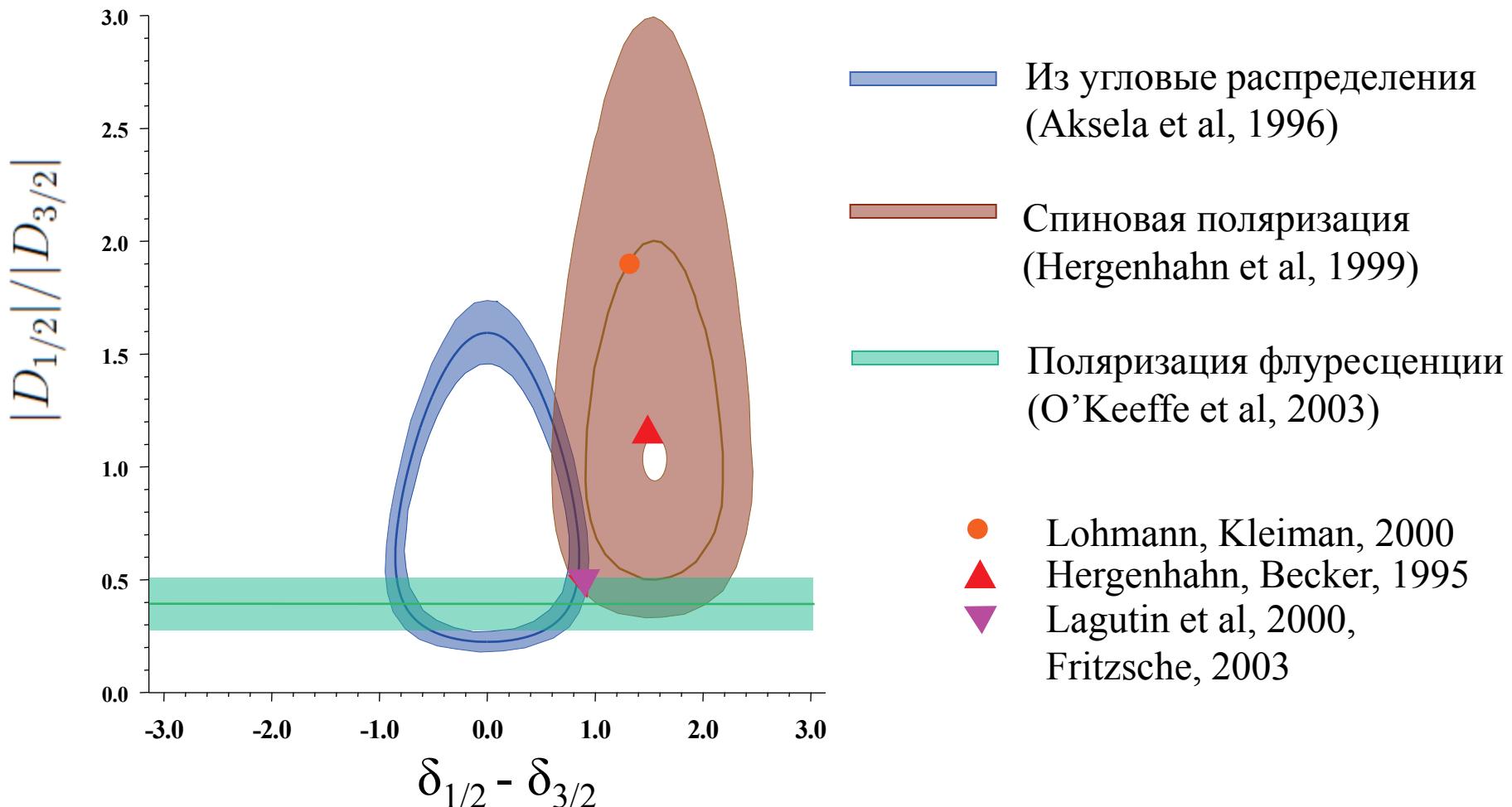
Интегральные сечения Cairns et al. 1970; Dehmer, Berkowitz 1974; брэнчинг ионизации на состояния иона с $J_f = 5/2$ и $3/2$ (Shannon, Codling 1978); параметры асимметрии (Schönhense 1981); спиновая поляризация (Schönhense 1982)



Фотоионизация с возбуждением



Две амплитуды: $D_{1/2} = |D_{1/2}| \exp \delta_{1/2}$ $D_{3/2} = |D_{3/2}| \exp \delta_{3/2}$



Hans Kleinpoppen
Bernd Lohmann
Alexei N. Grum-Grzhimailo

Perfect/Complete Scattering Experiments

Probing Quantum Mechanics on Atomic
and Molecular Collisions
and Coincidences

Complete reconstruction of bound and unbound electronic wavefunctions in two-photon double ionization

P. A. Carpeggiani^{ID 1,2,11}, E. V. Gryzlova^{ID 3,11}, M. Reduzzi^{1,2}, A. Dubrouil¹, D. Faccialá^{1,2}, M. Negro^{1,2}, K. Ueda⁴, S. M. Burkov⁵, F. Frassetto^{ID 6}, F. Stienkemeier^{ID 7}, Y. Ovcharenko^{8,9}, M. Meyer⁹, O. Plekan¹⁰, P. Finetti¹⁰, K. C. Prince¹⁰, C. Callegari^{ID 10}, A. N. Grum-Grzhimailo^{3*} and G. Sansone^{7*}

¹Dipartimento di Fisica, Politecnico di Milano, Milan, Italy.

²IFN-CNR Politecnico, Milan, Italy.

³Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia.

⁴Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Sendai, Japan.

⁵Pacific National University, Khabarovsk, Russia.

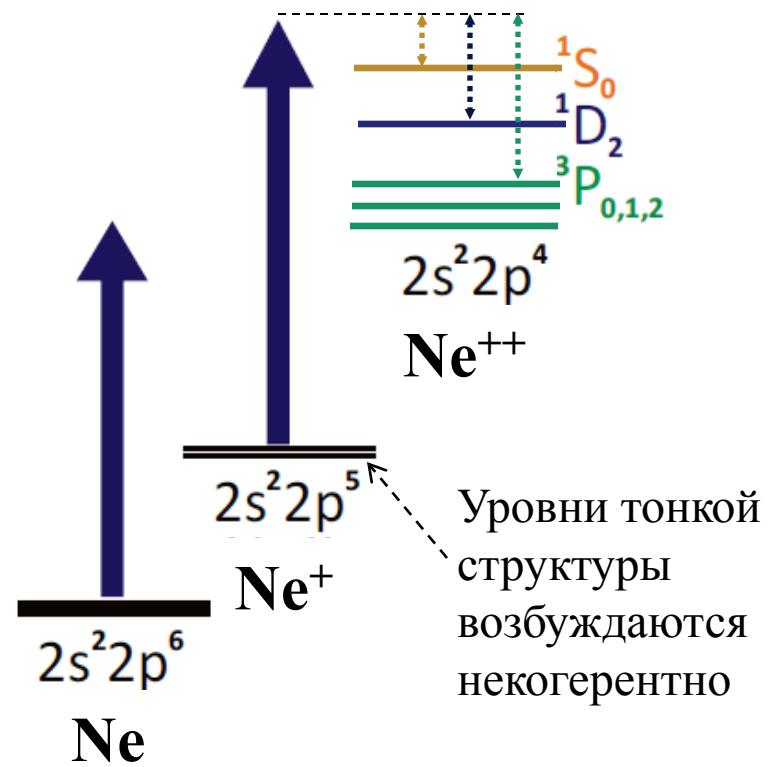
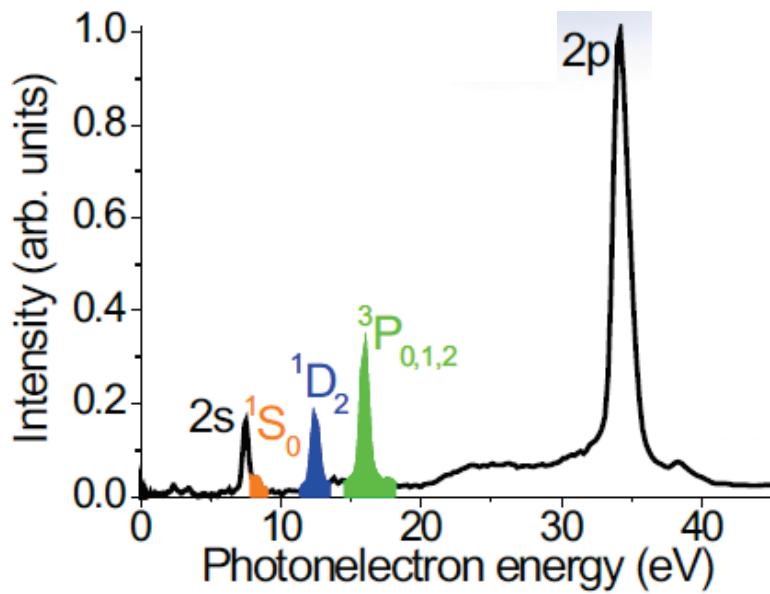
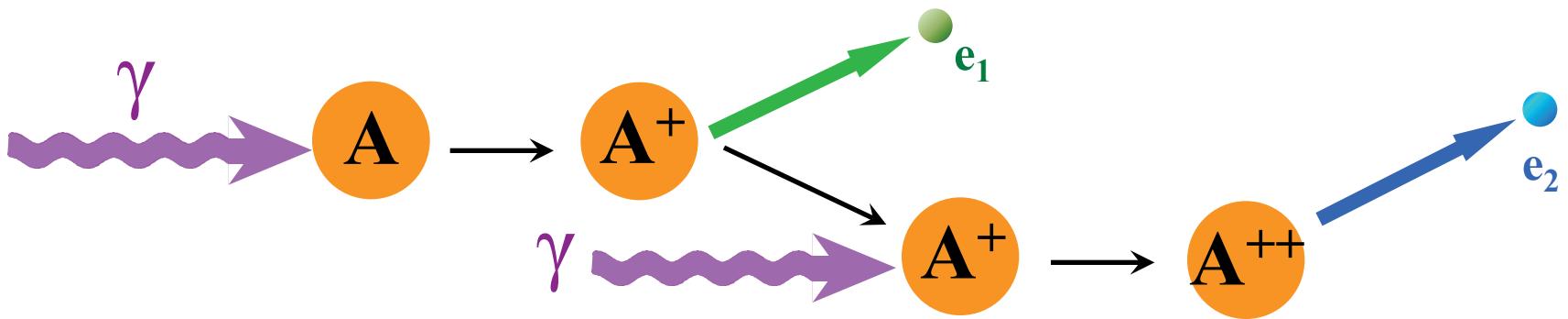
⁶IFN-CNR, Padua, Italy.

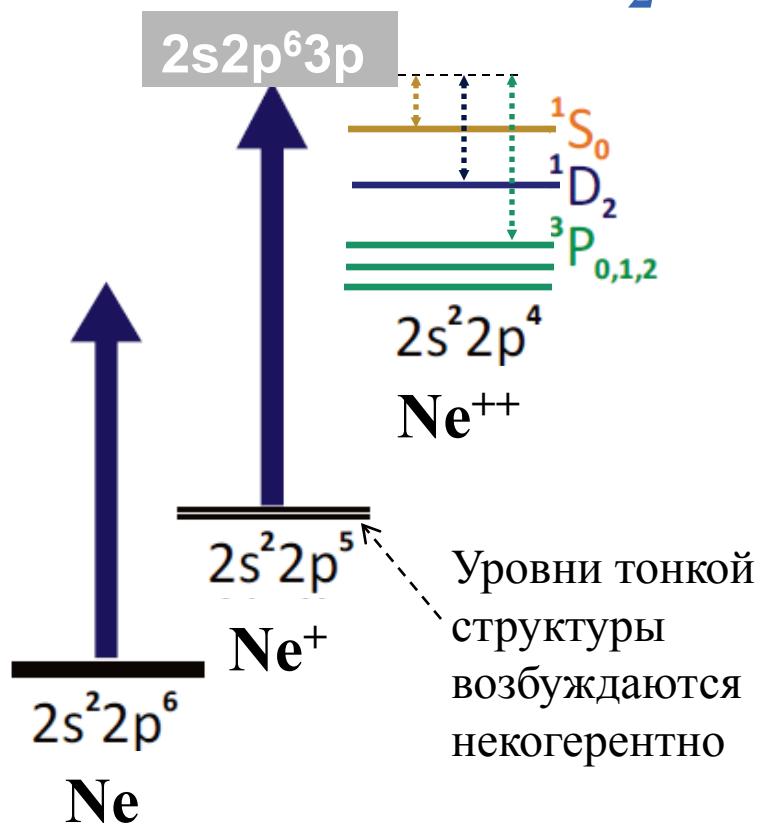
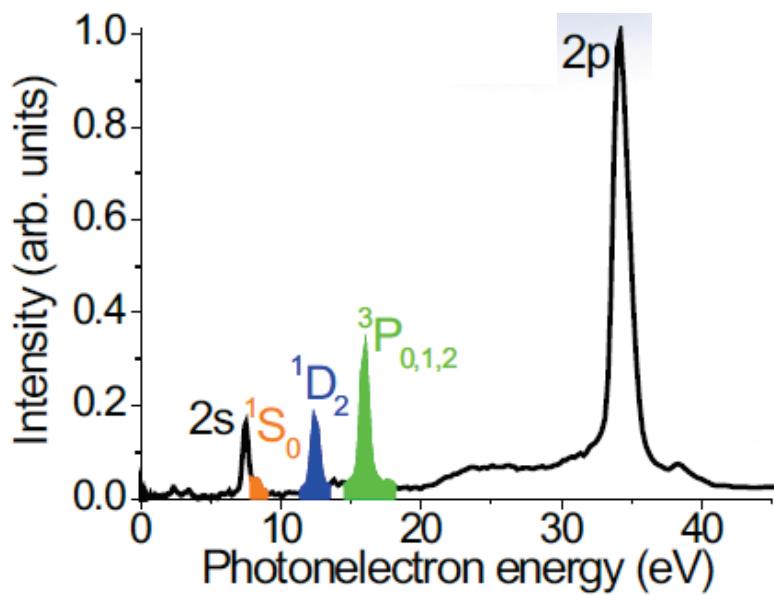
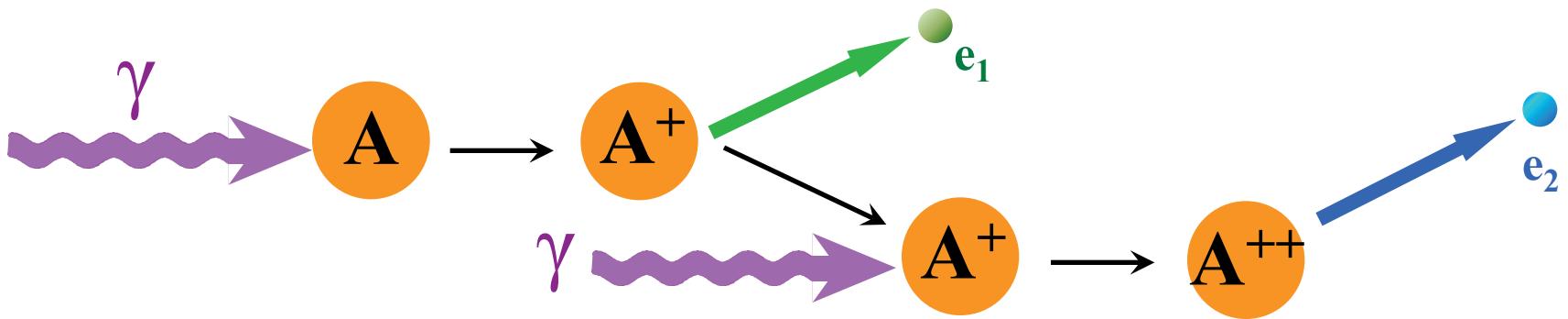
⁷Physikalisches Institut, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Freiburg, Germany.

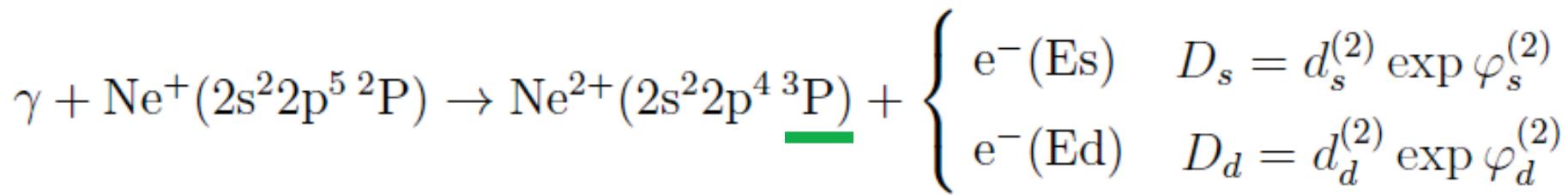
⁸Institut für Optik und Atomare Physik, TU Berlin, Berlin, Germany.

⁹European XFEL, Schenefeld, Germany.

¹⁰Elettra-Sincrotrone Trieste, Basovizza, Trieste, Italy.

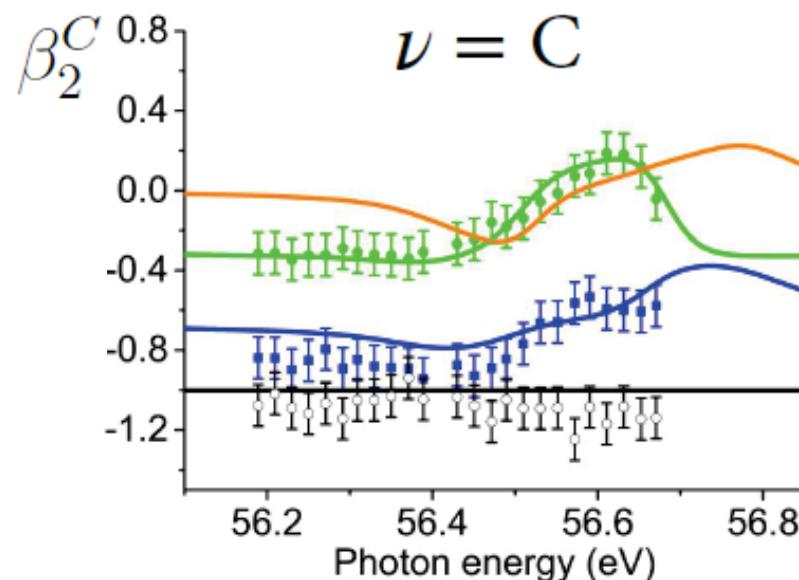
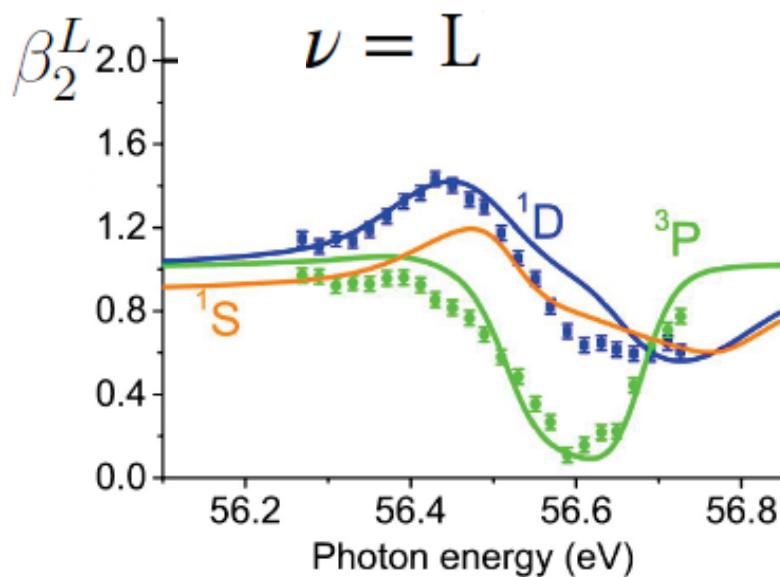






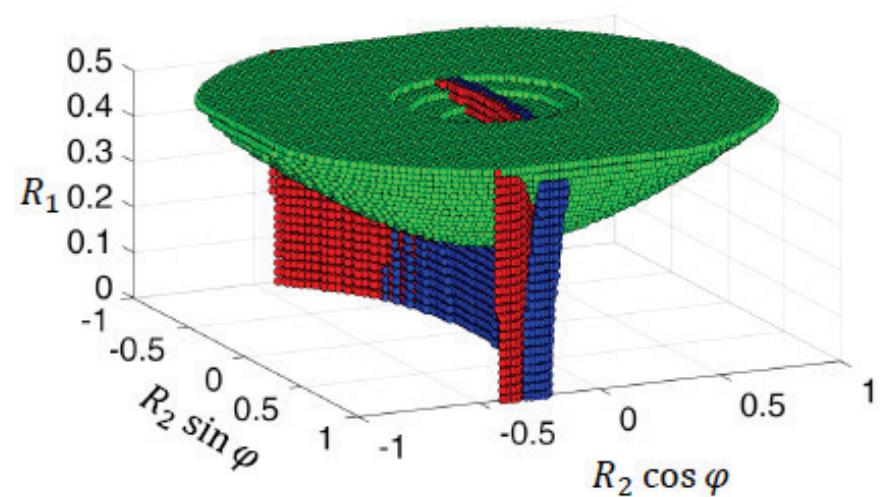
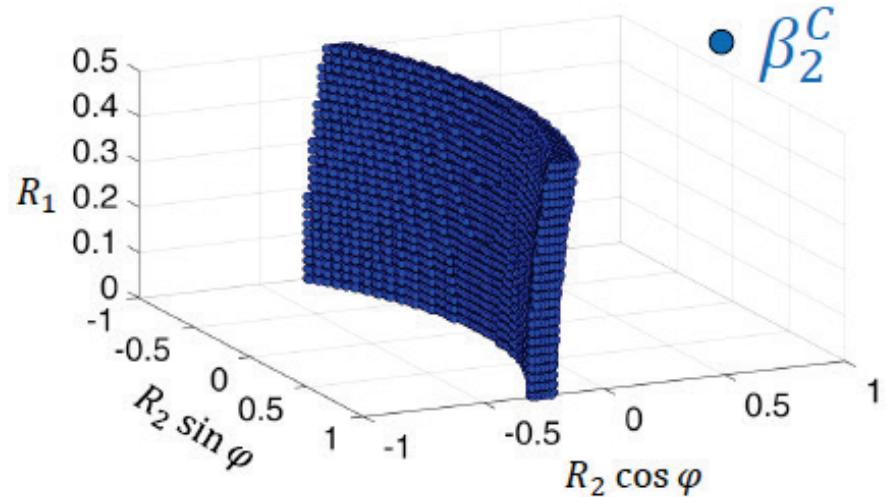
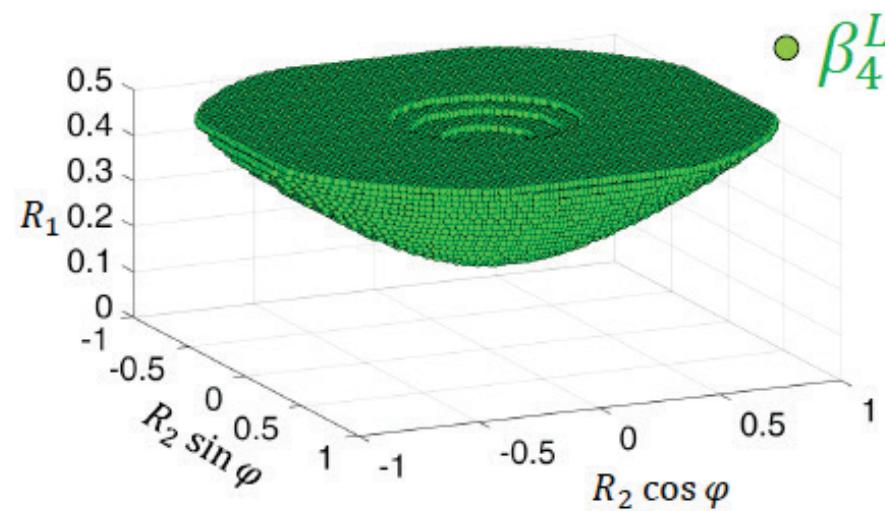
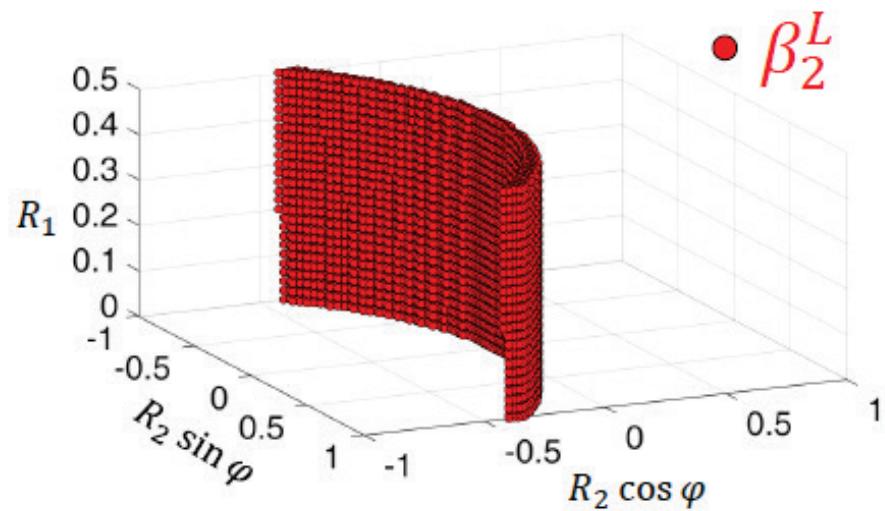
Угловое распределение фотоэлектронов:

$$I^\nu(\theta) = \frac{I_0^\nu}{4\pi} [1 + \beta_2^\nu P_2(\cos \theta) + \beta_4^\nu P_4(\cos \theta)]$$

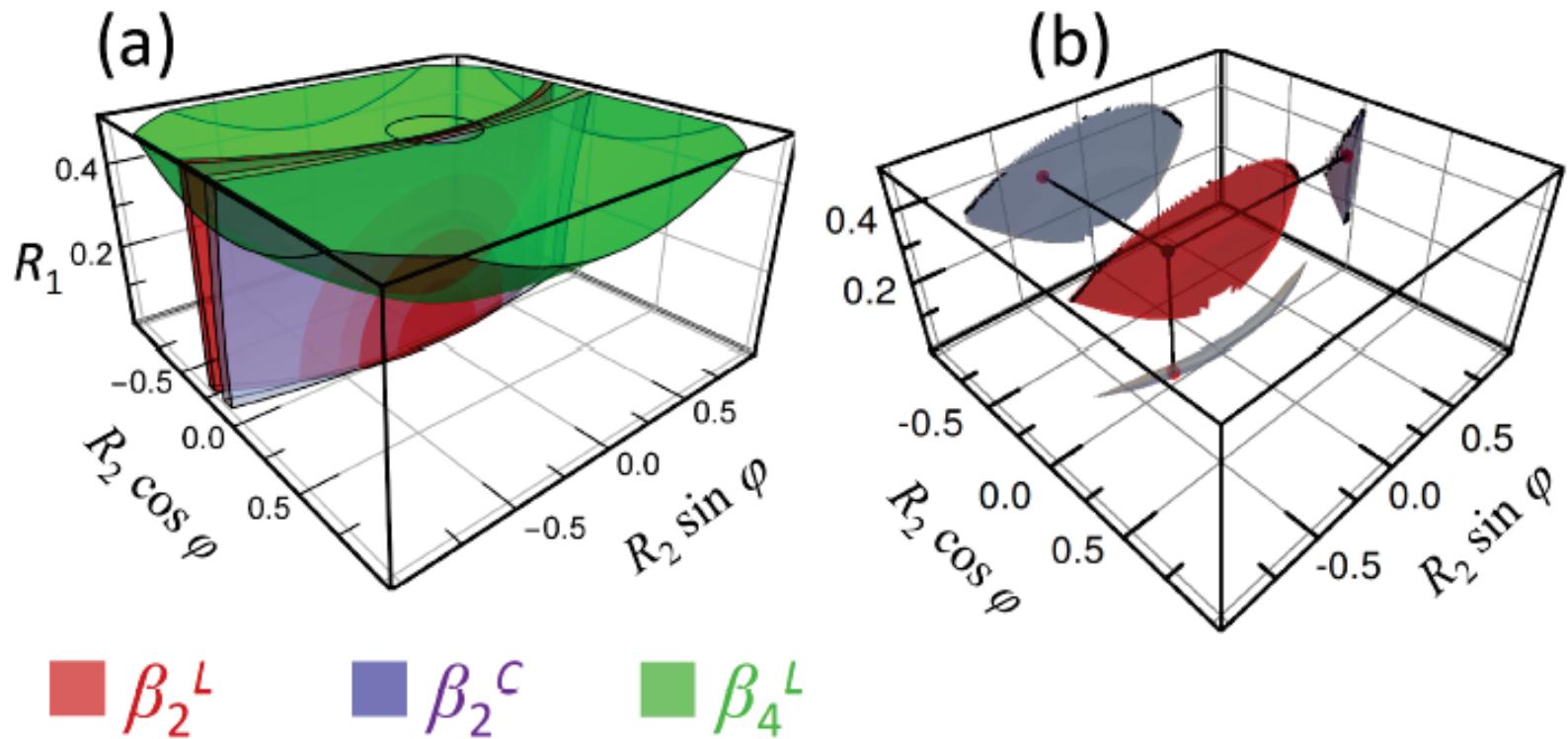


Параметры: $R_1 = |d_s^{(1)}/d_d^{(1)}|$ $R_2 = |d_s^{(2)}/d_d^{(2)}|$ $\varphi = \varphi_s^{(2)} - \varphi_d^{(2)}$

Три ограничения на разрешенные значения амплитуд,
следующие из выражений для трех параметров через амплитуды



Ограниченоное пространство амплитуд



$$d_l^{(j)} = |d_l^{(j)}| \exp(i\varphi_l^{(j)})$$

$$R_j = |d_s^{(j)} / d_d^{(j)}| \quad \varphi^{(j)} = \varphi_s^{(j)} - \varphi_d^{(j)}$$

Наблюдаемая Q :

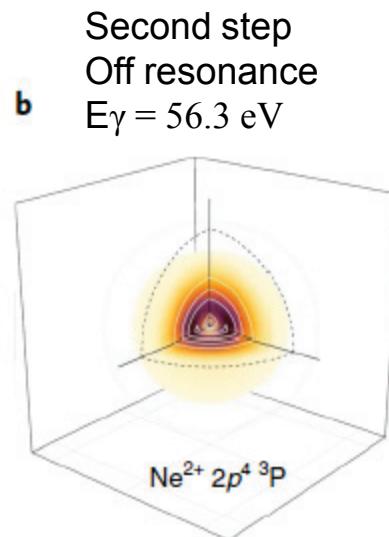
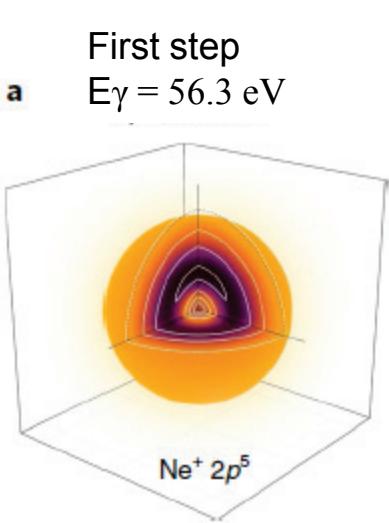
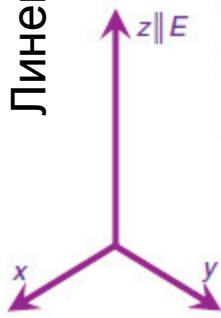
$$\langle Q \rangle = \text{Tr}(\rho Q) = \sum_{ff'ii'} \langle \xi_i | \rho_0 | \xi_{i'} \rangle \langle \chi_{f'} | Q | \chi_f \rangle D_{i \rightarrow f} D_{i' \rightarrow f'}^*$$

Примеры наблюдаемых:

«облако» вылетающего электрона, $Q = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{ph})$

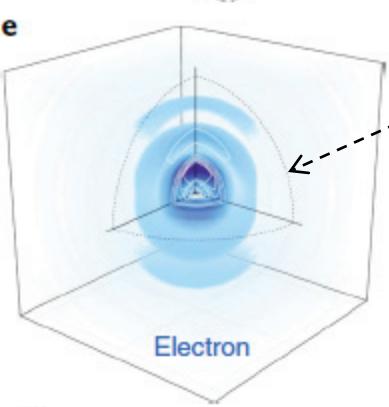
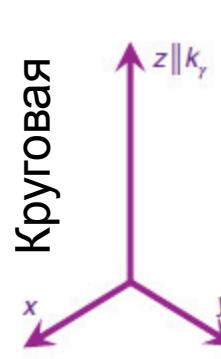
«облако» остаточного иона $Q = \sum_n \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_n)$

Линейная поляризация



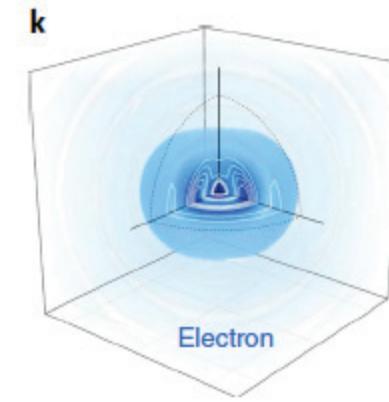
Остаточный ион

Круговая поляризация



$r = 5 \text{ a.u.}$

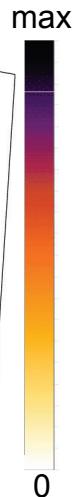
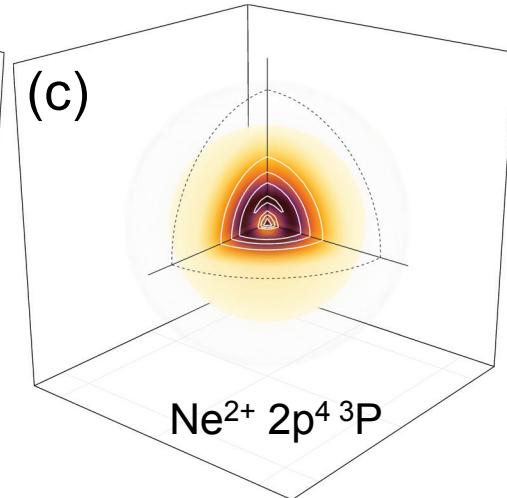
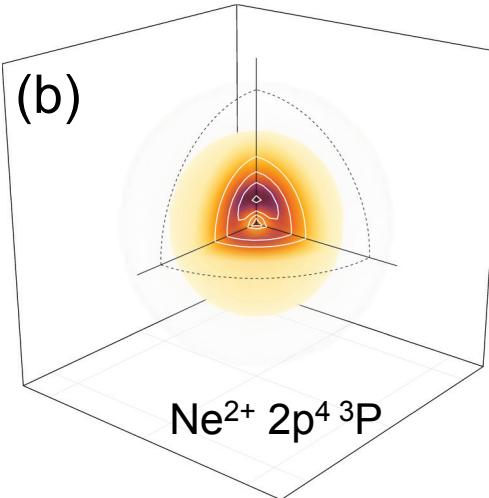
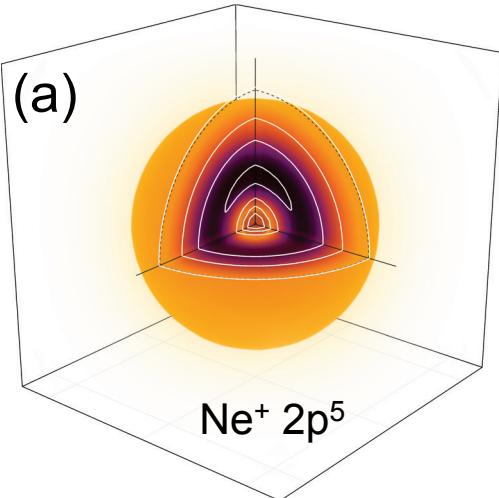
Фотоэлектрон



$E_\gamma = 56.3 \text{ eV}$
1st step

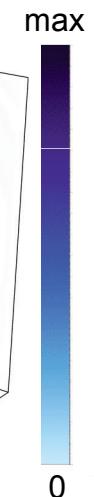
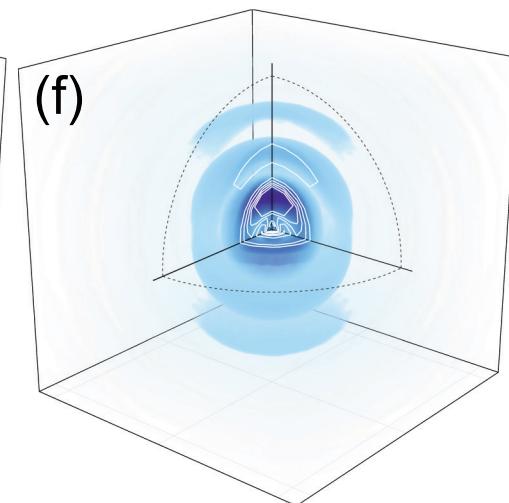
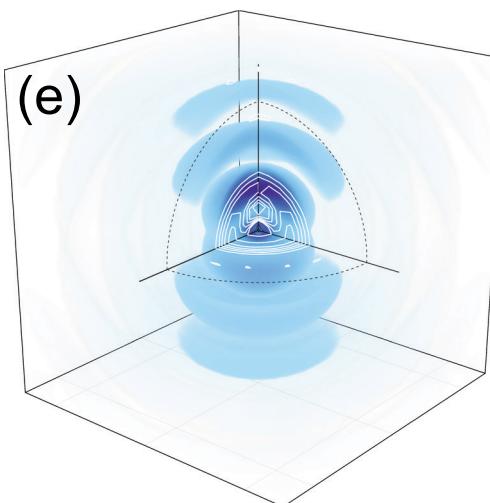
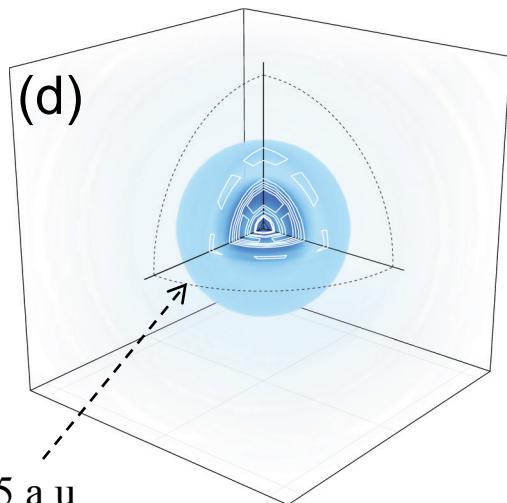
$E_\gamma = 56.3 \text{ eV}$
2nd step

$E_\gamma = 56.5 \text{ eV}$
2nd step



$Z \parallel E$

Остаточный ион

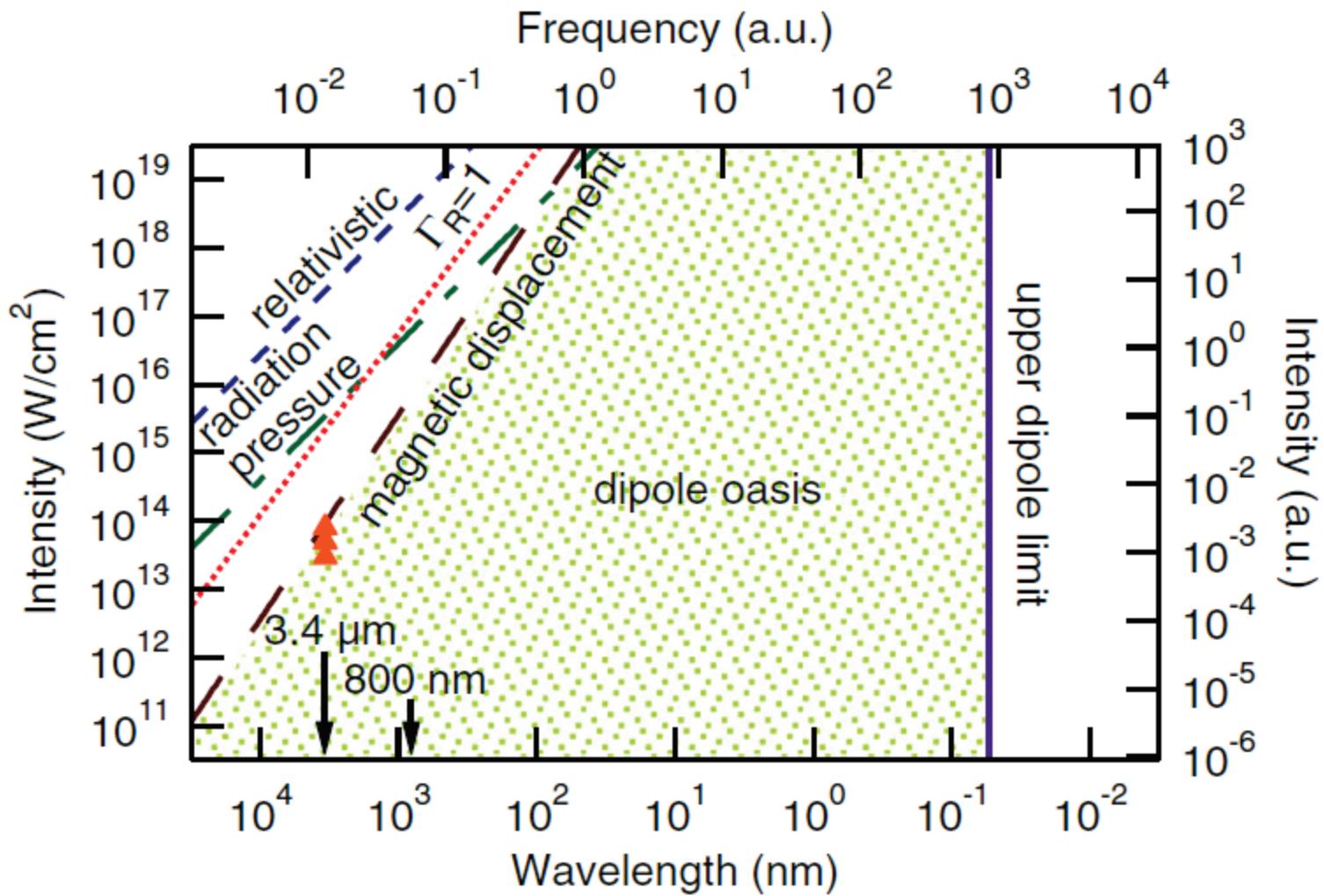


Фотоэлектрон

Использование ЛСЭ с переменной поляризацией в сочетании с электронной спектроскопией высокого энергетического и углового разрешения позволяет полностью восстановить связанные и несвязанные компоненты электронных волновых пакетов, созданных в процессе последовательной двухфотонной двойной ионизации (ПДДИ), также как и другие наблюдаемые.

ПДДИ играет фундаментальную роль в нелинейных процессах, поскольку он доминирует при ионизации в режиме интенсивности $10^{13}\text{--}10^{14}$ Вт/см², что может быть достигнуто работающими в настоящее время ЛСЭ. Для импульсов с более высокой интенсивностью ПДДИ сохраняет свою центральную роль, поскольку характеризует нелинейный отклик, возникающий на передней кромке и пространственных крыльях возбуждающего импульса. Поэтому полная характеристика множественной фотоионизации в благородных газах является важным шагом к исчерпывающему описанию нелинейного взаимодействия в интенсивных ВУФ-полях.

Эти исследования необходимы для сопоставления теоретических моделей, предсказывающих разные характеристики исходящих электронных волн, с экспериментальными данными.



Symmetry breakdown of electron emission in extreme ultraviolet photoionization of argon

M. Ilchen^{1,2}, G. Hartmann^{2,3}, E.V. Gryzlova⁴, A. Achner¹, E. Allaria⁵, A. Beckmann⁶, M. Braune³, J. Buck^{1,3}, C. Callegari⁵, R.N. Coffee⁷, R. Cucini⁵, M. Danailov⁵, A. De Fanis¹, A. Demidovich⁵, E. Ferrari⁸, P. Finetti⁵, L. Glaser³, A. Knie², A.O. Lindahl⁹, O. Plekan⁵, N. Mahne⁵, T. Mazza¹, L. Raimondi⁵, E. Roussel⁵, F. Scholz⁵, J. Seltmann³, I. Shevchuk³, C. Svetina¹⁰, P. Walter^{3,7}, M. Zangrandi^{5,11}, J. Viefhaus³, A.N. Grum-Grzhimailo^{1,4} & M. Meyer¹

¹ European XFEL GmbH, Schenefeld, Germany.

² Institut für Physik, University of Kassel, Germany.

³ Deutsches Elektronen-Synchrotron (DESY), Hamburg, Germany.

⁴ Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Russia.

⁵ Elettra-Sincrotrone Trieste SCpA, Italy.

⁶ X-Spectrum GmbH, Hamburg, Germany.

⁷ SLAC National Accelerator Laboratory, USA.

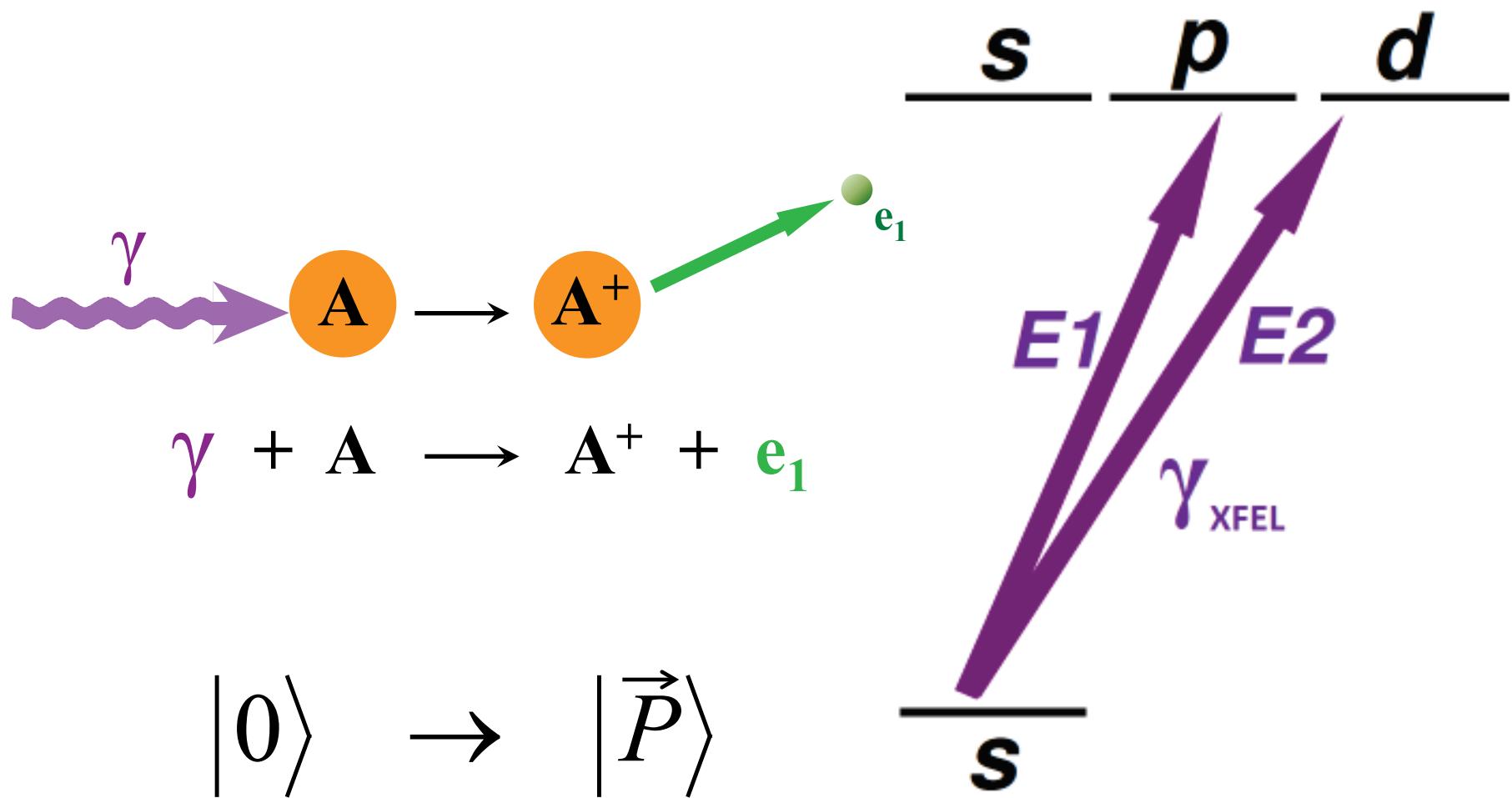
⁸ Particle Accelerator Physics Laboratory, École Polytechnique Fédérale de Lausanne,

⁹ Qamcom Research & Technology AB, Gothenburg, Sweden. Switzerland.

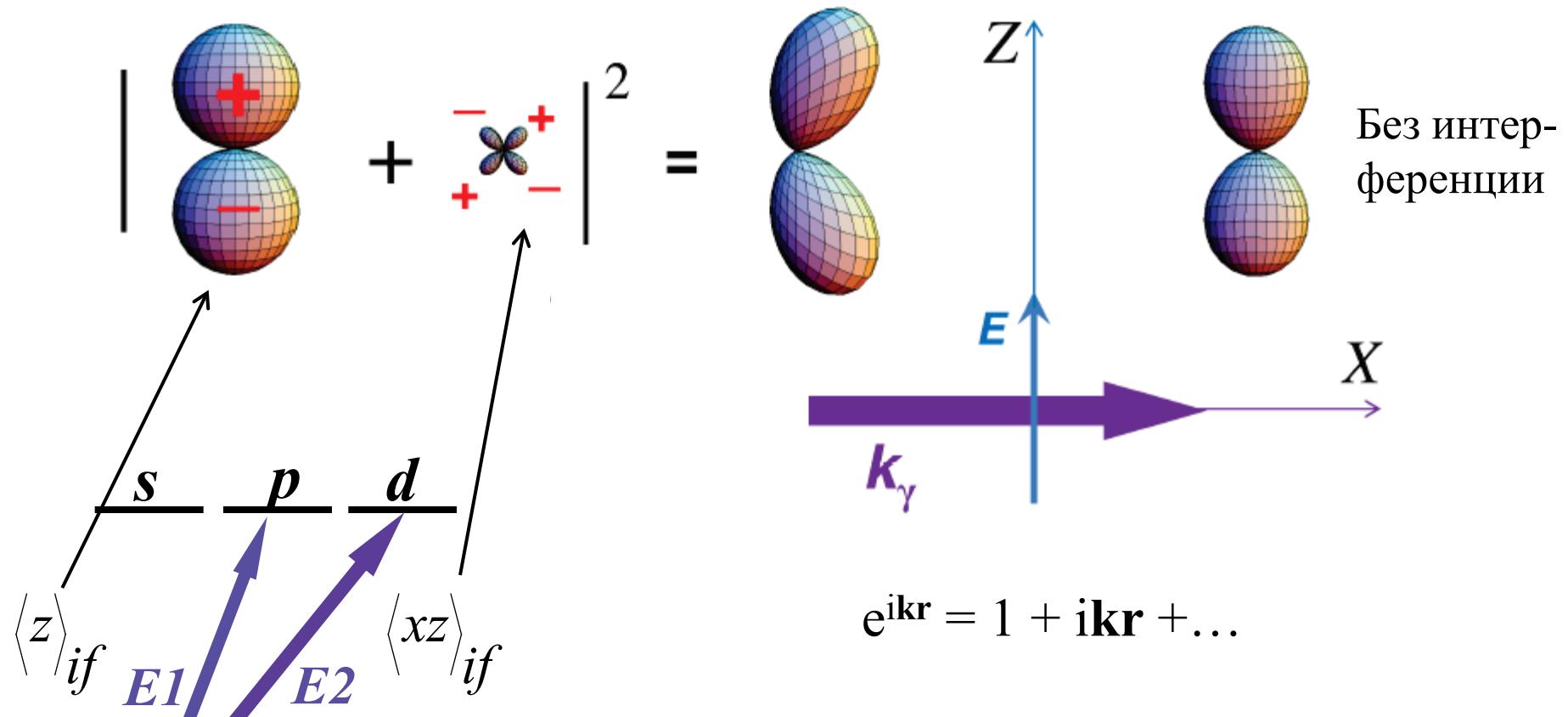
¹⁰ Paul Scherrer Institut, Switzerland.

¹¹ CNR, IOM, Lab Nazl TASC, Trieste, Italy.

Пример: фотоионизация из s-состояния



Нарушение симметрии «вперед-назад» для линейно-поляризованного света

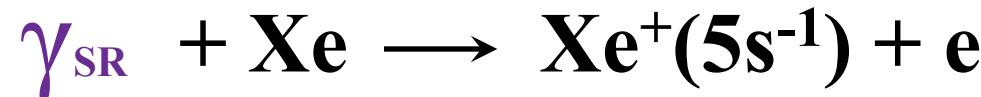


$$e^{ikr} = 1 + ik\mathbf{r} + \dots$$

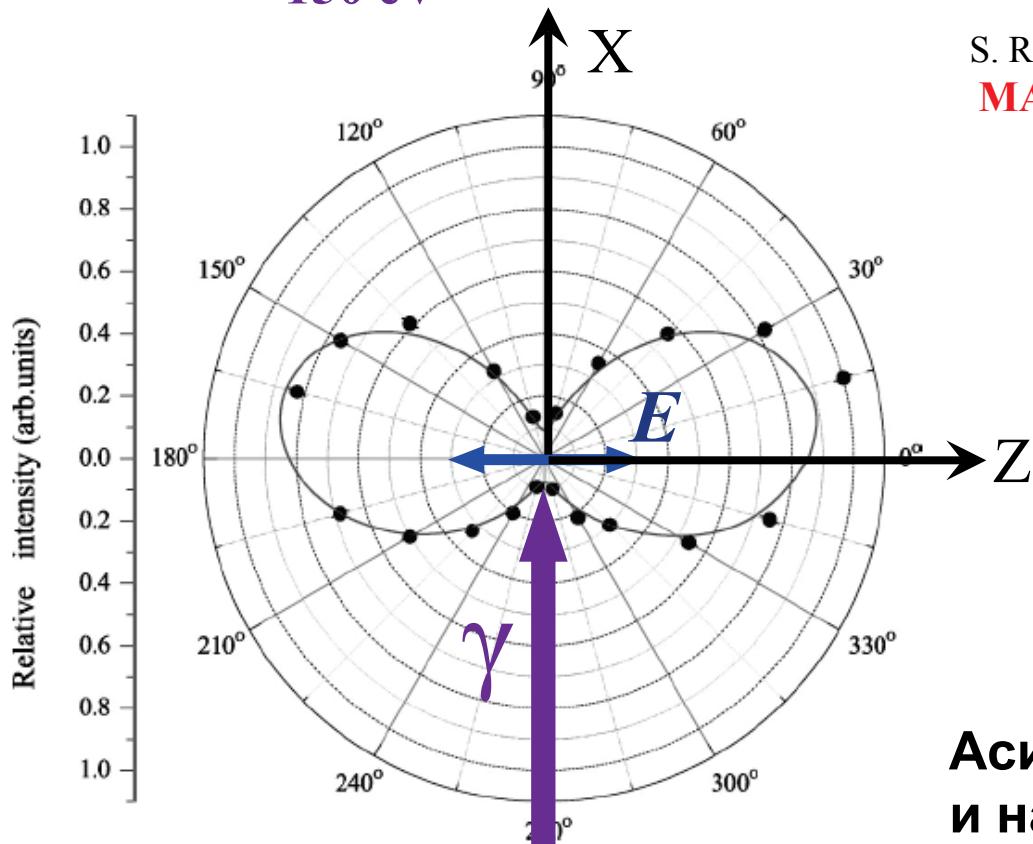
$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos \theta) + \underline{(\delta + \gamma \cos^2 \theta) \sin \theta \cos \phi}]$$

Интерференция E_1 and E_2 амплитуд фотоионизации

Example :



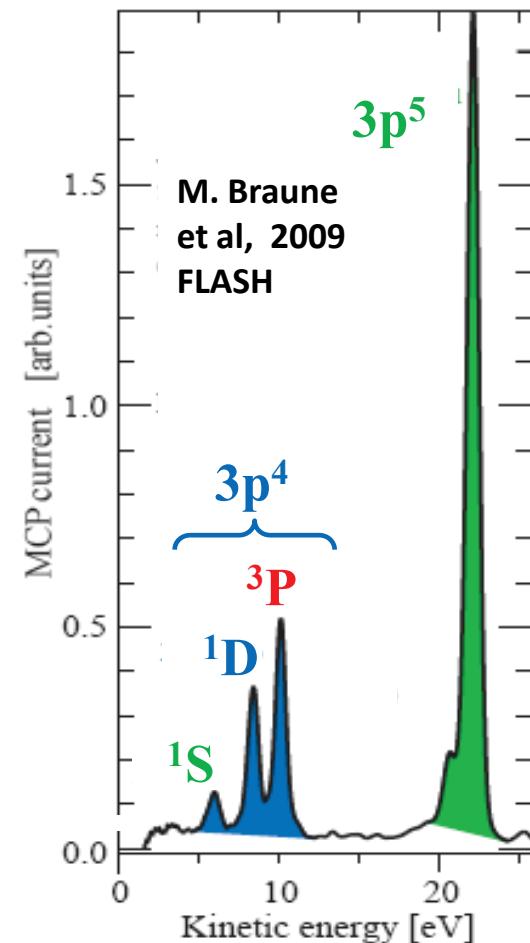
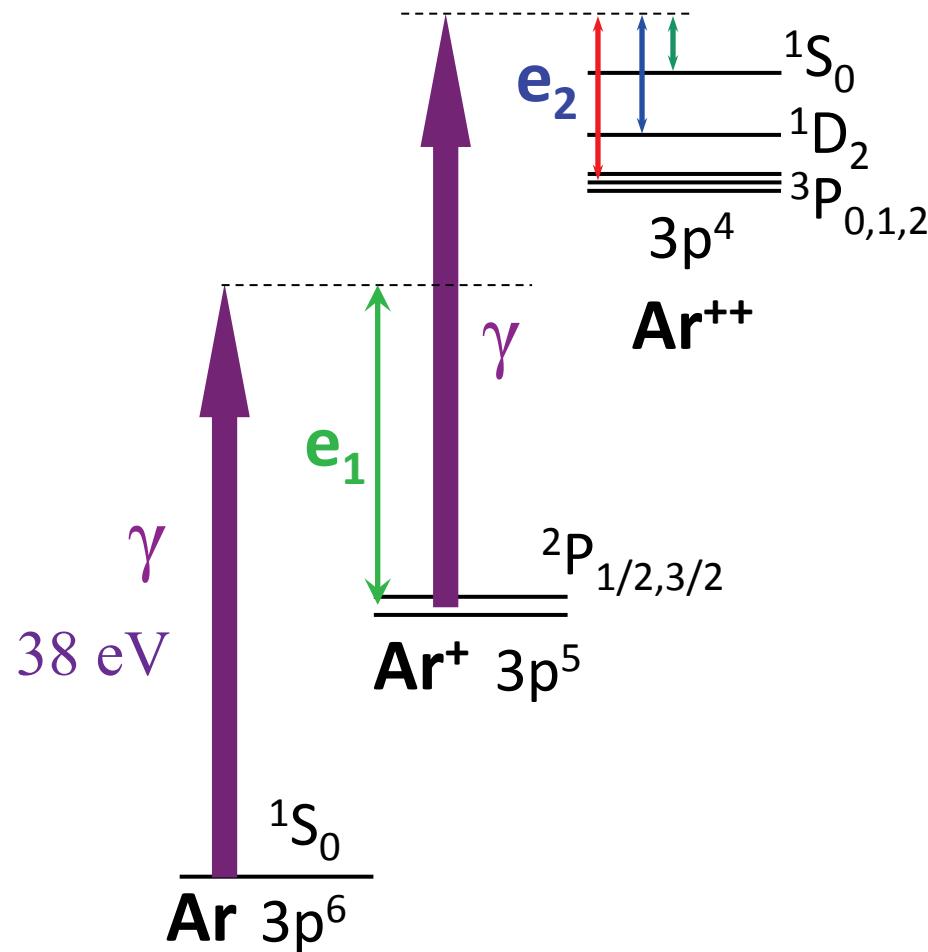
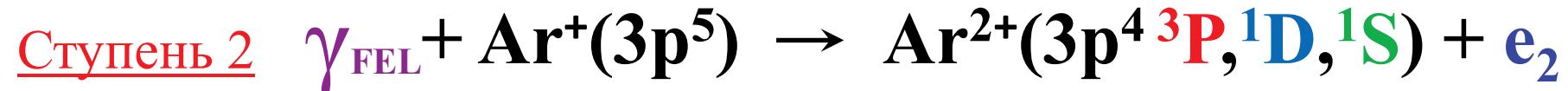
150 eV



S. Ricz et al, Phys. Rev. A 67, 012712 (2003)
MAX II experiment (Lund, Sweden)

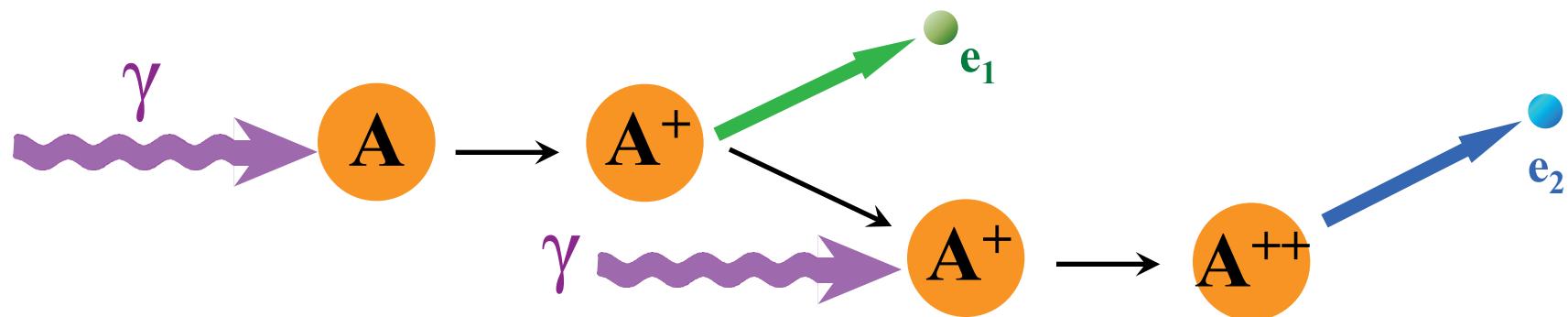
Асимметрия вперед-назад
и нарушение аксиальной
симметрии

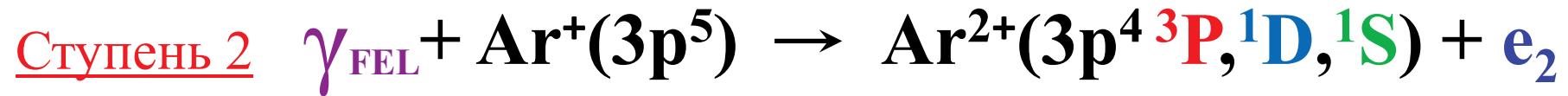
Последовательная двухфотонная двойная ионизация инертных газов



Non-dipole effects in the angular distribution of photoelectrons in sequential two-photon double ionization: argon and neon

E V Gryzlova¹, A N Grum-Grzhimailo¹, S I Strakhova¹ and M Meyer²

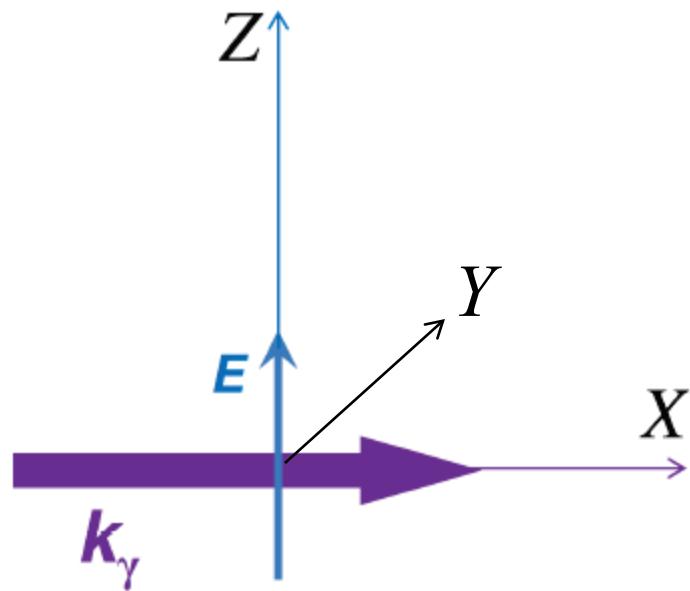




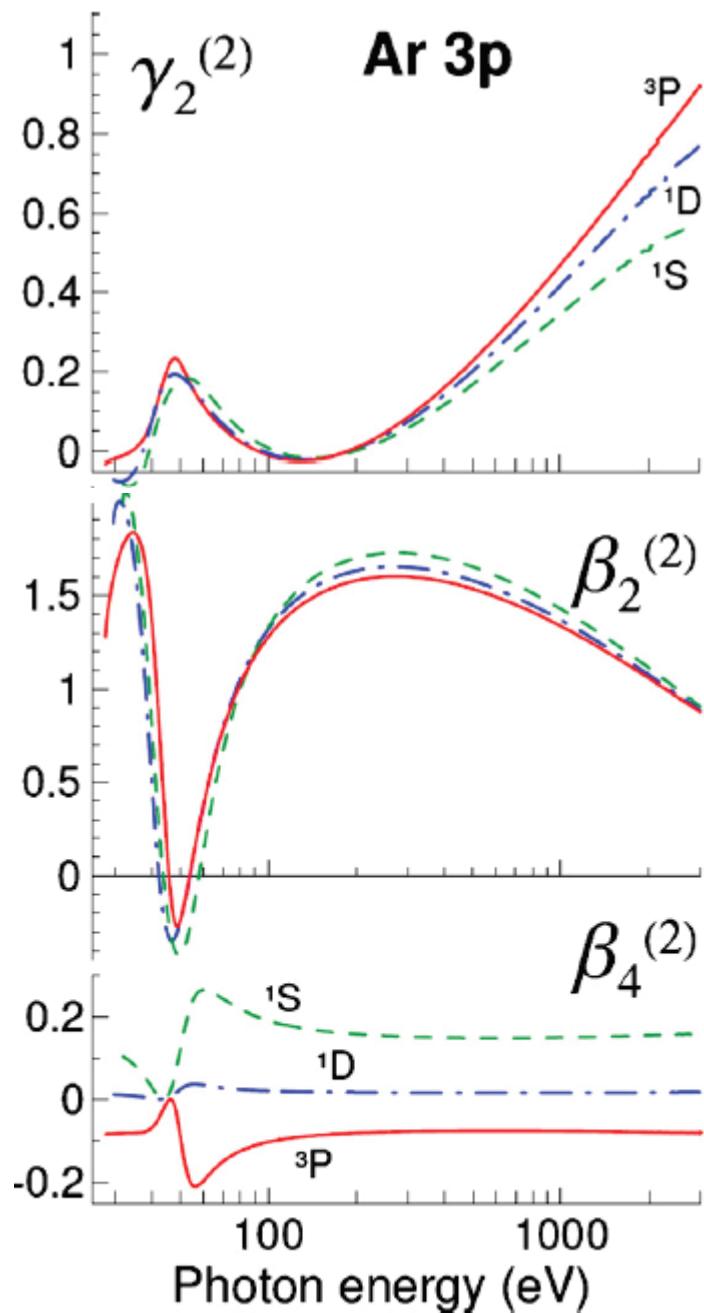
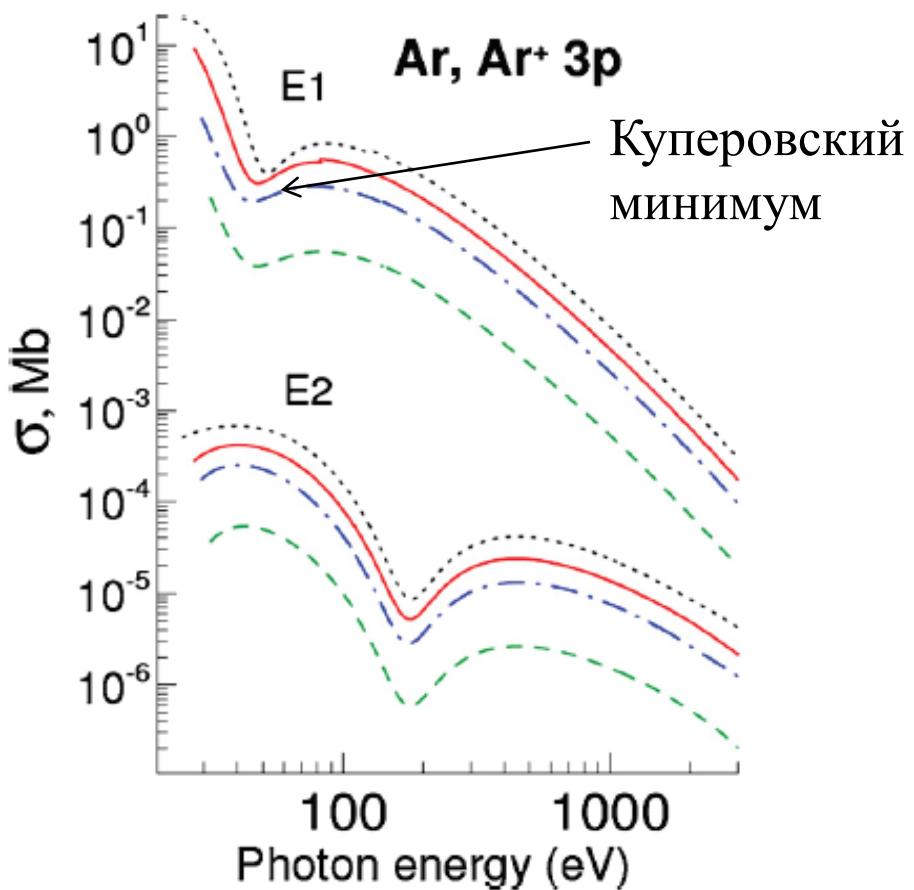
$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega_i} = \frac{\sigma_i}{4\pi} \left[1 + \beta_2^{(i)} P_2(\cos \vartheta_i) + \beta_4^{(i)} P_4(\cos \vartheta_i) \right. \\ \left. + \left(\delta^{(i)} + \gamma_2^{(i)} \cos^2 \vartheta_i + \gamma_4^{(i)} \cos^4 \vartheta_i \right) \sin \vartheta_i \cos \varphi_i \right]$$

Недипольный вклад

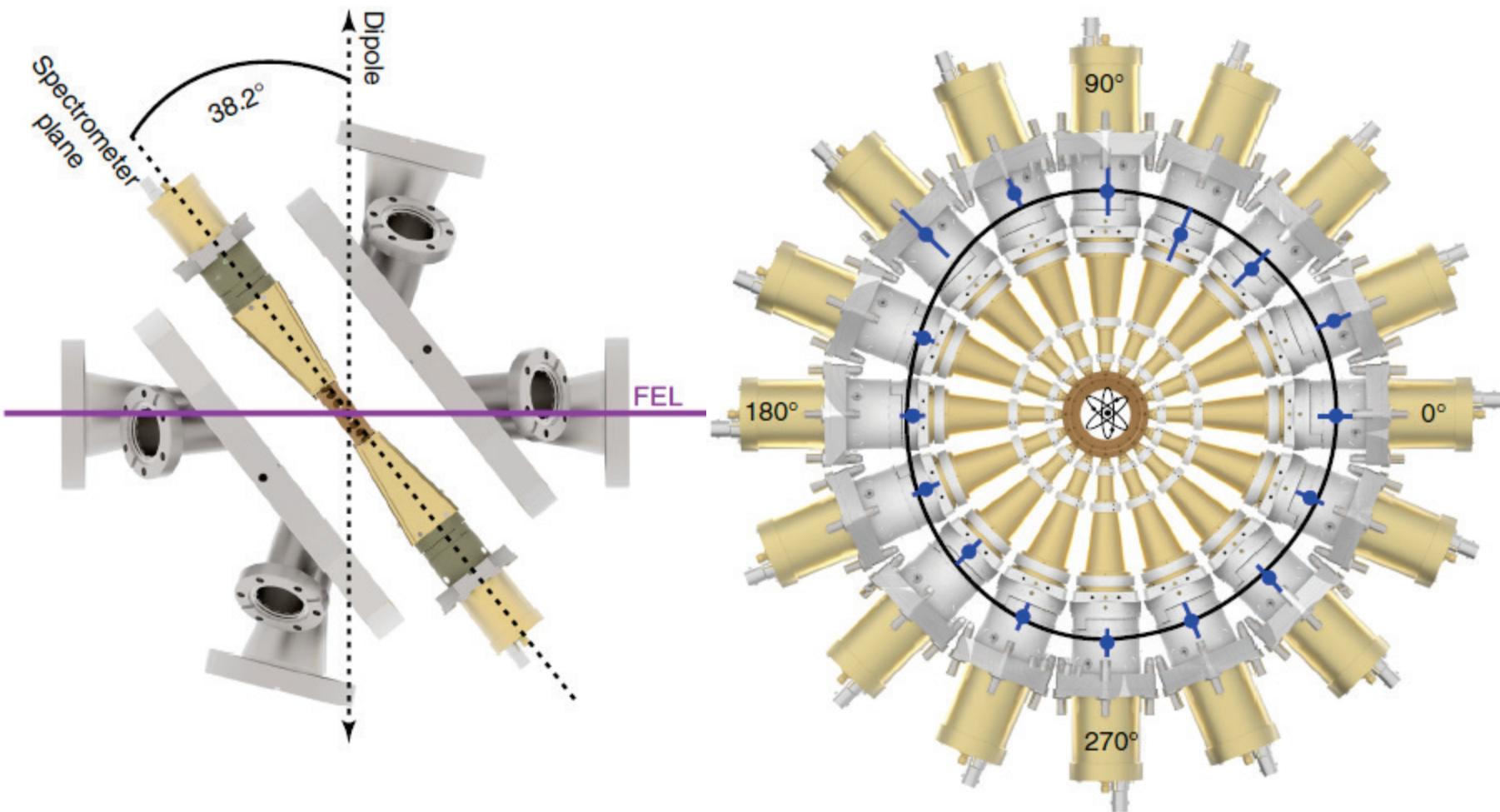
$i = 1, 2$ номер электрона



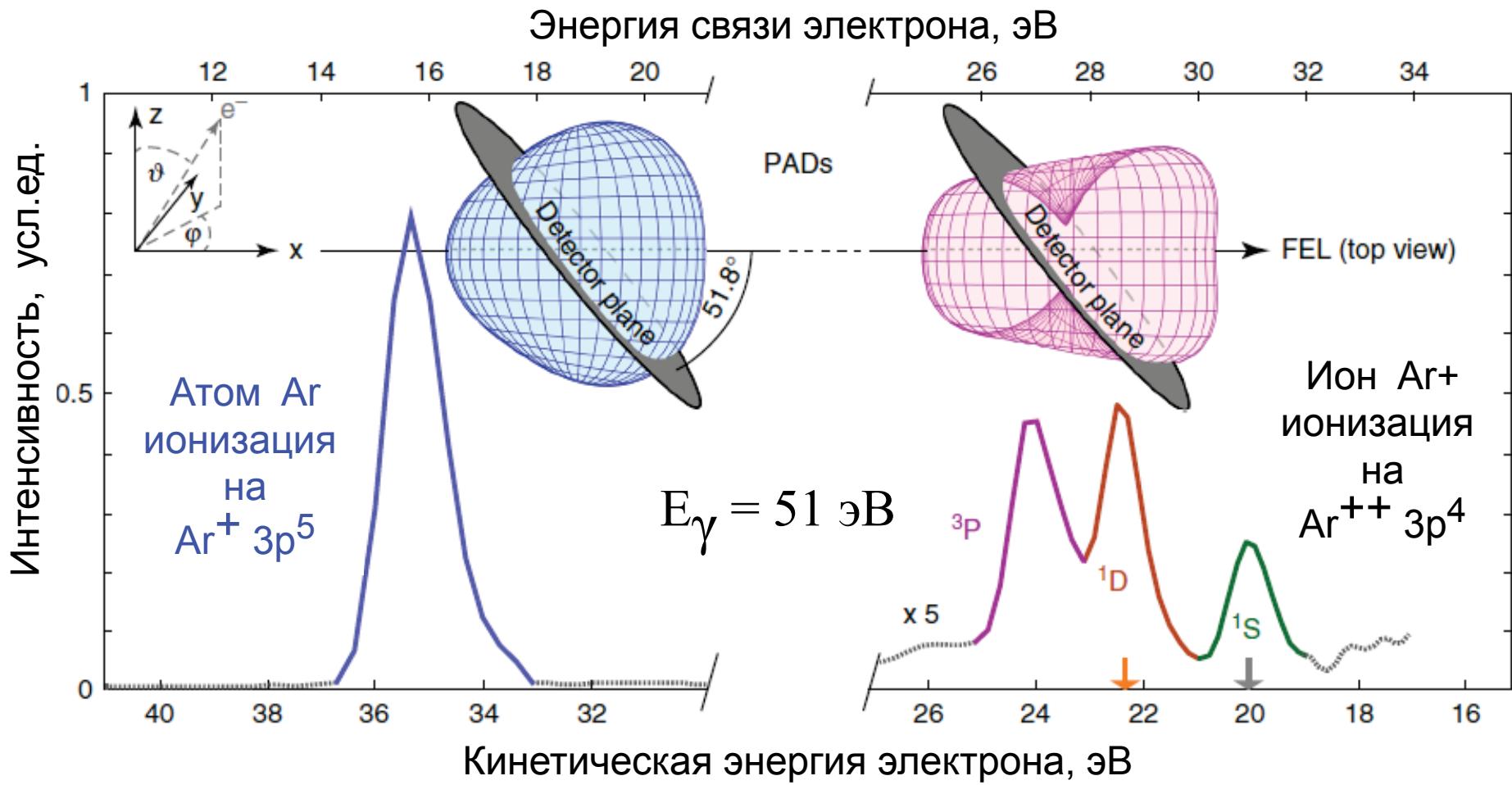
$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega_i} = \frac{\sigma_i}{4\pi} \left[1 + \beta_2^{(i)} P_2(\cos \vartheta_i) + \beta_4^{(i)} P_4(\cos \vartheta_i) + \left(\delta^{(i)} + \gamma_2^{(i)} \cos^2 \vartheta_i + \gamma_4^{(i)} \cos^4 \vartheta_i \right) \sin \vartheta_i \cos \varphi_i \right]$$

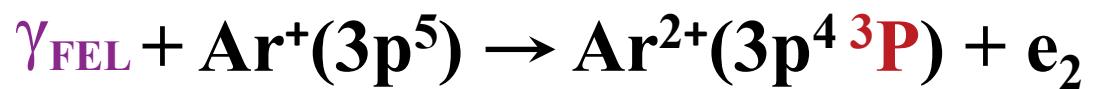
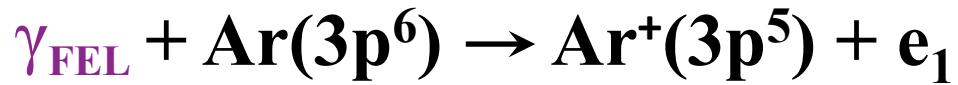


Система TOF детекторов

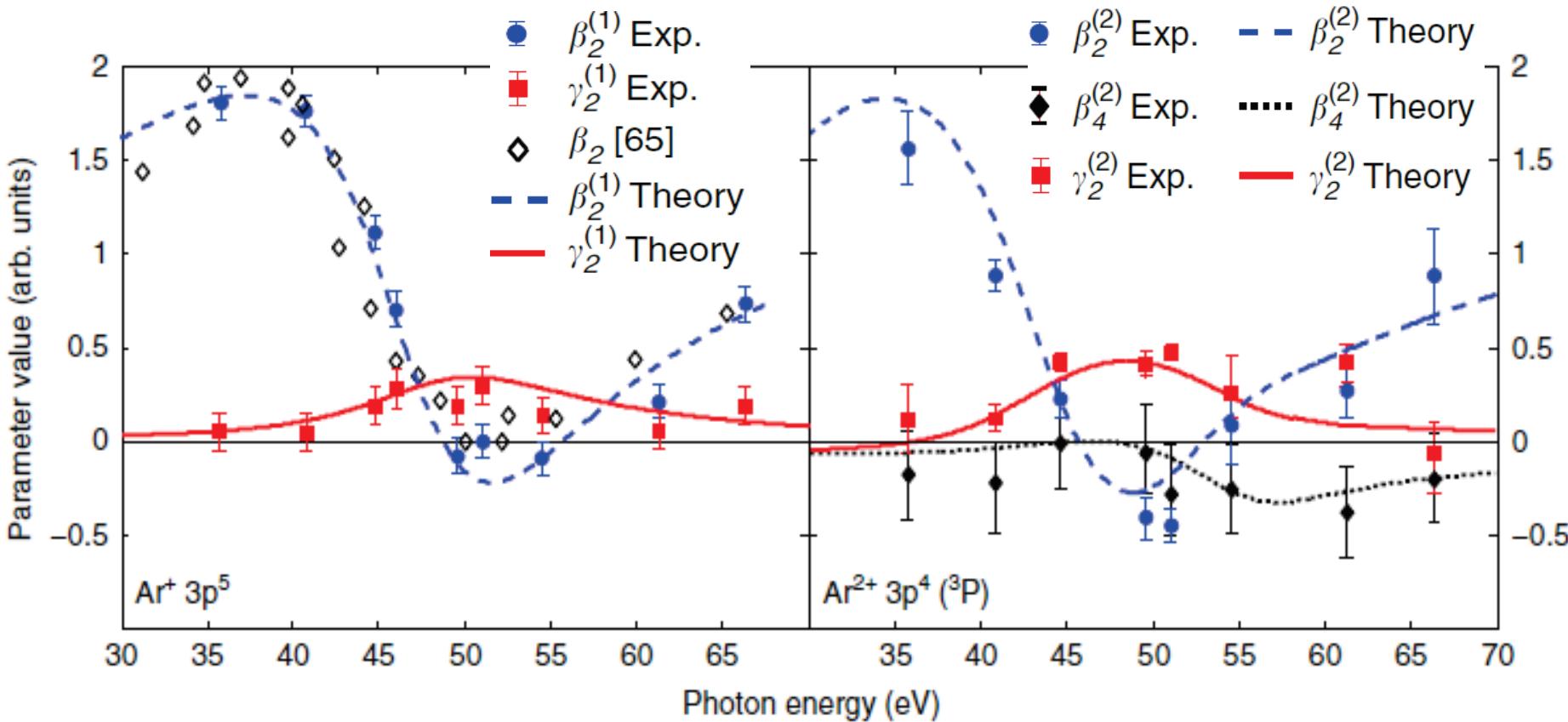


$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega_i} = \frac{\sigma_i}{4\pi} \left[1 + \beta_2^{(i)} P_2(\cos \vartheta_i) + \beta_4^{(i)} P_4(\cos \vartheta_i) \right. \\ \left. + \left(\delta^{(i)} + \gamma_2^{(i)} \cos^2 \vartheta_i + \gamma_4^{(i)} \cos^4 \vartheta_i \right) \sin \vartheta_i \cos \varphi_i \right]$$



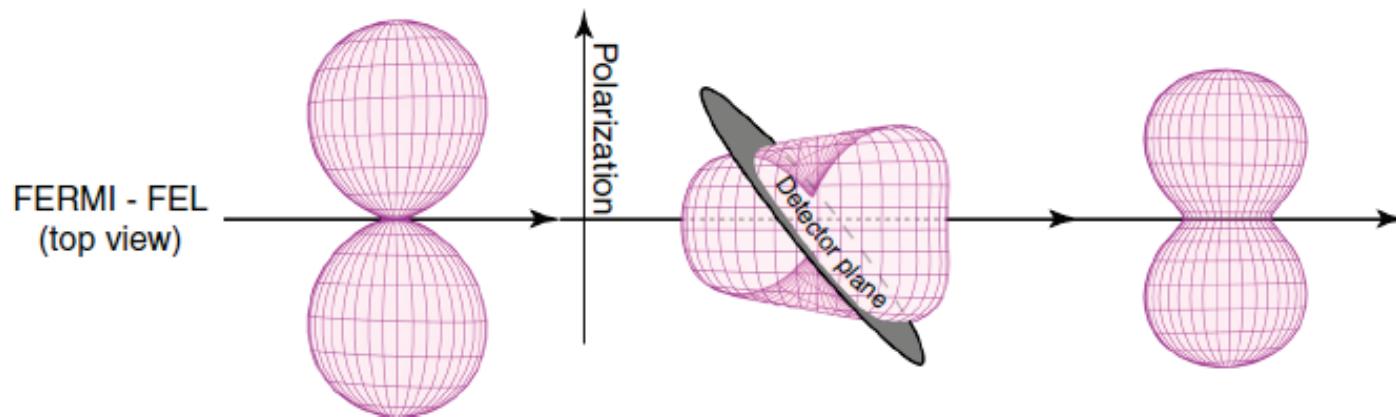


$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega_i} = \frac{\sigma_i}{4\pi} \left[1 + \beta_2^{(i)} P_2(\cos \vartheta_i) + \beta_4^{(i)} P_4(\cos \vartheta_i) \right. \\ \left. + \left(\delta^{(i)} + \gamma_2^{(i)} \cos^2 \vartheta_i + \gamma_4^{(i)} \cos^4 \vartheta_i \right) \sin \vartheta_i \cos \varphi_i \right]$$



Photon energy = 36 eV	51 eV (cooper minimum)	66 eV
$\beta_2 = 1.56 \quad \beta_4 = -0.18$ $\gamma_2 = 0.11$	$\beta_2 = -0.45 \quad \beta_4 = -0.29$ $\gamma_2 = 0.47$	$\beta_2 = 0.88 \quad \beta_4 = -0.18$ $\gamma_2 = -0.07$

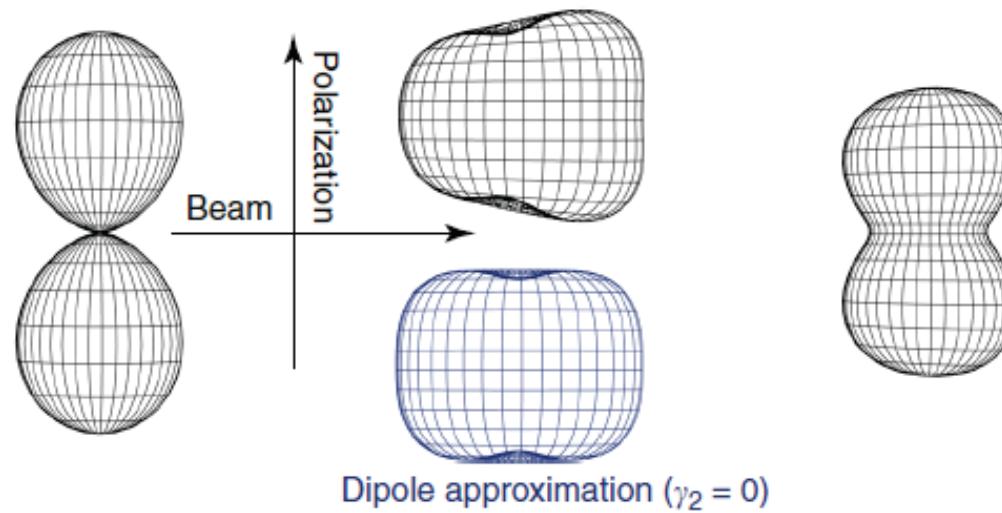
Experiment



$\beta_2 = 1.79 \quad \beta_4 = -0.08$ $\gamma_2 = 0.01$	$\beta_2 = -0.13 \quad \beta_4 = -0.15$ $\gamma_2 = 0.31$	$\beta_2 = 0.67 \quad \beta_4 = -0.18$ $\gamma_2 = 0.08$
---	--	---

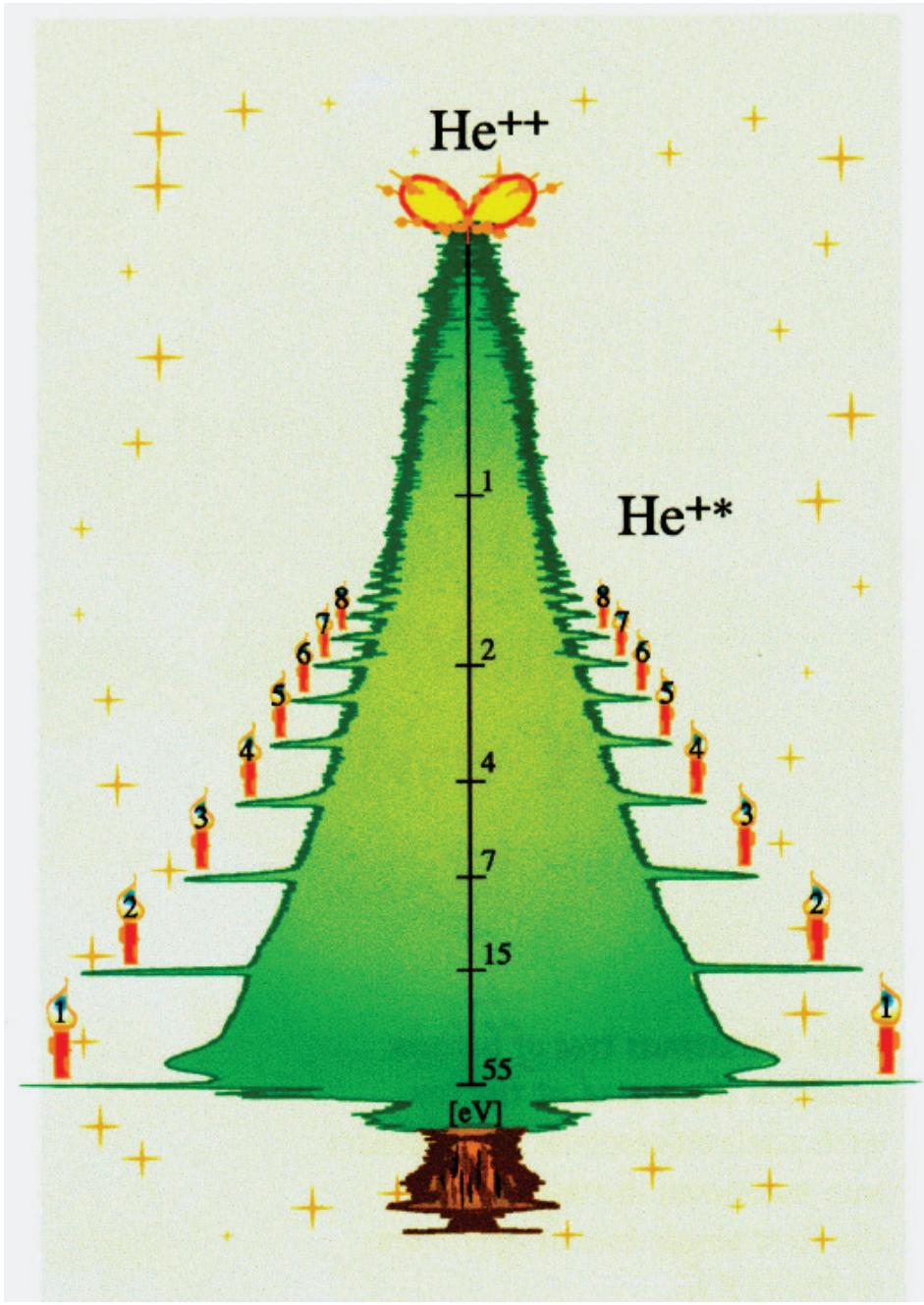
Theory

Black: full
Blue: $\gamma_2 = 0$



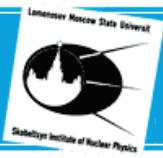
С сегодняшними ЛСЭ наблюдение недипольных вкладов для (однократно) положительно заряженных ионов осуществимо с помощью электронной спектроскопии с угловым разрешением. Наши результаты показывают сильную асимметрию вперед-назад для последовательной двойной ионизации аргона в куперовских минимумах нейтрального атома и однозарядного иона, что является доказательством влияния линейного импульса фотона в обоих случаях. Результаты для аргона показывают, что эффект усиливается для фотоионизация однозарядного иона. Будущие исследования должны уточнить, насколько это общее явление для ионов различных элементов и зарядовых состояний.

Исследование открывает новое измерение в изучении фотоионизации, дополняя исследования недипольных эффектов, которые до сих пор были ограничены нейтральными атомами и молекулами.



This Christmas tree of helium satellites decorated at the top with electron-electron coincidences was measured during the first single bunch operation of BESSY II.

Спасибо за внимание!



Skobeltsyn
Institute of Nuclear Physics

Lomonosov Moscow State University