

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
имени М.В. ЛОМОНОСОВА

На правах рукописи

A handwritten signature in blue ink, appearing to be 'М.В. Киселев', written in a cursive style.

Киселев Максим Дмитриевич

**Моделирование нелинейных и сверхбыстрых  
ионизационных процессов в атомах в мягком  
рентгеновском и экстремальном ультрафиолетовом  
диапазоне**

Специальность: 1.3.6. Оптика

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Москва — 2024

Работа выполнена на кафедре общей ядерной физики физического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова.

Научный

руководитель: **Грум-Гржимайло Алексей Николаевич**  
доктор физико-математических наук

Официальные  
оппоненты:

**Стрелков Василий Вячеславович;**

доктор физико-математических наук;  
ведущий научный сотрудник теоретического отдела Института общей физики имени А.М. Прохорова Российской академии наук (ИОФ РАН)

**Ипатов Андрей Николаевич;**

доктор физико-математических наук, доцент;  
профессор кафедры физики Санкт-Петербургского национального исследовательского Академического университета имени Ж.И. Алфёрова Российской академии наук (СПбАУ РАН им. Ж.И. Алфёрова)

**Глазов Дмитрий Алексеевич;**

кандидат физико-математических наук;  
ведущий научный сотрудник физического факультета физико-технического мегафакультета Национального исследовательского университета ИТМО

Защита состоится «23» мая 2024 г. в 16:30 на заседании диссертационного совета МГУ.013.6 на физическом факультете Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова по адресу: 119991, г. Москва, ГСП-1, Ленинские горы, д. 1, стр. 2, физическая аудитория имени Р.В. Хохлова.

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова (119192, г. Москва, Ломоносовский пр-т, д. 27) и в сети Интернет: <https://dissovet.msu.ru/dissertation/2919>.

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2024 года.

Ученый секретарь

диссертационного совета МГУ.013.6,  
доктор физико-математических наук,  
доцент  
[kosareva@physics.msu.ru](mailto:kosareva@physics.msu.ru)



Косарева О.Г.

## Общая характеристика работы

### Актуальность темы.

Фотоионизация в интенсивных когерентных полях и сопутствующие нелинейные явления активно исследовались в течение длительного времени с помощью лазеров, работающих в ближней инфракрасной и видимой областях спектра. Недоступность достаточно интенсивного коротковолнового излучения препятствовала наблюдению нелинейных процессов в экстремальном ультрафиолетовом и рентгеновском диапазонах. Появление рентгеновских лазеров на свободных электронах (ЛСЭ) и установок с генерацией высоких лазерных гармоник, являющихся одними из ключевых инструментов квантовой оптики, сделало это возможным. Создание и развитие техники генерации высокочастотного излучения вкупе с уникальным набором характеристик (а именно, высокой интенсивности, фемто- и даже аттосекундной длительности импульсов) открыло возможность экспериментально изучать процессы, ранее недоступные для наблюдения, такие как кратная последовательная фотоионизация, образование многозарядных ионов (в том числе экзотических «полых» конфигураций). Также к наблюдению в высоком разрешении стали доступны угловые распределения продуктов реакции. Качественный скачок в полноте экспериментальных данных требует соответствующего развития теоретических подходов, а для планирования новых экспериментов необходимы результаты высококачественного моделирования процессов со сложной динамикой.

В последние годы значительный интерес также вызывает применение закрученных световых пучков в атомной физике. Благодаря своему спиралевидному фазовому фронту, кольцеобразному распределению интенсивности и особенностям поляризации такие пучки могут радикально влиять на свойства фундаментальных процессов взаимодействия света с веществом. По сравнению с электронными переходами между связанными состояниями, в настоящее время гораздо меньше известно о фотоионизации атомных мишеней закрученным излучением. Более того, влияние эффектов закрученности света на ионизацию в области автоионизационных состояний до сих пор не изучалось. Данная область исследований нуждается в создании теоретических подходов для описания взаимодействия закрученного света с веществом с учётом характеристик этого излучения, отличных от общепринятых плоских волн. Моделирование соответствующих процессов позволит планировать и проводить эксперименты нового поколения по фотоионизации атомов экзотическими состояниями света.

Целью настоящей работы является разработка и применение теоретического подхода для моделирования экзотических фотоионизационных процессов в атомах гелия, неона, криптона под действием высокоэнергетического излучения, в том числе закрученного (бесселевы пучки), а также

демонстрация возможности применения метода R-матрицы для успешного описания ионизации глубоких атомных оболочек.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи:

1. Разработать спектроскопическую модель для описания фотоионизации иона неона вблизи порога ионизации его  $1s$ -оболочки; произвести расчет процесса фотоионизации неона методом R-матрицы в рамках разработанной модели с использованием современных программных комплексов; смоделировать на основании произведенных расчетов наблюдаемые характеристики процесса: спектры и угловые распределения фотоэлектронов.
2. Разработать спектроскопическую модель для описания фотоионизации атома и ионов криптона при энергиях излучения ниже порога ионизации  $3d$ -оболочки; произвести расчет процесса фотоионизации криптона методом R-матрицы в рамках разработанной модели с использованием современных программных комплексов; смоделировать на основании произведенных расчетов характеристики процесса: спектры фотоэлектронов, заселенности различных атомных и ионных состояний, выходы ионов различной кратности, угловые распределения фотоэлектронов.
3. Разработать спектроскопическую модель для описания фотоионизации атома криптона при энергиях излучения выше порога ионизации  $3d$ -оболочки; произвести расчет процесса фотоионизации криптона методом R-матрицы в рамках разработанной модели с использованием современных программных комплексов; получить теоретические выражения и произвести моделирование зависимости параметра анизотропии угловых распределений фотоэлектронов для корреляционных спутниковых линий серии  $3d^{-1}4p^{-1}nl$ .
4. Развить математический аппарат для расчета характеристик процесса фотоионизации атома криптона с учетом поляризации падающего излучения и поляризации промежуточных состояний в формализме статистических тензоров.
5. Разработать формализм для описания процесса ионизации многоэлектронных атомов закрученным бесселевым излучением различной поляризации (циркулярной и линейной); разработать спектроскопическую модель для описания фотоионизации атома гелия в области низших автоионизационных резонансов; произвести расчет процесса фотоионизации гелия методом R-матрицы в рамках разработанной модели с использованием современных программных комплексов; смоделировать угловые распределения

фотоэлектронов при ионизации закрученным светом и проанализировать зависимость формы этих распределений от параметров падающего закрученного излучения.

### **Объект и предмет исследования.**

Объектом исследования являются нелинейные и сверхбыстрые процессы, изучение которых стало доступным в результате развития техники генерации высокочастотного излучения диапазона экстремального ультрафиолета и мягкого рентгена. Предметом исследования являются образование и распад экзотических состояний с кратными вакансиями на различных оболочках атомов и ионов неона, криптона и гелия под действием высокоинтенсивных импульсов излучения, в том числе закрученного (бесселева).

### **Методология и методы исследования.**

В настоящей работе использовались:

- методы квантовой теории углового момента при получении аналитических выражений для наблюдаемых величин в фотоионизационных процессах;
- многоконфигурационный метод самосогласованного поля Хартри-Фока, в том числе с процедурой диагонализации Брейта-Паули для учёта релятивистских поправок, при получении волновых функций многоэлектронных атомов и ионов (программный комплекс MCHF, [1]);
- метод R-матрицы с B-сплайнами и неортогональными электронными орбиталями при расчёте амплитуд фотоионизации (программный комплекс BSR, [2]);
- метод решения аналога скоростных уравнений в терминах статистических тензоров при расчёте заселённости различных атомных и ионных состояний;
- методы компьютерной алгебры и графики при моделировании и графическом представлении результатов (Wolfram Mathematica, Grapher).

### **Научная новизна:**

1. Разработанная теоретическая модель образования и распада двойной вакансии на  $1s$ -оболочке иона неона применена для интерпретации результатов первого в мире эксперимента, проведенного на линии Small Quantum Systems (SQS) Европейского лазера на свободных электронах EuXFEL (г. Гамбург, Германия). Впервые в литературе смоделированы угловые распределения отдельных линий спектра электронов, образующихся при распаде состояний типа  $1s^{-2}np$ .
2. Впервые продемонстрировано на примере ионизации  $1s$ -оболочки иона неона, что метод R-матрицы, ранее применявшийся преимущественно для ионизации внешних атомных оболочек излучением

от инфракрасного до ультрафиолетового диапазона, может успешно использоваться и для расчёта ионизации глубоких атомных оболочек в области мягкого рентгена.

3. Впервые произведены расчёты эволюции заселенности в течение действия импульса излучения с учетом поляризации всех промежуточных состояний при помощи аналога скоростных уравнений для заселенностей состояний в формализме статистических тензоров. Продемонстрировано, что поляризация падающего излучения может приводить к исчезновению отдельных линий в фотоэлектронных спектрах.
4. Впервые смоделированы энергетические зависимости сечений фотоионизации и параметров анизотропии угловых распределений фотоэлектронов  $\beta_2$  и  $\beta_4$  иона криптона  $\text{Kr}^+$  в процессе двухфотонной двойной ионизации нейтрального криптона в области автоионизационных резонансных серий  $4s^2 4p^4(^1D) ns/nd$  и  $4s^1 4p^5 np$ , а также соответствующие фотоэлектронные спектры.
5. Впервые было осуществлено моделирование угловой анизотропии спектров фотоэлектронов, соответствующих корреляционным спутным линиям типа  $3d^{-1} 4p^{-1} nl$  в криптоне. Результаты данного моделирования были применены для интерпретации первого в мире эксперимента по исследованию угловой анизотропии корреляционных спутных линий типа  $3d^{-1} 4p^{-1} nl$  в криптоне на синхротроне 4го поколения MAX IV (г. Лунд, Швеция).
6. Доказано оригинальное утверждение, дающее возможность сконструировать выражение для углового распределения фотоэлектронов, испущенных под действием закрученного (бесселева) света, на основе углового распределения фотоэлектронов, испущенных под действием плосковолнового света. Впервые показана теоретическая возможность диагностики пучка закрученного (бесселева) света с помощью высокоточных измерений угловых распределений фотоэлектронов.
7. Впервые проведено моделирование угловых распределений фотоэлектронов, испущенных под действием закрученного (бесселева) света, в области низших автоионизационных резонансов атома гелия: квадрупольного  $2p^2\ ^1D_2$  и дипольного  $2s2p\ ^1P_1$ . Также впервые исследована зависимость этих угловых распределений от типа поляризации (циркулярная и линейная) падающего бесселева излучения и от величины угла раскрытия конуса закрученного пучка.

### Практическая значимость.

Автором продемонстрирована возможность применения избранных методов анализа для корректной интерпретации имеющихся экспериментальных данных и надёжных теоретических прогнозов для ранее не исследованных параметров, характеризующих нелинейные и сверхбыстрые

фотоионизационные процессы в интенсивных полях излучения. Созданные спектроскопические модели для неона и криптона формируют основу методики описания таких экзотических состояний как «полые» атомы и состояний «встряски» различного типа. Развитая теория угловых распределений фотоэлектронов, образующихся при облучении многоэлектронного атома бесселевым светом, открывает возможности для планирования новейших экспериментов в соответствующей области, а также позволяет предложить метод диагностики параметров такого экзотического излучения.

### **Основные положения, выносимые на защиту:**

1. При расчёте экзотических автоионизационных резонансов неона серии  $1s^{-2}np$  методом R-матрицы учёт каналов распада только с активным  $np$ -электроном ведёт к существенной переоценке (до 2 порядков) времени жизни соответствующего резонанса, в то время как дополнительный учёт каналов с пассивным  $np$ -электроном позволяет получить корректные значения.
2. При распаде экзотических автоионизационных резонансов неона серии  $1s^{-2}np$  при  $n = 3$  наблюдается существенная угловая анизотропия фотоэлектронных спектров вплоть до исчезновения линий типа  $1s^1 2s^2 2p^k m p^{k'} 2s_f^{+1} D$  в направлении поляризации поля. Эта анизотропия исчезает при  $n \geq 4$ .
3. При последовательной двойной двухфотонной ионизации криптона фотонами с энергией 24-27 эВ параметры угловой анизотропии фотоэлектронных спектров регулируются сериями автоионизационных резонансов типа  $4s^2 4p^4 ({}^1D) ns/nd$  и  $4s^1 4p^5 np$ .
4. При ионизации криптона фотонами с энергией выше 90 эВ механизм образования сателлитных линий серии  $3d^{-1} 4p^{-1} nl$  в терминах нормальной и сопряжённой встряски определяется однозначно благодаря соответствию механизма встряски конкретному каналу фотоэмиссии.
5. При последовательной кратной ионизации криптона изменение поляризации падающего излучения выражается в изменении наблюдаемых интегральных характеристик, таких как выходы ионов различной кратности, до 10%, а также в ослаблении или полном исчезновении отдельных линий фотоэлектронного спектра.
6. Для однородной макроскопической мишени из неполяризованных атомов, равномерно распределённых в плоскости, перпендикулярной направлению распространения бесселева пучка, влияние закрученности излучения на угловое распределение фотоэлектронов, представленное в виде разложения по сферическим гармоникам  $Y_{kq}(\theta_p, \phi_p)$ , проявляется в домножении каждой гармоники на малую  $d_{qq}^k(\theta_c)$  функцию Вигнера, где  $\theta_c$  – угол раскрытия конуса бесселева света.

7. При ионизации мишени из атомов гелия закрученным бесселевым светом вероятность вылета электронов под определённым углом существенно перераспределяется при увеличении угла раскрытия  $\theta_c$ , приводя к образованию новых доминирующих направлений. Максимальное проявление достигается в минимуме сечения дипольного  $2s2p^1P_1$  резонанса (60.18 эВ).

**Достоверность** полученных результатов обеспечивается использованием хорошо апробированных теоретических методов, тщательным и систематическим анализом используемых приближений. Достоверность подтверждается хорошим согласием между теоретическим моделированием и известными экспериментальными данными различных авторов, опубликованных в высокорейтинговых международных изданиях, в том числе в 4 совместных публикациях. Численные значения величин, найденные на основе сконструированных аналитических выражений, не выходят за пределы своих физических ограничений, имеют правильные асимптотические поведения, а также согласуются с формулами других авторов-теоретиков, представленными в международных публикациях, с точностью до принятых нормировок.

#### **Апробация работы.**

Основные результаты работы представлялись в виде 21 доклада (в том числе 1 приглашённого) на российских и международных конференциях: «Ломоносовские чтения» (2019, 2020, 2021, 2022, 2023), «The 5th International Symposium on Intense Short Wavelength Processes in Atoms and Molecules (ISWAMP)» (2019), «20th International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (COPIAMC)» (2019), «Science@FELs» (2020), «European XFEL Users' Meeting» (2021, 2022), «Ломоносов» (2021), «52nd Conference of the European Group on Atomic Systems (EGAS)» (2021), «32nd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC)» (2021), «33rd MAX IV User Meeting» (2021), «Концентрированные потоки энергии в космической технике, электронике, экологии и медицине» (2021, 2022), «International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation (CSCPIER)» (2022, 2023), «ЯДРО» (2022).

#### **Публикации.**

Основные результаты диссертации опубликованы в 9 печатных работах, в том числе в 8 статьях в рецензируемых научных журналах, удовлетворяющих «Положению о присуждении учёных степеней в МГУ имени М.В. Ломоносова», в 1 статье в рецензируемом научном журнале из перечня ВАК РФ. Список работ автора приведен в конце автореферата перед списком литературы.

#### **Личный вклад.**

Все представленные в диссертационной работе результаты получены автором лично или при его определяющем участии. Автор внёс решающий

вклад в разработку теоретического формализма, позволяющего рассчитывать угловые распределения фотоэлектронов под действием бесселева излучения, и в анализ всех используемых спектроскопических моделей, а также лично производил методом R-матрицы все необходимые вычисления амплитуд фотоионизационных процессов, на основании которых им производилось дальнейшее численное моделирование наблюдаемых характеристик.

### Структура и объем диссертации.

Диссертация состоит из введения, пяти оригинальных глав, заключения и списка литературы. Общей объем диссертации составляет 173 страницы, 50 рисунков, 11 таблиц, 176 библиографических ссылок и 1 приложение.

## Содержание работы

Во введении обосновывается актуальность исследований, проводимых в рамках настоящей диссертации, формулируется цель, ставятся задачи работы, излагается научная новизна и практическая значимость представляемой работы. После этого сформулированы положения, выносимые на защиту, и отмечен личный вклад автора в исследование.

Первая глава посвящена общему обзору методов, используемых при моделировании в рамках настоящей диссертации. Приведены основные уравнения многоконфигурационного метода Хартри-Фока и метода R-матрицы с *B*-сплайнами.

Вторая глава посвящена исследованию вопроса об образовании экзотического состояния с двойной вакансией на К-оболочке типа  $1s^{-2}np$  (такие состояния в литературе также называются «полый атом» или Double-Core-Hole (DCH) состояния) в ионе неона под действием импульса ЛСЭ. В начале главы приведён обзор состояния дел в обсуждаемой области, далее приведены результаты численных расчётов и их обсуждение. Для моделирования исследуемого процесса использовалась ступенчатая схема:  $Ne^+ 1s^1 2s^2 2p^6 + \gamma(E1) \rightarrow Ne^{+*} 1s^0 2s^2 2p^6 np \rightarrow Ne^{2+} + e\ell$

а) сначала происходит фотоионизация однократного иона неона, находящегося в состоянии с электронной конфигурацией  $1s^1 2s^2 2p^6$ , в результате которой после дипольного *E1* перехода  $1s \rightarrow np$  образуется исследуемый резонанс типа  $1s^{-2}np$ ;

б) далее образовавшийся резонанс типа  $1s^{-2}np$  распадается на состояние двукратно заряженного иона неона по каналу с активным (participator) или пассивным (spectator) *np*-электроном.

Методом R-матрицы с *B*-сплайнами в приближении LS-связи каналов произведены расчёты амплитуд фотоионизации для указанного процесса в двух моделях. В первой модели полагается, что резонанс  $Ne^{+*} 1s^{-2}np$  может распасться только по каналу с активным *np*-электроном (*P*articipator)

без дополнительных «встрясок» электронов — далее эта модель будет обозначаться как  $\mathcal{P}$ -модель — в результате чего могут образоваться только два конечных состояния, а именно  $1s^1 2s^2 2p^5$  и  $1s^0 2s^2 2p^6$ . Во второй модели предполагается, что дополнительно к каналам распада с активным  $np$ -электроном возможны «встряски» на  $3s$  и  $3d$  оболочки, а также каналы распада с пассивным  $np$ -электроном (Spectator) — далее эта модель будет обозначаться как  $\mathcal{SP}$ -модель — в результате чего количество конечных состояний становится значительно больше. В связи с лимитированными вычислительными мощностями в рамках  $\mathcal{SP}$ -модели список электронных конфигураций конечного иона  $\text{Ne}^{2+}$  ограничен вносящими наибольший вклад в полное сечение ионизации, а именно:

$$1s^1 2s^2 2p^5, 1s^1 2s^1 2p^6, 1s^0 2s^2 2p^6, \\ [1s^1 2s^2 2p^4, 1s^1 2s^0 2p^6, 1s^0 2s^2 2p^5, 1s^1 2s^1 2p^5, 1s^0 2s^1 2p^6] 3s/3d, \\ [1s^1 2s^2 2p^4, 1s^1 2s^0 2p^6, 1s^0 2s^2 2p^5, 1s^1 2s^1 2p^5, 1s^0 2s^1 2p^6] np (n = 3 - 8).$$

Расчёты волновых функций всех электронных конфигураций проведены многоконфигурационным методом Хартри-Фока в приближении LS-связи.

С использованием рассчитанных амплитуд фотоионизации произведено моделирование полного сечения фотопоглощения в рамках описанных моделей (результаты представлены на Рисунке 1). При анализе спектров фотопоглощения становится ясно, что пренебрежение каналами распада с пассивным  $np$ -электроном приводит к чрезвычайно сильно завышенным временам жизни ДСН-резонансов типа  $1s^{-2}np$ .

В рамках  $\mathcal{SP}$ -модели также произведено моделирование спектров фотоэлектронов, образующихся при распаде исследуемых  $1s^{-2}np$  резонансов, для различных энергий падающего импульса и в приближении «идеального» детектора с разрешением 100 мэВ. Совокупность всех фотоэлектронных спектров, представленная в виде двухпараметрической зависимости интенсивности фотоэлектронных линий от энергии фотона и кинетической энергии электрона (см. Рисунок 2), позволяет чётко увидеть резонансное поведение спектров, проявляющееся в значительном усилении линий при настройке энергии фотона в энергии резонансов  $1s^{-2}np$ , а также доминирующие распадные конфигурации иона  $\text{Ne}^{2+}$ .

Угловое распределение фотоэлектронов в дипольном приближении определяется выражением:  $\sigma(\theta) = \frac{\sigma_0}{4\pi} (1 + \beta P_2(\cos \theta))$ , где  $\sigma_0$  — полное сечение процесса;  $\theta$  — угол вылета фотоэлектрона;  $\beta$  — параметр анизотропии углового распределения;  $P_n(x)$  — полином Лежандра  $n$ -го порядка. Исследование угловой анизотропии спектров фотоэлектронов показало, что при наличии детектора высокого разрешения (100 мэВ или лучше) возможно наблюдать полное исчезновение отдельных линий, характеризующихся

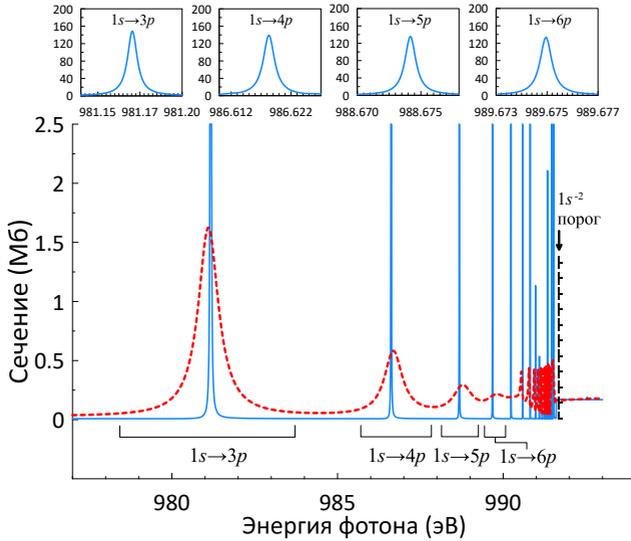


Рис. 1 — Спектр фотопоглощения в  $\mathcal{P}$  и  $\mathcal{SP}$  моделях: сплошная и пунктирная кривые, соответственно. Вставки более детально показывают спектр в  $\mathcal{P}$ -модели.

параметром анизотропии  $\beta = -1$ , при  $\theta = 90^\circ$ . Однако, это оказывается справедливо только при настройке энергии фотона в резонанс с  $n = 3$ . При  $n \geq 4$  с ростом  $n$  фотоэлектронные линии становятся всё более близкорасположенными и начинают сильно перекрываться, в результате чего угловая анизотропия практически пропадает даже в приближении «идеального» детектора.

Результаты описанного теоретического моделирования сопоставлены с результатами первого в мире эксперимента на линии SQS Европейского ЛСЭ (EuXFEL, г. Гамбург, Германия) по исследованию  $1s^{-2}np$  резонансов. Получено отличное согласие разработанной теории и экспериментальных данных по фотоэлектронным спектрам (с учётом экспериментального разрешения электронного детектора в 2.1 эВ).

Кроме того, в рамках второй главы приведены обсуждения вопроса о заселённости атомных и ионных состояний неона при многократной ионизации в течение действия импульса ЛСЭ (рассмотрены случаи длительности импульса 15 фс, 30 фс и 60 фс) при значении флюенса  $F = 1000$  фотонов/Å<sup>2</sup>.

Изложенные во второй главе результаты теоретического моделирования опубликованы в [A4; A9], а сравнение данных теории и эксперимента опубликованы в совместной работе [A8].

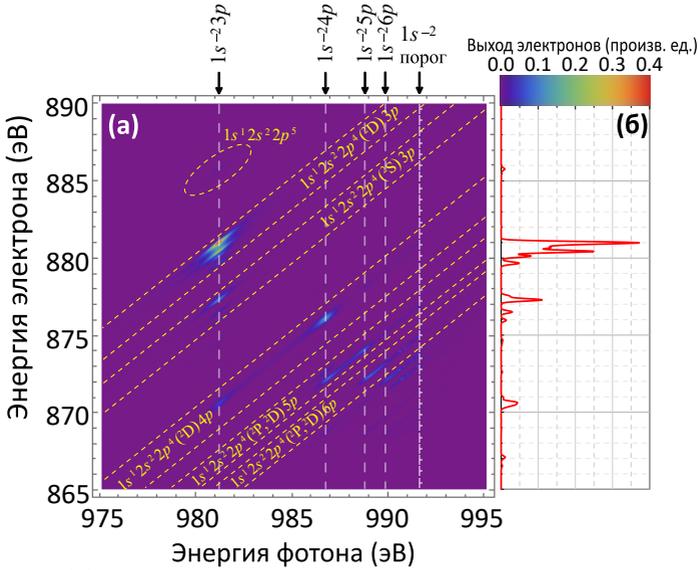
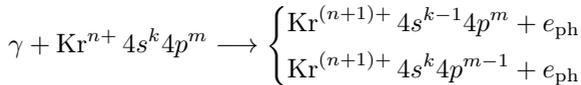
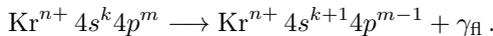


Рис. 2 — (а) Смоделированная резонансная карта для малой ширины импульса (0.1 эВ) и детектора с высоким разрешением (0.1 эВ). (б) Смоделированный фотоэлектронный спектр (красная линия) при энергии фотона 981.1 эВ, соответствующей рассчитанной энергии возбуждения  $1s^{-2}3p$ -резонанса. Эта линия соответствует сечению карты на (а) при данной энергии фотонов.

**Третья глава** посвящена исследованию ионизации внешних  $4s$  и  $4p$  оболочек криптона под действием импульса ЛСЭ. В начале главы дан краткий обзор по данной области исследований. Далее рассматривается вопрос о многократной ионизации атома криптона фотонами из одного и того же пучка излучения ЛСЭ с энергиями, не превышающими порог ионизации  $3d$ -оболочки ( $\sim 92$  эВ), чтобы не учитывать оже-распад образующихся ионных состояний. Поскольку оже-распад энергетически запрещен, основными рассматриваемыми процессами являются фотоионизация либо с оболочки  $4s$ , либо с оболочки  $4p$  с испусканием фотоэлектрона  $e_{ph}$



или радиационный переход с уровня  $4p$  на уровень  $4s$  с испусканием фотона флуоресценции  $\gamma_{fl}$



Чтобы проследить динамику заселенностей состояний с различными электронными конфигурациями, применяется метод решения скоростных

уравнений, широко используемый при описании последовательной ионизации атомов рентгеновскими импульсами ЛСЭ. Для фемтосекундных импульсов радиационными переходами  $4p \rightarrow 4s$  можно пренебречь, и тогда во временной динамике преобладает фотоионизация.

В качестве результатов моделирования представлены зависимости заселённости различных зарядовых состояний иона криптона  $\text{Kr}^{n+}$  до  $n = 3$  включительно от времени в течение действия импульса ЛСЭ длительностью 18 фс при энергиях фотона 50 эВ и 80 эВ, а также при различных значениях флюенса пучка: 100, 400 и 1000 фотонов/Å<sup>2</sup>. При тех же параметрах падающего излучения смоделированы фотоэлектронные спектры и рассчитаны выходы ионов различной кратности.

В третьей главе дополнительно исследован вопрос о зависимости наблюдаемых параметров (фотоэлектронных спектров, выходов ионов) и заселённости различных электронных конфигураций от поляризации падающего излучения и поляризации образующихся промежуточных ионных состояний. В этой связи разработан эквивалент скоростных уравнений, учитывающих поляризацию состояний, в терминах статистических тензоров для линейно и циркулярно поляризованного света в дипольном приближении. Показано, что преимущество разработанного подхода заключается в том, что при большом количестве учитываемых состояний размер системы уравнений для статистических тензоров увеличивается медленнее, чем размер системы классических скоростных уравнений, в которых непосредственно учитываются магнитные квантовые числа. Анализ наблюдаемых показал, что учёт поляризации излучения (или промежуточных состояний) может привести к изменению в выходах ионов до 10% в зависимости от режима облучения (см. Рисунок 3), а также к подавлению отдельных линий в фотоэлектронных спектрах.

Кроме того, третья глава содержит обсуждение влияния ридберговских автоионизационных состояний типа  $4s^2 4p^4 ({}^1D) ns/nd$  и  $4s^1 4p^5 np$  на сечения фотопоглощения, спектры и угловые распределения фотоэлектронов (УРФ) при двухфотонной двойной ионизации криптона. С одной стороны показана важность учёта этих состояний для более корректного описания имеющихся экспериментальных данных (результаты теоретического моделирования сопоставлены с данными эксперимента на ЛСЭ FLASH (г. Гамбург, Германия)). С другой – впервые проведено моделирование ранее не исследованных фотоэлектронных спектров (см. Рисунок 4), зависимостей параметров анизотропии УРФ  $\beta_2$  и  $\beta_4$  от энергии фотона для отдельных линий фотоэлектронного спектра при двухфотонной двойной фотоионизации криптона.

Изложенные в третьей главе результаты теоретического моделирования и разработки аналога системы скоростных уравнений в терминах статистических тензоров опубликованы в [A2; A7], а сравнение данных теории и эксперимента опубликованы в совместных работах [A5; A6].

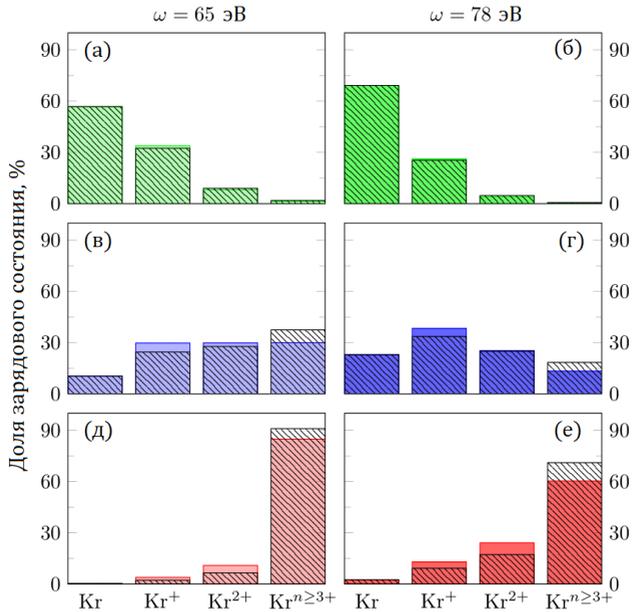


Рис. 3 — Выходы ионов различной кратности при трех флюенсах: (а,б)  $F = 100$  фотонов/Å<sup>2</sup>, (в,г)  $F = 400$  фотонов/Å<sup>2</sup> и (д,е)  $F = 1000$  фотонов/Å<sup>2</sup> при энергиях фотона 65 эВ (а,в,д) и 78 эВ (б,г,е). Заштрихованные области показывают результаты для неполяризованного излучения.

В четвёртой главе представлено продолжение цикла работ по ионизации атома криптона, связанное с большими значениями энергий падающего излучения, а именно превышающих порог ионизации  $3d$ -оболочки. Рассматривается вопрос об образовании так называемых корреляционных спутных линий фотоэлектронного спектра криптона типа  $3d^{-1}4p^{-1}nl$  и  $3d^{-1}4s^{-1}nl$  (см. Рисунок 5). Такого типа линии образуются при ионизации  $3d$ -оболочки с последующей «встряской» электрона из  $4s$  или  $4p$  оболочек в более высокие связанные состояния из-за изменения эффективного потенциала системы. В рамках настоящего диссертационного исследования показано, что механизм образования корреляционных спутных линий может быть определён однозначно в терминах нормальной и сопряжённой «встряски» при условии, что в континууме среди нескольких возможных каналов распада спутной линии будет преобладать конкретный тип электронной волны (конкретное значение её орбитального момента  $l$ ). Энергетические зависимости параметров анизотропии УРФ  $\beta$  для отдельных спутных линий при этом представляют дополнительный критерий в пользу определения того или иного механизма.

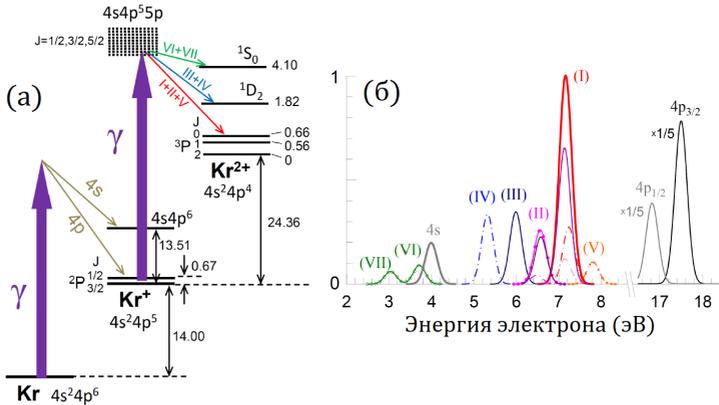


Рис. 4 — (а) Схема процесса двухфотонной двойной ионизации криптона (в произвольном масштабе). Числами обозначены энергии уровней в эВ. Наблюдаемые электроны показаны цветными стрелками. Жирные линии точек показывают автоионизационные состояния. (б) Смоделированный фотоэлектронный спектр криптона для энергии фотона  $\hbar\omega = 31.5$  эВ. Обозначение линий соответствует схеме на панели (а). Спектры нормированы на единицу в максимуме самой сильной ионной линии.

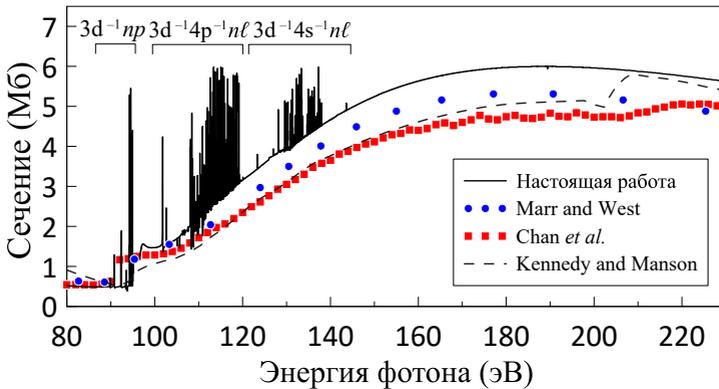


Рис. 5 — Полное сечение фотоионизации атома криптона. Сплошная черная кривая - расчеты методом R-матрицы в рамках настоящей работы; пунктирная черная кривая - теоретические результаты [3]; квадраты - экспериментальные данные [4]; кружки - экспериментальные данные [5]. Группы автоионизационных резонансов в Kr и Kr<sup>+</sup> указаны в верхней части рисунка.

Теоретические исследования в рамках четвёртой главы сопровождали эксперимент, проведённый с плоскополяризованным излучением на

синхротроне 4го поколения MAX IV (г. Лунд, Швеция). В нём были получены спектры корреляционных спутеллитных линий, зарегистрированные при плоскости поляризации параллельной и перпендикулярной оси приёма электронов анализатора, при различных энергиях падающего излучения в диапазоне 120-210 эВ. Это позволило впервые измерить зависимость параметров анизотропии для отдельных корреляционных спутеллитных линий от энергии падающего излучения. В связи с этим четвёртая глава содержит результаты сопоставления теоретических и экспериментальных фотоэлектронных спектров и энергетических зависимостей параметров анизотропии УРФ, а также большое количество поканальных сечений для отдельных спутеллитных линий в наблюдаемом экспериментально спектре, позволивших определить механизмы образования соответствующих линий.

Изложенные в четвёртой главе результаты опубликованы в совместной работе [A3].

**Пятая глава** посвящена исследованию вопроса об ионизации закрученным бесселевым светом многоэлектронных атомов. Ранее в литературе активно обсуждался вопрос о дискретных переходах в многоэлектронных атомах под действием бесселева излучения, однако, ионизация была рассмотрена только в рамках дипольного приближения с водородоподобными волновыми функциями атома. В рамках настоящей диссертационной работы удалось разработать теоретический аппарат для вычисления угловых распределений фотоэлектронов, вылетающих из многоэлектронного атома под действием бесселева света, считая, что облучаемая мишень состоит из неполяризованных атомов, равномерно распределённых в плоскости, перпендикулярной направлению распространения закрученного пучка. При этом никаких ограничений на количество учитываемых мультиполей не накладывается, как и на структуру волновых функций (т.е. матричный элемент мультипольного оператора может быть вычислен в произвольной модели). Более того, рассмотрены случаи как циркулярно поляризованного бесселева света, так и линейно поляризованного.

В пятой главе доказано оригинальное утверждение о том, что УРФ при ионизации бесселевым светом различной поляризации может быть получено из УРФ при ионизации плоской волной путём домножения каждой сферической гармоники  $Y_{kq}(\theta_p, \phi_p)$  на малую  $D$ -функцию Вигнера вида  $d_{qq}^k(\theta_c)$ , зависящую от угла раскрытия конуса закрученного света  $\theta_c$  (см. Рисунок 6).

Разработанный математический аппарат применён к случаю ионизации атома гелия в области низших автоионизационных дипольного  $2s2p^1P_1$  и квадрупольного  $2p^2^1D_2$  резонансов. Эта область энергий выбрана в связи с тем, что дипольный резонанс в сечении ионизации имеет асимметричный фановский профиль с минимумом, достигающим околонулевого значения. Это позволяет недипольным эффектам выйти на передний план, несмотря

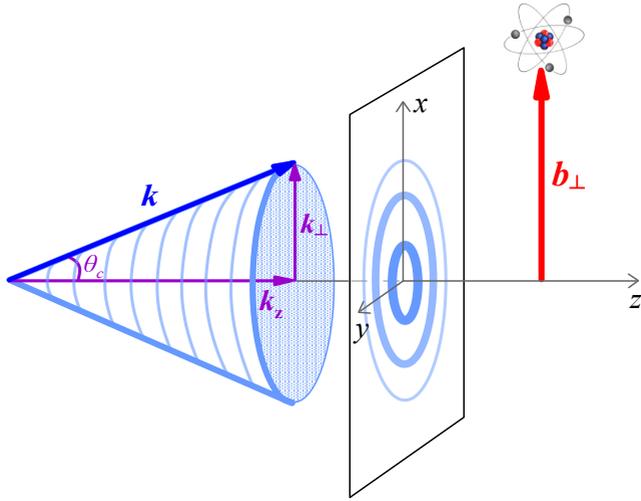


Рис. 6 — Обзор параметров бesselова пучка, распространяющегося вдоль оси  $z$  и положения атома-мишени, характеризуемого прицельным параметром  $b_{\perp} = (b_x; b_y)$ . В плоскости  $xy$  схематически показано распределение интенсивности бesselова излучения, которое представляет собой концентрические кольца.

на то, что при других энергиях квадрупольный вклад на  $\sim 5$  порядков ниже дипольного. Так как УРФ при ионизации закрученным светом зависит не только от энергии фотона, но и от параметра  $\theta_c$ , то можно ожидать изменения формы УРФ не только в зависимости от энергии излучения, но и при изменении угла  $\theta_c$ . Вычисление угловых распределений при ионизации гелия показало, что в минимуме дипольного резонанса возникает сильная асимметрия вылета фотоэлектронов «вперёд-назад», но дополнительное изменение угла  $\theta_c$  приводит к ещё большей модуляции формы этих распределений с общим перераспределением вероятности вылета фотоэлектронов и образованием новых доминирующих направлений.

При ионизации атома циркулярно поляризованным бesselевым светом УРФ, полученное с помощью доказанного в четвёртой главе утверждения, с учётом квадрупольных поправок выглядит следующим образом:

$$\left( \frac{d\sigma^{(\text{tw,circ})}}{d\Omega} \right) = \frac{\sigma_0}{4\pi} \left( 1 - \frac{\beta}{2} P_2(\cos \theta_p) P_2(\cos \theta_c) + \left( \delta + \frac{\gamma}{5} \right) P_1(\cos \theta_p) P_1(\cos \theta_c) - \frac{\gamma}{5} P_3(\cos \theta_p) P_3(\cos \theta_c) \right),$$

где  $\sigma_0$  — полное сечение процесса;  $\theta_p$  — азимутальный угол вылета фотоэлектрона;  $\beta, \gamma, \delta$  — параметры анизотропии УРФ;  $P_n(x)$  — полином Лежандра  $n$ -го порядка.

Если ввести величины:

$$\begin{aligned}\beta_{\text{circ}}^{\text{tw}} &= \beta P_2(\cos \theta_c), \\ \gamma_{\text{circ}}^{\text{tw}} &= \gamma P_3(\cos \theta_c), \\ \delta_{\text{circ}}^{\text{tw}} &= \left( \delta + \frac{\gamma}{5} \right) P_1(\cos \theta_c) - \frac{\gamma}{5} P_3(\cos \theta_c),\end{aligned}$$

то УРФ может быть параметризовано как

$$\begin{aligned}\left( \frac{d\sigma^{(\text{tw}, \text{circ})}}{d\Omega} \right) &= \frac{\sigma_0}{4\pi} \left( 1 - \frac{\beta_{\text{circ}}^{\text{tw}}}{2} P_2(\cos \theta_p) + \right. \\ &\left. + \left( \delta_{\text{circ}}^{\text{tw}} + \frac{\gamma_{\text{circ}}^{\text{tw}}}{5} \right) P_1(\cos \theta_p) - \frac{\gamma_{\text{circ}}^{\text{tw}}}{5} P_3(\cos \theta_p) \right),\end{aligned}$$

что полностью повторяет форму выражения для УРФ в случае ионизации циркулярно поляризованной плоской волной. Отсюда следует, что если провести эксперимент по фотоионизации как плоским, так и закрученным (бесселевым) излучением с одной и той же мишенью и выделить параметры анизотропии  $\beta$ ,  $\beta_{\text{circ}}^{\text{tw}}$ ,  $\gamma$ ,  $\gamma_{\text{circ}}^{\text{tw}}$ ,  $\delta$ ,  $\delta_{\text{circ}}^{\text{tw}}$  из измеренных УРФ, то становится возможным провести диагностику бесселева пучка, а именно либо определить параметр  $\theta_c$ , если он по какой-то причине неизвестен, либо оценить качество подготовки закрученного пучка путем сравнения ожидаемых и экспериментально полученных значений  $\theta_c$ .

Изложенные в пятой главе результаты опубликованы в [A1].

В **заклЮчении** приведены основные результаты работы, которые могут быть сформулированы следующим образом:

1. Разработана теоретическая модель, учитывающая каналы распада экзотических автоионизационных резонансов неона серии  $1s^{-2}np$  с активным (participator) и пассивным (spectator)  $np$ -электроном, которая позволяет корректно описать энергетические ширины и времена жизни резонансов. При этом оказалось, что: доминирующими линиями в фотоэлектронных спектрах являются соответствующие распаду  $1s^{-2}np$ -резонансов неона на конечные конфигурации иона типа  $1s^1 2s^2 2p^4 np$  (до 70% общего вклада); наиболее слабые линии (менее 3% общего вклада) соответствуют каналам с активным  $np$ -электроном; немаловажными (до 12% общего вклада) являются процессы со встряской электрона типа  $np \rightarrow n'p$  ( $n' > n$ ). Результаты находятся в отличном согласии с данными эксперимента, проведённого на линии SQS Европейского ЛСЭ (EuXFEL). Численное моделирование показало, что в условиях «идеального» электронного детектора (разрешение  $\sim 0.1$  эВ) угловая анизотропия наиболее ярко наблюдается при энергии фотона, настроенной

в  $1s^{-2}3p$ -резонанс (981.1 эВ) и проявляется в полном исчезновении линий, соответствующих состояниям остаточного иона с конфигурацией  $1s^12s^22p^43p^{2S_f+1}D$ , в направлении поляризации поля. При настройке энергии фотона на более высокие  $1s^{-2}np$ -резонансы ( $n \geq 4$ ) угловая анизотропия спектров исчезает даже в условиях «идеального» детектора из-за близкого расположения и сильного перекрывания линий.

2. Численное моделирование показало, что заселённости различных электронных конфигураций ионов криптона в процессе многократной ионизации при энергиях ниже порога ионизации  $3d$ -оболочки, спектры фотоэлектронов и выходы ионов различной кратности демонстрируют сильную зависимость от энергии падающего излучения и его параметров (таких как длительность импульса и флюенс пучка). Разработанный аналог системы скоростных уравнений в терминах статистических тензоров позволил продемонстрировать важность учёта поляризации падающего излучения и промежуточных ионных состояний, которые могут изменять выходы ионов различной кратности до 10%, а также подавлять отдельные линии фотоэлектронного спектра.
3. Разработана теоретическая модель процесса двухфотонной двойной ионизации криптона, учитывающая ридберговские автоионизационные состояния серий  $4s^24p^4(^1D)ns/nd$  и  $4s^14p^5np$ . Моделирование показало важность учёта этих состояний при сравнении с экспериментальными данными, полученным на ЛСЭ FLASH. В рамках разработанной модели предсказаны ранее не исследованные зависимости параметров анизотропии угловых распределений фотоэлектронов от энергии излучения, а также смоделированы соответствующие фотоэлектронные спектры.
4. Разработана теоретическая модель для описания образования корреляционных сателлитных линий серий  $3d^{-1}4p^{-1}nl$  и  $3d^{-1}4s^{-1}nl$  при ионизации атома криптона излучением с энергией выше порога ионизации  $3d$ -оболочки. В рамках построенной модели впервые рассчитаны зависимости параметров угловой анизотропии для отдельных корреляционных сателлитных линий и доказано, что при наличии доминирующего канала распада сателлитного состояния механизм его образования в терминах нормальной и сопряжённой «встряски» электронов может быть определён однозначно. Результаты теоретического моделирования фотоэлектронных спектров и параметров анизотропии угловых распределений фотоэлектронов находятся в хорошем согласии с данными соответствующего эксперимента, проведённого на синхротроне 4го поколения MAX IV.
5. Разработана теория угловых распределений фотоэлектронов, образующихся при ионизации многоэлектронного атома закрученным

бесселевым светом. В рамках этой теории доказано оригинальное утверждение о возможности получить выражение для УРФ при ионизации бесселевым светом циркулярной или линейной поляризации из выражения для УРФ при ионизации плоской волной путём домножения каждой сферической гармоники вида  $Y_{kq}(\theta_p, \phi_p)$  на малую  $D$ -функцию Вигнера вида  $d_{qq}^k(\theta_c)$ , где  $\theta_c$  – угол раскрытия конуса закрученного пучка, при условии, что мишень является однородной и состоящей из атомов, равномерно распределённых в плоскости, перпендикулярной оси распространения бесселева пучка. Утверждение справедливо для произвольного числа учитываемых мультиполей, матричный элемент мультипольного оператора может быть рассчитан в рамках любой модели многоэлектронного атома.

6. Разработанная теория УРФ при ионизации бесселевым светом циркулярной и линейной поляризации применена к случаю атома гелия в области его низших автоионизационных дипольного и квадрупольного резонансов. Численным моделированием продемонстрировано, что в минимуме профиля дипольного  $2s2p^1P_1$  резонанса квадрупольные эффекты приводят к сильной модуляции формы УРФ, а увеличение угла  $\theta_c$  ведёт к общему перераспределению вероятности вылета фотоэлектрона во всех направлениях и образовании доминирующих направлений, отличающихся от первоначальных. Предложена методика экспериментальной диагностики бесселевых пучков (определения параметра  $\theta_c$ ), основанная на специальной параметризации выражений для УРФ.

## Список публикаций по теме диссертации

*Публикации в рецензируемых научных журналах, удовлетворяющих Положению о присуждении учёных степеней в МГУ имени М.В. Ломоносова:*

- A1. **Kiselev M. D.**, Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N. *Angular distribution of photoelectrons generated in atomic ionization by the twisted radiation* // Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2023. — Vol. 108, no. 2. — P. 023117, **IF=2.9 (WoS)**. Общий объём статьи=1.63 п.л., личный вклад=1.3 п.л.
- A2. Gryzlova E. V., **Kiselev M. D.**, Popova M. M., Grum-Grzhimailo A. N. *Evolution of the ionic polarization in multiple sequential ionization: general equations and an illustrative example* // Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2023. — Vol. 107, no. 1. — P.

- 013111, **IF=2.9 (WoS)**. Общий объём статьи=1.38 п.л., личный вклад=0.69 п.л.
- A3. **Kiselev M. D.**, Reinhardt M., Patanen M., Kivimäki A., Powis I., Zatsarinny O., Grum-Grzhimailo A. N., Holland D. M. P. *An experimental and theoretical study of the Kr 3d correlation satellites* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2022. — Vol. 55, no. 5. — P. 055002, **IF=1.6 (WoS)**. Общий объём статьи=2 п.л., личный вклад=1.4 п.л.
- A4. **Kiselev M. D.**, Gryzlova E. V., Burkov S. M., Zatsarinny O., Grum-Grzhimailo A. N. *Mechanisms of 1s Double-Core-Hole Excitation and Decay in Neon* // ATOMS. — 2021. — Vol. 9, no. 4. — P. 114, **IF=1.8 (WoS)**. Общий объём статьи=0.75 п.л., личный вклад=0.6 п.л.
- A5. Varvarezos L., Düsterer S., **Kiselev M. D.**, Boll R., Bomme C., De Fanis A., Erk B., Passow C., Burkov S. M., Hartmann G., Ilchen M., Johnsson P., Kelly T. J., Manschwetus B., Mazza T., Meyer M., Rompotis D., Zatsarinny O., Gryzlova E. V., Grum-Grzhimailo A. N., Costello J. T. *Near-threshold two-photon double ionization of Kr in the vacuum ultraviolet* // Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2021. — Vol. 103, no. 2. — P. 022832, **IF=2.9 (WoS)**. Общий объём статьи=1.13 п.л., личный вклад=0.36 п.л.
- A6. **Kiselev M. D.**, Carpeggiani P. A., Gryzlova E. V., Burkov S. M., Reduzzi M., Dubrouil A., Faccialá D., Negro M., Ueda K., Frassetto F., Stienkemeier F., Ovcharenko Y., Meyer M., Fraia M. D., Plekan O., Prince K. C., Callegari C., Sansone G., Grum-Grzhimailo A. N. *Photoelectron spectra and angular distribution in sequential two photon double ionization in the region of autoionizing resonances of ArII and KrII* // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2020. — Vol. 53, no. 24. — P. 244006, **IF=1.6 (WoS)**. Общий объём статьи=1.38 п.л., личный вклад=0.44 п.л.
- A7. Gryzlova E. V., **Kiselev M. D.**, Popova M. M., Zubekhin A. A., Sansone G., Grum-Grzhimailo A. N. *Multiple Sequential Ionization of Valence  $n = 4$  Shell of Krypton by Intense Femtosecond XUV Pulses* // ATOMS. — 2020. — Vol. 8, no. 4. — P. 80, **IF=1.8 (WoS)**. Общий объём статьи=0.88 п.л., личный вклад=0.7 п.л.
- A8. Mazza T., Ilchen M., **Kiselev M. D.**, Gryzlova E. V., Baumann T. M., Boll R., De Fanis A., Grychtol P., Montaño J., Music V., Ovcharenko Y., Rennhack N., Rivas D. E., Schmidt P., Wagner R., Ziolkowski P., Berrah N., Erk B., Johnsson P., Küstner-Wetekam C., Marder L., Martins M., Ott C., Pathak S., Pfeifer T., Rolles D., Zatsarinny O., Grum-Grzhimailo A. N., Meyer M. *Mapping Resonance Structures in Transient Core-Ionized Atoms* // Physical Review X. — 2020. — Vol. 10, no. 4. —

Р. 041056, **IF=12.5 (WoS)**. Общий объём статьи=1 п.л., личный вклад=0.32 п.л.

**Публикация в рецензируемом научном журнале из перечня ВАК РФ:**

A9. **Киселев М. Д.**, Грызлова Е. В., Грум-Гржимайло А. Н., Zatsarinny O. *Экзотические дырочные состояния атомов, образуемые в поле рентгеновского лазера на свободных электронах: двойные К-вакансии в неоне // Ученые Записки Физического Факультета МГУ.* — 2019. — Т. 1, № 3. — С. 1930410, **IF=0.074 (РИНЦ)**. Общий объём статьи=0.5 п.л., личный вклад=0.4 п.л.

## Список литературы

1. Fischer C. F., Brage T., Johansson P. *Computational Atomic Structure: An MCHF Approach.* — IOP Publishing: Bristol, 1997.
2. Zatsarinny O. *BSR: B-spline atomic R-matrix codes // Computer Physics Communications.* — 2006. — Vol. 174. — P. 273—356.
3. Kennedy D. J., Manson S. T. *Photoionization of the Noble Gases: Cross Sections and Angular Distributions // Phys. Rev. A.* — 1972. — Vol. 5, issue 1. — P. 227—247.
4. Chan W. F., Cooper G., Guo X., Burton G. R., Brion C. E. *Absolute optical oscillator strengths for the electronic excitation of atoms at high resolution. III. The photoabsorption of argon, krypton, and xenon // Phys. Rev. A.* — 1992. — Vol. 46. — P. 149.
5. Marr G. V., West J. B. *Absolute photoionization cross-section tables for helium, neon, argon, and krypton in the VUV spectral regions // At. Data Nucl. Data Tables.* — 1976. — Vol. 18, no. 5. — P. 497.