

ОБЪЕДИНЁННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
ЛАБОРАТОРИЯ ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

На правах рукописи

Серов

Серов Владислав Викторович

**РАСЧЕТ ИОНИЗАЦИИ И ДИССОЦИАЦИИ АТОМОВ И
МОЛЕКУЛ СВЕРХКОРОТКИМИ ЛАЗЕРНЫМИ
ИМПУЛЬСАМИ И УДАРАМИ ЧАСТИЦ**

1.3.3. — Теоретическая физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

доктора физико-математических наук

Саратов — 2022

Работа выполнена в ФГБОУ ВО «Саратовский национальный исследовательский государственный университет имени Н.Г. Чернышевского»

Научный консультант: **Дербов Владимир Леонардович**
доктор физико-математических наук, профессор

С электронной версией диссертации можно ознакомиться на официальном сайте Объединенного института ядерных исследований в информационно-телекоммуникационной сети «Интернет» по адресу: <https://dissertations.jinr.ru/>.

С печатной версией диссертации можно ознакомиться в Научно-технической библиотеке Объединенного института ядерных исследований (г. Дубна Московской области, ул. Жолио-Кюри, д. 6).

Технический секретарь
диссертационного совета
кандидат физико-математических наук

Ю. М. Быстрицкий

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. После появления технологий создания мощных сверхкоротких лазерных импульсов продолжительностью всего несколько оптических периодов стали возможными радикально новые способы измерения и контроля быстро протекающих процессов в атомах и молекулах. Электрическое поле лазерного излучения позволяет манипулировать и отслеживать движение электронов на атомных масштабах. Орбитальный период электрона в основном состоянии атома водорода в боровской модели — около 150 аттосекунд. Вследствие этого, аттосекунда (10^{-18} сек) — типичный масштаб времени для движения электронов в атомах и молекулах. Поэтому данную новую область науки называют аттосекундной физикой. Хотя аттосекундные технологии пока что применяются только для исследования систем не сложнее простых молекул, они имеют большой потенциал не только для физики, но и для химии и биохимии. Ультрабыстрая электронная динамика, инициированная светом, играет ключевую роль в любых химических и биологических процессах, где происходит перенос электронов, например на начальных стадиях фотосинтеза.

Ионизация — один из наиболее фундаментальных процессов в природе. Представляет практический и теоретический интерес, происходит ли он мгновенно или занимает некоторое конечное время. Особенно это касается ионизации, происходящей за счет эффекта туннелирования. Вокруг того, является ли мгновенным туннелирование, уже многие годы ведутся активные дискуссии. Важность данного вопроса вызвана тем, что он связан с более общим — что происходит с частицей в классически не доступной области, что в свою очередь уже касается интерпретаций квантовой механики.

Атомные и молекулярные реакции с образованием нескольких частиц характеризуются полностью дифференциальным сечением (ПДС), т.е. сечением реакции, дифференциальным по всем переменным. Для его измерения требуется регистрация импульсов всех продуктов реакции в многократном совпадении. Это достигается с помощью таких экспериментальных методик, как спектроскопия импульсов ионов отдачи холодной мишени (Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy, COLTRIMS). Для того, чтобы измерить задержку вылета электрона при ионизации, используются различные экспериментальные схемы, в общем сводящиеся к базовой схеме «накачка–зондирование», где один или серия импульсов электромагнитного излучения вызывает ионизацию, а поле импульса зондирования (который может быть тем же самым, что вызвал ионизацию) воздействует на после-

ионизационную динамику электрона таким образом, что ПДС зависит от времени ионизации. К наиболее часто используемым экспериментальным схемам можно отнести аттосекундную развертку (аттосекундную стрик-камеру), аттосекундную угловую развертку (атточасы), и реконструкцию аттосекундных биений путем интерференции двухфотонных переходов (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions, RABBITT).

В аттосекундной развертке и атточасах используются импульсы лазерного инфракрасного излучения высокой интенсивности. Воздействие столь сильного поля на электроны молекулы невозможно описать в рамках теории возмущений, и требуется прямое решение временного уравнения Шредингера (ВУШ). При этом, хотя продолжительность инфракрасного импульса мала по меркам лазерной физики (порядка 10 оптических периодов), в сравнении с характерными временами динамики электронов в атоме она весьма велика. Решение ВУШ для длительных промежутков времени требует специальных подходов. Другой проблемой является корректный учет влияния кулоновского поля остаточного иона на улетающий электрон. В аттосекундной развертке и RABBITT это влияние проявляется в возникновении так называемого кулоновско-лазерного взаимодействия, а в атточасах — в виде углового сдвига, вызванного резерфордским рассеянием электрона на ионе. Учет влияния дальнедействующего кулоновского «хвоста» потенциала требует моделирования движения электрона до большого расстояния от иона. Помимо этого, необходимы и простые модели, теоретически описывающие процессы, происходящие с электронами в молекулах при измерениях с помощью вышеперечисленных экспериментальных схем, как для более глубокого понимания их физического смысла, так и для получения простых количественных соотношений, позволяющих делать оценки без громоздких расчетов.

Для разработки теоретических методов для задач аттосекундной физики можно использовать в качестве основы подходы, ранее развитые для расчета ионизации непродолжительным внешним воздействием, например для процессов вроде ударной ионизации молекул заряженными частицами. Ударная ионизация, наряду с двойной ионизацией — процессы, изучение которых важно для понимания проявлений корреляций между электронами. Корреляции между электронами играют важную роль в многих явлениях физики конденсированного состояния, химии и биохимии. Но исследовать их удобнее на более простых случаях.

Еще одной важной проблемой, имеющим как практическое, так и фундаментально-теоретическое значение, являются проявления квантовомеханических эффектов в реакциях ионизации и диссоциации. Образцовым квантовомеханическим эффектом, на примере которого часто объясняются парадоксы квантовой механи-

ки, является интерференция одиночных электронов после прохождения по двум путям в аналоге опыта Юнга, и ее исчезновение при наблюдении за электронами. Однократная ионизация двухатомной молекулы может служить природной моделью данного опыта. Электрон, испускаемый одновременно из двух центров молекулы, интерферирует сам с собой. При однократной ионизации это явление дает характерную интерференционную картину в угловом распределении испущенных электронов. Но его проявления в более сложных процессах, в которых играют роль еще и корреляции между частицами, таких как двойная ионизация или диссоциативная ионизация молекулы, еще не вполне изучены. Взаимодействие интерферирующей частицы с другими частицами может служить простым аналогом процесса наблюдения, и его исследование на простых реакциях может дать более глубокое понимание роли наблюдателя в квантовой механике, и границах масштабов систем, за которыми квантовая механика переходит в классическую.

Диссоциативная фотоионизация двухатомной молекулы является примером простейшей химической реакции. Изучение ее актуально в связи с тем, что на ней удобно исследовать связь степеней свободы молекулы, имеющих совершенно разные характерные временные масштабы изменения — электронных (аттосекунды) и колебательных (фемтосекунды). Моделирование процессов, для которых важно точное описание на двух временных масштабах, отличающихся в тысячи раз, требуют новых теоретических подходов.

Цель диссертационной работы состоит в исследовании быстропротекающих процессов в атомах и молекулах, вызываемых сверхкороткими лазерными импульсами, ударами заряженных частиц и высокоэнергичными фотонами, и выявлении их механизмов.

Для достижения этой цели были решены следующие **задачи**:

1. Разработка методов решения временного уравнения Шредингера для моделирования поведения электронов молекулы в сильном переменном внешнем поле.
2. Разработка методов решения шестимерного стационарного уравнения Шредингера для описания двухкратной ионизации двухэлектронных молекул.
3. Разработка методов извлечения амплитуд ионизации из рассчитанной волновой функции.
4. Численный расчет многократного дифференциального сечения одинарной и двойной ионизации и диссоциации молекул сверхкороткими лазерными импульсами, ударами заряженных частиц и высокоэнергичных фотонов.

5. Построение простых теоретических моделей для интерпретации результатов, полученных путем численного моделирования процессов одинарной и двойной ионизации и диссоциации молекул сверхкороткими лазерными импульсами, ударами заряженных частиц и высокоэнергичных фотонов, и понимания механизмов возникающих при данных процессах явлений.

Научная новизна работы состоит как в обнаружении ранее не исследованных физических эффектов и закономерностей для рассмотренных процессов, так и в разработке оригинальных методов и подходов для их расчета и анализа. Все основные результаты работы были получены впервые. В частности:

1. Предсказан новый эффект нарушения симметрии в распределении продуктов диссоциации при диссоциативной фотоионизации молекулы водорода, вызванный отложенным по времени воздействием улетевшего электрона на остаточный ион H_2^+ .
2. Впервые были рассчитаны показания молекулярных атточасов, основанных на фотоионизации молекулы водорода за счет туннельного механизма и однофотонной фотодиссоциации остаточного иона H_2^+ мощным инфракрасным импульсом с поляризацией, близкой к круговой.
3. Разработан новый метод для расчета ионизации молекул под одновременным воздействием сверхкоротких ультрафиолетовых импульсов и длительных инфракрасных лазерных импульсов, что типично для экспериментальных схем типа «накачка–зондирование». Этот метод позволяет учесть длительное движение электрона после ионизации под воздействием кулоновского поля остаточного иона и поля инфракрасного импульса.
4. Предложен новый алгоритм для быстрого дискретного ортогонального сферического преобразования Бесселя на равномерной сетке, на основе которого и квазиспектрального метода создана численная схема для решения временного уравнения Шредингера для молекулы в сильном переменном внешнем поле.
5. Разработан новый численный метод для решения шестимерного временного уравнения Шредингера на основе динамического преобразования Чанга–Фано.
6. Впервые было рассчитано ПДС ионизации молекул водорода и азота ударом электрона промежуточных энергий с помощью численного метода на основе параксиального приближения для рассеянного электрона.

Основные результаты и положения, выносимые на защиту:

1. Предсказан эффект нарушения симметрии в распределении продуктов диссоциации при диссоциативной фотоионизации молекулы водорода, вызванный отложенным по времени воздействием улетевшего электрона на остаточный ион H_2^+ . Время задержки воздействия связано с временем, необходимым для расширения межъядерного расстояния в остаточном ионе H_2^+ до значения, при котором становится возможным переход из четного основного состояния в диссоциативное нечетное состояние под действием слабого внешнего поля. Предсказанный эффект был впоследствии открыт в эксперименте.
2. Рассчитаны сдвиги пиков угловых распределений электронов и протонов для молекулярных атточасов, в которых последовательно происходят фотоионизация молекулы водорода за счет туннельного механизма и однофотонная фотодиссоциация остаточного иона H_2^+ . Продемонстрировано, что сдвиг пика углового распределения протонов равен нулю вследствие того, что вероятность фотодиссоциации H_2^+ эллиптически поляризованным фотоном максимальна при совпадении направления молекулярной оси с главной осью эллипса поляризации. Путем сравнения с аналогом молекулы с юкавовским короткодействующим потенциалом показано, что время туннелирования электрона при туннельном механизме фотоионизации сильным лазерным полем равно нулю, а наблюдающееся в атточасах отклонение пика распределения фотоэлектронов от направления максимума лазерного поля вызвано влиянием кулоновского поля остаточного иона.
3. Рассчитаны углы сдвига атточасов для атомов инертных газов в широком диапазоне интенсивностей лазерного поля. Показано, что форма зависимости угла сдвига от интенсивности соответствует предсказываемой моделью Келдыша–Резерфорда. Исследованы зависимости угла сдвига и других наблюдаемых от магнитного квантового числа оболочки, с которой происходит ионизация, и дана теоретическая интерпретация этих зависимостей.
4. Предложены и проверены классические модели для описания влияния кулоновского поля остаточного иона и инфракрасного лазерного поля на результаты экспериментов различных схем по измерению задержки испускания электрона при фотоионизации. Развита классическая модель для описания измерения задержки времени ионизации методом аттосекундной развертки, и получена аналитическая формула для поправки на кулоновско-лазерное

взаимодействие. Разработано динамическое расширение модели Келдыша–Резерфорда для описания атточасов, в котором в качестве начальных условий классического уравнения для расчета движения фотоэлектрона после туннелирования используются скорость и положение электрона в момент выхода из режима туннелирования, полученные из теории туннельной ионизации Келдыша. Показано, что данная модель хорошо предсказывает конечный средний радиальный импульс фотоэлектрона, угловое распределение радиального импульса и положение его угловых экстремумов.

5. Показано, что большие положительные и отрицательные вигнеровские времена испускания электронов при ионизации двухатомных молекул возникают при энергии, при которой амплитуда дипольной парциальной волны испущенного электрона обращается в нуль, т.е. что они совпадают с т.н. куперовским минимумом. Путем аналитического рассмотрения эволюции испущенного волнового пакета показано, что отрицательное вигнеровское время в этом случае не приводит к нарушению принципа причинности.
6. Разработан метод для расчета ионизации молекул под одновременным воздействием сверхкоротких ультрафиолетовых импульсов и длительных инфракрасных лазерных импульсов, типичного для экспериментальных схем типа «накачка–зондирование», позволяющий точно учесть длительное движение электрона после ионизации под воздействием кулоновского поля остаточного иона и поля инфракрасного импульса. Метод основан на методе сопутствующих координат и быстром сферическом преобразовании Бесселя. С помощью данного метода рассчитаны угловые и энергетические распределения задержки испускания электрона при ионизации молекулярного иона H_2^+ , молекул H_2 и H_2O в лазерном поле, типичном для экспериментов схемы RABBITT (реконструкция аттосекундных биений путем интерференции двухфотонных переходов). Продемонстрировано, что вигнеровское время задержки находится под сильным влиянием двухцентрковой интерференции, а поправка на лазерно–кулоновское взаимодействие зависит только от заряда остаточного иона после ионизации и не зависит от природы мишени. Показано, что разность задержек испускания наивысшей заполненной орбитали H_2O и орбитали, находящейся под наивысшей заполненной почти равна нулю для случайно ориентированной молекулы, но становится заметной для молекулы с фиксированной ориентацией.
7. Рассчитано полностью дифференциальное сечение (ПДС) диссоциативной фотоионизации H_2 циркулярно-поляризованными фотонами большой энер-

гии с квантовомеханическим учетом движения ядер. Путем сравнения с моделью диссоциации на основе приближения классического отражения показано воздействие отдачи электрона на относительное движение ядер. Продемонстрировано влияние двухцентральной интерференции на вероятность диссоциации. Построена теоретическая модель однофотонной двойной фотоионизации за счет механизма выбивания первичным ионизированным электроном вторичного, в которой используется явное разделение этого процесса на две стадии — однократной фотоионизации и ионизации остаточного иона ударом быстрого электрона, и амплитуды каждой из стадий рассчитываются численно. Показано, что двухцентровая интерференция на стадии однократной ионизации влияет на вероятность и угловое распределение электронов двухкратной ионизации.

8. Дифференциальное сечение, корреляционный параметр и гауссова ширина γ корреляционного параметра для однофотонной двойной фотоионизации гелиеподобных ионов H^{-} , He , Li^{+} , Be^{2+} и атомов Li и Be рассчитаны с помощью метода на основе динамического преобразования Чанга–Фано и сопутствующих координат. Подтверждено более раннее теоретическое предсказание, что естественным масштабом зависимости корреляционного параметра от заряда ядра и энергии испущенных электронов является второй потенциал ионизации.
9. Рассчитано ПДС ионизации атомов и молекул электронным ударом с помощью различных численных методов и с использованием различных приближений, что позволило выявить пределы применимости последних. Для однократной ионизации атома He и молекул H_2 и N_2 электронами промежуточных энергий ПДС рассчитано с помощью метода, основанном на параксиальном приближении для падающего электрона и приближении одного активного электрона для молекулы, за счет чего исходная задача рассеяния сводилась к решению временного уравнения Шредингера с пятью пространственными измерениями. Получено хорошее совпадение с экспериментом для ионизации He , H_2 и с внешних оболочек N_2 . Также рассчитано ПДС двойной ионизации He ударом быстрого электрона с помощью метода, основанного на параксиальном первом борновском приближении, сводящем исходное девятимерное стационарное уравнение Шредингера для задачи рассеяния электрона на двухэлектронной мишени к шестимерному временному уравнению Шредингера, и методе сопутствующих координат. Для двойной ударной ионизации He и H_2 ударом электрона промежуточных энергий ПДС

рассчитано с помощью метода комплексного скейлинга в сфероидальных координатах, обеспечивающим решение *ab initio* для двух электронов, изначально связанных в молекуле, и борновского разложения вплоть до второго порядка для рассеянного электрона.

10. Разработан алгоритм для быстрого дискретного ортогонального сферического преобразования Бесселя на равномерной сетке, в котором используются дискретные ортогональные полиномы Лежандра. На основе этого алгоритма, представления дискретной переменной и двуциклического расщепления создана численная схема для решения временного уравнения Шредингера для молекулы в сильном переменном внешнем поле.

Достоверность результатов диссертации. Достоверность теоретических результатов, полученных в диссертации, обеспечивается использованием строгих математических методов, тестированием общих алгоритмов по результатам, полученным другими авторами для частных случаев, сравнением с экспериментом, а также совпадением численных результатов, полученных различными методами.

Научная и практическая значимость работы. Результаты работы предназначены для совершенствования технологий измерения продолжительности протекания ионизации и диссоциации, усовершенствования методов численных расчетов полностью дифференциального сечения ионизации и времени запаздывания ионизации, нормирования экспериментальных данных и проверки приближенных теоретических методов.

Предсказанный и позднее обнаруженный в эксперименте эффект нарушения симметрии в распределении продуктов диссоциации при диссоциативной фотоионизации молекулы водорода, вызванный отложенным по времени влиянием улетевшего электрона на остаточный ион H_2^+ , может найти применение в технологиях измерения продолжительности протекания диссоциации.

Предложенное усовершенствование метода атточасов для молекулярного водорода, заключающееся в определении направления максимума поля лазерного излучения по угловому распределению протонов, возникающих при фотодиссоциации остаточного иона H_2^+ , позволяет избавиться от ошибок, связанных с неточностью определения направления главной оси эллипса поляризации поля и фазовым сдвигом между несущей и огибающей лазерного импульса.

Полученная аналитическая формула для поправки на кулоновско-лазерное взаимодействие позволяет вычислять данную поправку для произвольных молекул и тестирующего инфракрасного поля произвольной частоты, что дает возможность извлекать данные о вигнеровском времени ионизации из экспериментальных данных и результатов численных расчетов.

Разработанный метод для расчета ионизации молекул на основе метода сопутствующих координат и быстром сферическом преобразовании Бесселя позволяет проводить расчет для форм полей лазерных импульсов, типичными для экспериментальных схем типа «накачка–зондирование», без ошибок, связанных с асимптотикой волновой функции на больших расстояниях от ядра для электрона, находящемся в дальнедействующем кулоновском поле остаточного иона и поля инфракрасного импульса. Это дает возможность численно рассчитывать время задержки для ионизации молекул, моделируя экспериментальные схем типа аттосекундной развертки и RABBITT.

Рассчитанные угловые и энергетические распределения задержки испускания электрона при ионизации молекулярного иона H_2^+ в лазерном поле, типичном для RABBIT, могут использоваться в качестве поверочных значений, так как получены без приближений. Рассчитанные угловые и энергетические распределения задержки испускания электрона при ионизации молекулы воды H_2O могут быть использованы для выявления влияния межэлектронных корреляций на продолжительность процесса ионизации.

Результаты расчетов дифференциальное сечение однократной и двойной ионизации атома He и H_2 ударом быстрого электрона, а также однократной ионизации N_2 полезны для анализа точности борновского разложения для падающего электрона, а также выявления проявлений межэлектронных корреляций в одно- и двухкратной ионизации молекул.

Алгоритм для быстрого ортогонального сферического преобразования Бесселя на равномерной сетке предназначен для численного решения дифференциальных уравнений в сферических координатах, появляющихся в разных разделах физики.

Разработанные численные методы для расчета одно- и двухкратной ионизации двухэлектронных атомов и двухцентровых молекул могут использоваться для расчетов полностью дифференциального сечения при любых параметрах внешних полей.

Личный вклад автора. Основные результаты диссертации получены автором. Постановка некоторых задач и анализ результатов расчетов выполнялась совместно с проф. В. Л. Дербовым (Саратовский Государственный Университет), проф. С. И. Виницким (Объединенный Институт Ядерных Исследований), проф. Б. Жулакяном (Université Paul Verlaine-Metz, г. Мец, Франция), проф. А. Хейфецем (Australian National University, г. Канберра, Австралия), а также группами экспериментаторов из Университета им. Гёте (Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, г. Франкфурт-на-Майне, Германия) и Уханьского Института Физики и Математики (State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic

and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, г. Ухань, Китай), и другими соавторами. В разделах диссертации, основанных на работах с соавторами, указан конкретный вклад автора в данную работу (в замечаниях в конце раздела).

Апробация работы. Основные материалы диссертационной работы докладывались на международных конференциях: International Conference on Electron and Photon Impact Ionization and Related Topics, Louvain-la-Neuve, Belgium, 1–3 July 2004; International Symposium on (e,2e), Double Photoionization and Related Topics, Königstein, Germany, 2007; International Symposium on (e,2e), Double Photoionization and Related Topics & 16th International Symposium on Polarization & Correlation in Electronic & Atomic Collisions, Dublin, Ireland, 4–6 August 2011; XXVII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2011), Belfast, 27 July – 2 August 2011, Northern Ireland, UK; XXIX International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC 2015), Toledo, Spain, 22–28 July 2015; Saratov Fall Meeting, Саратов, Россия, 2003, 2004, 2006–2016 гг.; Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces (MPS-2016), Москва, Россия, 23-26 августа 2016; Mathematical Modeling and Computational Physics (ММСР2017), Дубна, Россия, 3-7 июля 2017; 31st International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC XXXI), Deauville, France 23–30 July 2019.

Публикации. По теме диссертации автором опубликовано 41 научная работа [1–41], в том числе 28 в изданиях, рекомендованных ВАК для опубликования материалов диссертаций на соискание ученой степени доктора физико-математических наук [1–5, 9–14, 18–20, 22–26, 28, 29, 31–34, 36, 37, 40], включая 25 статей, индексируемых в международных базах данных Scopus и Web of Science [1–5, 9–14, 18–20, 23, 24, 28, 29, 31–34, 36, 37, 40]. В журналах первого квартиля по рейтингу SCImago Journal Rank опубликовано 23 статьи [1–5, 9–14, 18, 19, 23, 24, 28, 29, 31–34, 36, 37]. Согласно рейтингу CiteScore 2021 по данным реферативной базы Scopus в журналах первого квартиля опубликовано 2 статьи [9, 11], в журналах второго квартиля — 22 статьи [1–5, 10, 12–14, 18–20, 23, 24, 28, 29, 31–34, 36, 37].

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, списка цитируемой литературы из 313 наименований. Главы разбиты на разделы, разделы — на подразделы. Объем работы — 317 страниц, 112 рисунков, 10 таблиц.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **Введении** обозначен предмет исследования, обоснована актуальность темы и целесообразность объединения решаемых задач в рамках одной работы, сформулированы цель и задачи исследования, основные положения, выносимые на защиту, охарактеризованы новизна полученных в диссертации результатов, их научное и практическое значение, апробация работы, публикации по ее теме, личное участие автора в выполнении работы, ее объем и структура, а также кратко изложено содержание диссертации.

Глава 1 посвящена применению сверхкоротких лазерных импульсов для измерения продолжительности протекания сверхбыстрых процессов при ионизации атомов и молекул.

Во введении к данной главе (**раздел 1.1**) дан краткий обзор таких методов измерения продолжительности ионизации, как аттосекундная развертка, RABBITT (метод реконструкции аттосекундных биений путем интерференции двухфотонных переходов) и атточасы (аттосекундная угловая развертка). Введены понятия атомного времени, вигнеровского времени и кулоновско-лазерного взаимодействия, и описана проблема интерпретации угла сдвига атточасов.

В **разделе 1.2** дано подробное теоретическое описание метода атточасов, использующегося для измерения времени туннелирования электронов при туннельной ионизации атомов сильным полем и представлены результаты численных расчетов угла сдвига атточасов для атомов инертных газов [4] путем численного решения временного уравнения Шредингера (ВУШ) в приближении одного активного электрона

$$i\frac{\partial\psi(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \left[\frac{\hat{p}^2}{2} + \mathbf{A}(t)\hat{\mathbf{p}} + U(\mathbf{r}) \right] \psi(\mathbf{r},t), \quad (1)$$

где $\mathbf{A}(t) = \int_t^\infty \mathbf{E}(t')dt'$ — векторный потенциал внешнего электромагнитного поля. ВУШ решалось с помощью метода, основанного на методе двуциклического расщепления и представлении дискретной переменной [31].

Изучена зависимость угла сдвига и средней энергии фотоэлектронов от магнитного квантового числа m оболочки, с которой происходит ионизация, и сделан вывод, что данные зависимости есть следствие различия орбитальной скорости электрона на выходе из режима туннелирования при разных m . Показано, что зависимость угла сдвига от интенсивности соответствует модели Келдыша-Резерфорда (KR), в которой угол сдвига является следствием воздействия кулоновского поля остаточного иона на электрон.

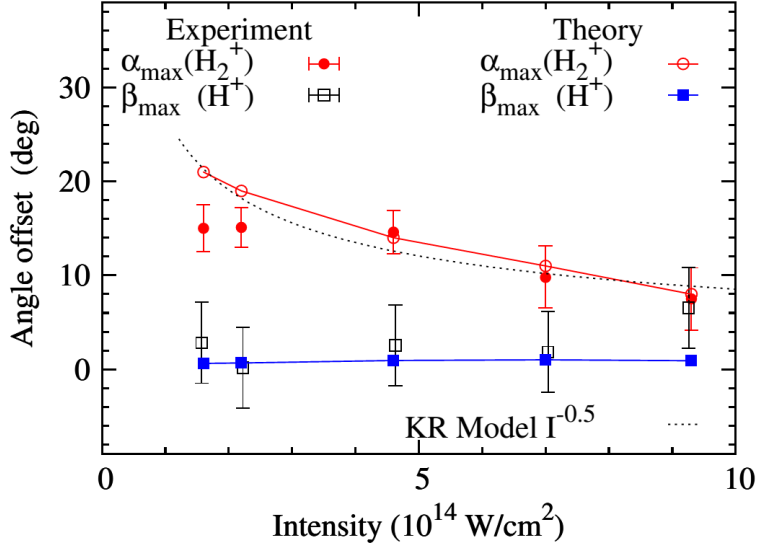


Рис. 1: Углы сдвига (градусы) α_{max} (кружки) и β_{max} (квадраты) из теоретических расчетов и эксперимента в зависимости от интенсивности излучения I (в 10^{14} Вт/см 2). Символы без полосы погрешности — численные расчеты, с полосой погрешности — эксперимент, пунктирная линия — аппроксимация функцией $\alpha_{max} \sim I^{-0.5}$. Рис. из [9].

В разделе 1.3 представлены результаты теоретических расчетов результатов метода молекулярных атточасов для молекулы водорода [9]. Молекулярные атточасы отличаются от обычных, использующих регистрацию электронов, тем, что в них используется регистрация остаточных ионов и возникающих при фотодиссоциации остаточных ионов протонов. Под действием мощного эллиптически поляризованного лазерного импульса происходит туннельная ионизация, и возникают свободный электрон и H_2^+ ион. Поскольку система $\text{H}_2^+ + e^-$ нейтральна, ее центр масс не сдвигается под воздействием поля лазерного импульса. Отсюда и из закона сохранения импульса следует, что углы сдвига фотоэлектрона и иона H_2^+ одинаковы. С поправкой на угол отклонения, электрон и ион H_2^+ в основном вылетают вдоль направления векторного потенциала в момент пика вероятности ионизации, т.е. вдоль малой оси эллипса поляризации.

Теоретическое моделирование процесса $\text{H}_2 \rightarrow \text{H}_2^+ + e^-$ было основано на численном решении трехмерного ВУШ, полученного из исходного шестимерного уравнения для двух электронов с помощью приближения Хартри-Фока. Амплитуды ионизации извлекались из рассчитанной волновой функции с помощью метода t-SURFFc [23]. Моделирование процесса $\text{H}_2 + \hbar\omega \rightarrow \text{H} + \text{H}^+$, идущего через резонансное возбуждение иона H_2^+ в возбужденное диссоциативное состояние, проводилось путем численного решения четырехмерного ВУШ для H_2^+ во внешнем поле с помощью разложения волновой функции по нескольким наименьшим электронным связанным состояниям и конечно-разностной схемы для степени свободы,

связанной с межъядерным расстоянием.

«Показаниями» молекулярных атточасов являются углы сдвига α_{max} и β_{max} , которые полагаются равными угловому смещению максимума в распределении H_2^+ по отношению к малой оси поляризованного эллипса и максимума в распределении H^+ по отношению к главной оси, соответственно. Диссоциация H_2^+ наиболее вероятна, когда молекулярная ось со-направлена с вектором электрического поля, из-за чего продукты диссоциации вылетают преимущественно в направлении главной оси эллипса поляризации, т.е. $\beta_{max} = 0$. Это дает естественную систему отсчета для определения угла отклонения атточасов. Преимущество такой схемы измерений в том, что не нужно знать точную ориентацию эллипса поляризации, так как угловое распределение испущенных протонов H^+ всегда выровнено вдоль этого эллипса подобно стрелке компаса.

Результаты численных расчетов и эксперимента показывают одинаковую зависимость угла сдвига атточасов от интенсивности излучения $\alpha_{max} \sim I^{-0.5}$, что соответствует предсказанию КР (рис. 1). Это свидетельствует о кулоновском происхождении угла сдвига и указывает на мгновенность туннелирования. То же самое подтверждают результаты расчетов для молекулы Юкавы («молекулы» без дальнедействующей компоненты потенциала).

В **разделе 1.4** изложена динамическая модель Келдыша-Резерфорда (DKR) для описания атточасов [1]. В обычной модели КР предполагается, что электрон непосредственно после туннелирования имеет скорость, которую он будет иметь после окончания лазерного импульса. Однако, с точки зрения классической механики, электрон не обретает свою конечную энергию сразу. Он выходит из-под барьера с почти нулевой скоростью, а уже потом разгоняется до конечной энергии электрическим полем лазерного импульса. Мы развили приближенную теорию, в которой начальные условия для электрона после выхода из-под барьера берутся из теории Келдыша, а затем путем решения уравнений Ньютона моделируется его классическая эволюция под действием лазерного поля и кулоновского поля остаточного иона. Также мы развили упрощенную, аналитическую версию данной модели для расчета угла сдвига экстремума углового распределения среднего радиального импульса. Для гелия получено хорошее совпадение результатов приближенной теории и численных расчетов. Для атома водорода, хорошее совпадение получено только для углового распределения среднего радиального импульса и соответствующего угла сдвига, а для угла сдвига максимума вероятности получена не правильная зависимость от интенсивности. Наиболее вероятным объяснением является некорректность мгновенного приближения для вероятности ионизации в случае присутствия кулоновского поля.

В разделе 1.5 разработан метод для расчетов времени задержки испускания электрона, моделирующий его измерение с помощью аттосекундной развертки или RABBITT [14], и представлены результаты теоретических расчетов задержки ионизации молекулярного иона водорода в зависимости от энергии и угла испускания. Метод основан на решении временного уравнения Шредингера (ВУШ) в системе координат, которая расширяется вместе с фотоэлектронным волновым пакетом. ВУШ решалось с помощью численной схемы на основе быстрого сферического преобразования Бесселя для радиальных переменных [13]. Этот подход позволяет достичь масштабов пространства и времени распространения, которые трудно достижимы другими методами.

В разделе 1.6 представлены результаты теоретических расчетов задержки молекулярного водорода и молекулы воды в зависимости от энергии и угла испускания [12]. Продемонстрировано, что в случае ионизации H_2O с $1b_1$ орбитали результаты для случайно ориентированной молекулы близки к результатам для молекулы фиксированной ориентации. В случае ионизации с $3a_1$ орбитали получившиеся результаты более нетривиальны. При больших энергиях фотоэлектрона электрон улетает в направлении атома кислорода быстрее, чем в направлении атомов водорода. При малых энергиях наблюдается противоположная картина. Для неориентированной молекулы разность временных задержек ионизации с $3a_1$ и $1b_1$ орбиталей при одинаковой энергии фотонов почти равна нулю во всем исследованном диапазоне энергий.

В разделе 1.7 представлена классическая модель для интерпретации экспериментов по схеме аттосекундной развертки для измерения времени задержки испускания электрона при ионизации, и показан физический смысл поправки, связанной с кулоновско-лазерным взаимодействием [16, 27]. Вопрос о временной задержке отрыва электрона от кулоновского центра исследован с классической и квантовой точки зрения и показали, что аттосекундная развертка может быть формально рассмотрена как воображаемый детектор, находящийся на расстоянии $r_{eff} \sim k/\omega$ от центра системы (где k — импульс электрона, ω — частота «зондирующего» инфракрасного излучения). Благодаря такому подходу получена аналитическая формула для кулоновско-лазерного взаимодействия, дающая хорошее совпадение с результатами численного решения ВУШ.

В разделе 1.8 показаны причины появления сингулярностей в угловых распределениях задержки испускания электрона при ионизации двухцентровых систем, и раскрыт физический смысл этих сингулярностей с помощью анализа распространения волновых пакетов испущенного электрона [24]. Вигнеровское время τ_W задержки однократной ионизации ориентированной молекулы H_2 (рис. 2а)

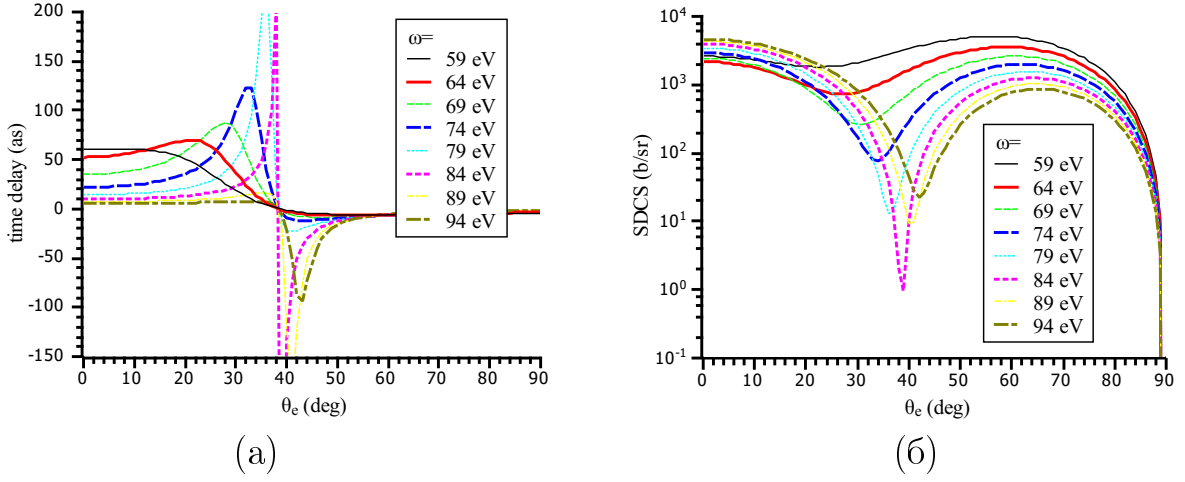


Рис. 2: Зависимости а) вигнеровской задержки τ_W (аттосекунды) и б) однократного дифференциального сечения $\frac{d\sigma}{d\Omega_e}$ (барн/ср) однократной ионизации молекулы водорода H_2 от угла испускания θ_e (градусы) при ориентации молекулярной оси параллельной направлению поляризации излучения для разных значений энергии испущенного электрона. Рис. из [24].

имеет разрыв, в окрестностях которого τ_W стремится к $\pm\infty$. Этот разрыв связан с минимумом в угловом распределении вылетевших электронов (рис. 2б). Появление больших отрицательных значений τ_W находится в кажущемся противоречии принципу причинности, поскольку с формальной точки зрения это означает, что электрон испускается молекулой задолго до поглощения фотона. Мы выяснили условия появления сингулярностей в τ_W и разрешили парадокс большого отрицательного запаздывания для двухцентровых систем. Для этого были исследованы зависимости τ_W от энергии и угла при ионизации модельной двухцентральной системы (молекулярного иона H_2^+) и аналитически рассчитана динамика испущенного электронного волнового пакета при параметрах близких к сингулярности τ_W .

Глава 2 посвящена расчетам однофотонной одинарной и двойной фотоионизации двухэлектронных молекул и атомов фотоном жесткого ультрафиолетового или мягкого рентгеновского диапазона.

В **разделе 2.1** представлены результаты расчетов полностью дифференциального сечения (ПДС) диссоциативной фотоионизации молекулы водорода [20], и проведено их сравнение с экспериментальными данными. Однократная ионизация-диссоциация H_2 высокоэнергетическими фотонами с круговой поляризацией позволяет выявить эффекты интерференции и делокализации электронов. Мы использовали адиабатическое приближение, т.е. рассматривали волновые функции начального и конечного состояний как соответствующие произведения ядерной и электронной частей. Также использовалось предположение, что поле выбитого электрона не влияет на эволюцию молекулярного иона после акта ионизации.

Такое приближение оправдано для больших энергий фотона (и конечного электрона), поскольку сам процесс ионизации очень быстр по сравнению с характерным временем движения ядра. Электронная часть волновой функции была получена с помощью метода внешнего комплексного скейлинга в вытянутых сфероидальных координатах (PSECS). Мы также выполнили упрощенные вычисления в приближении классического отражения (CR). Сравнение результатов CR с аналогичными результатами с корректным квантовым учетом движения ядер (QN) позволяет выявить влияние импульса отдачи на процесс диссоциации.

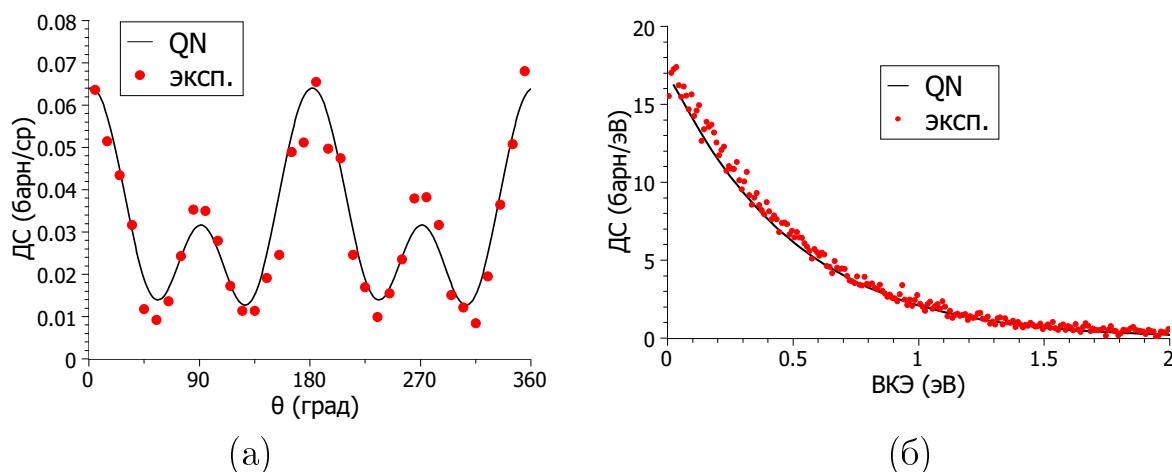


Рис. 3: а) ДС (барн/ср) как функция угла θ (градусы) между направлением вылета электрона и молекулярной осью при ВКЭ в пределах 0.0–0.2 эВ; б) ДС (барн/эВ) как функция ВКЭ (эВ). Результаты QN (сплошная линия) и экспериментальные данные (кружки).

Результаты позднее проведенного эксперимента по ионизации молекулярного водорода фотонами с энергией 400 эВ [11] оказались близки к результатам наших теоретических расчетов. На рис. 3 показаны зависимость дифференциального сечения (ДС) испускания электронов от выделившейся кинетической энергии (ВКЭ) фрагментов диссоциировавшего иона и распределение дифференциального сечения по углу. В экспериментальных данных и в теоретических результатах для распределения по углу видна интерференционная картина, возникающая за счет испускания электрона из двух центров в молекуле.

В разделе 2.2 представлены результаты расчетов ПДС двойной фотоионизации молекулы водорода [29] и дана интерпретация его зависимости от углов и энергии испускаемых электронов как следствия двухщелевой интерференции при испускании первичного ионизированного электрона из двух центров молекулы. Путем сравнения результатов прямого численного расчета и результатов расчета для механизма «выбивания» показано, что данный механизм доминирует, и что наблюдаемые особенности зависимости угловых распределений от энергии и

межядерного расстояния есть следствие двухцентрковой интерференции, происходящей при однократной фотоионизации (первом этапе «выбивания»). Механизм «выбивания» смоделирован путем численного расчета каждого из его двух этапов — фотоионизации первичного электрона и последующего выбивания первичным электроном вторичного в $(e, 2e)$ процессе на остаточном H_2^+ , с последующей сверткой их амплитуд.

В **разделе 2.3** представлены результаты расчетов ПДС однофотонной двойной фотоионизации атома гелия и гелиеподобных ионов, и исследована зависимость корреляционного параметра от заряда ядра и энергии испущенных электронов [36]. Численно рассчитана гауссова ширина γ корреляционного параметра для He, гелиеподобных ионов Li^+ , Be^{2+} , H^- , и K-оболочек нейтральных атомов Li и Be. Для расчетов использовался метод сопутствующих координат и численная схема на основе динамического преобразования Чанга-Фано. Продемонстрировано, что естественным масштабом для зависимости ПДС от энергии и заряда ядра является второй потенциал ионизации.

Глава 3 посвящена исследованиям процессов, происходящих при взаимодействии быстрых заряженных частиц с молекулами и атомами.

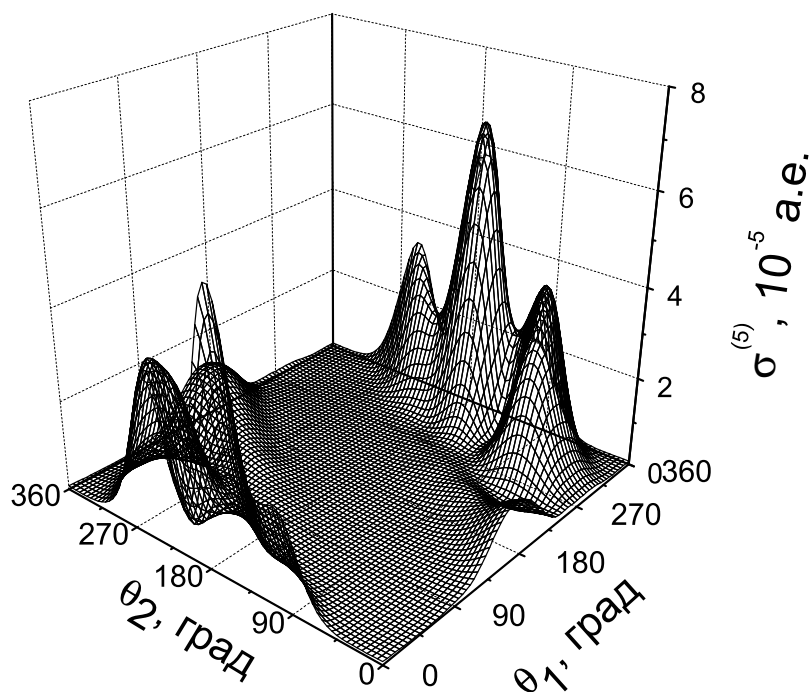


Рис. 4: ПДС двойной ионизации неориентированной молекулы H_2 ударом быстрого электрона как функция θ_1 и θ_2 при энергии рассеянного электрона $E_s = 500$ эВ, угле рассеяния $\theta_s = 1.5^\circ$, и энергиях испущенных электронов $E_1 = 51$ эВ, $E_2 = 10$ эВ, рассчитанное с помощью метода ECS-2BCD.

В разделе 3.1 представлены результаты расчетов многократного дифференциального сечения одинарной и двойной фотоионизации атома гелия, молекулярного водорода и молекулярного азота ударом быстрого электрона с помощью различных методов [31, 33, 34, 37, 38, 40] и проведено их сравнение с экспериментальными данными. Расчет ПДС для разных мишеней с помощью различных методов и приближений позволяет определить пределы применимости последних и выявить вклады различных механизмов протекания данных процессов в полное дифференциальное сечение.

Расчеты ударной двойной ионизации N_2 были сделаны с помощью разработанной специально для двухцентрковой молекулы численной схемы PSECS [34], использующей вытянутые сфероидальные координаты. В нашем подходе электроны молекулы описываются точно, а взаимодействие молекулы с налетающим электроном описывается с помощью теории возмущений, с учетом первого (метод ECS-1B) [34] и второго (методы ECS-2BD и ECS-2BCD) [33] членов ряда Борна. Применение данного подхода сводится к решению стационарного уравнения Шредингера с правой частью для испущенных молекулой электронов. Сравнение рассчитанного ПДС (рис. 4) с экспериментальными данными показало, что для точного воспроизведения сдвига положений пиков углового распределения требуется учет недипольных компонент второго члена в разложении Борна для налетающего электрона.

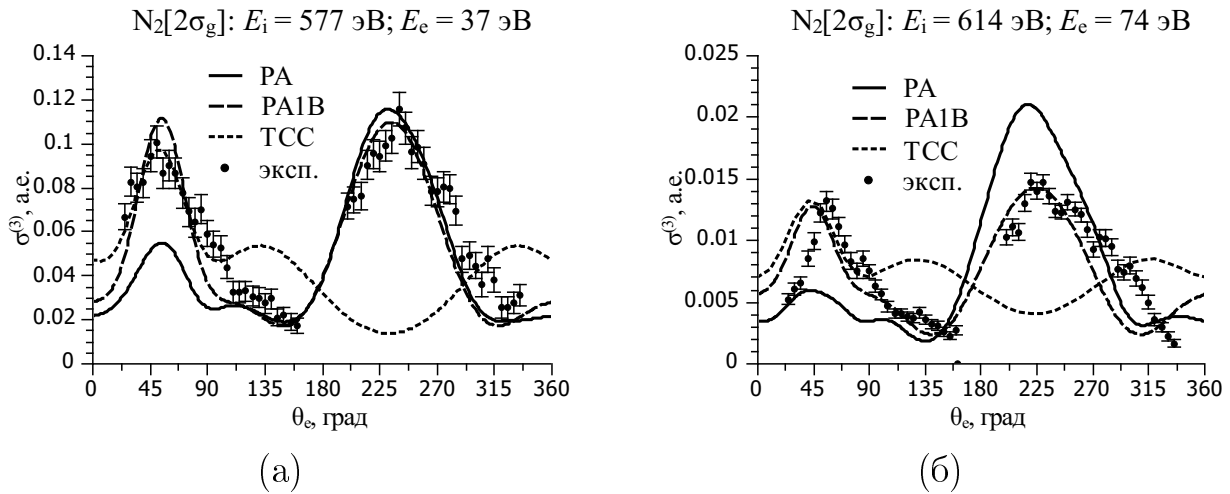


Рис. 5: ПДС $(e, 2e)$ процесса на $2\sigma_g$ оболочке N_2 как функция угла испускания θ_e при энергии рассеянного электрона $E_s = 500$ эВ и разных энергиях испускания: а) $E_e = 37$ эВ; б) $E_e = 74$ эВ: результаты РА (сплошная линия), РА1В (штриховая линия), ТСС-1В (пунктирная линия) и экспериментальные данные (кружки).

Также мы провели расчеты однократной ионизации гелия, N_2 и молекулярного азота N_2 (рис. 5) ударом быстрого электрона с помощью метода, основанного на параксиальном приближении (РА) [31]. При использовании одноэлектронного

приближения для молекулы, параксиальное приближение приводит к пятимерному ВУШ, решавшемуся численно. Упрощенным вариантом метода РА является метод РА с первым борновским приближением (РА1В), приводящий к неоднородному временному уравнению шредингеровского типа с той же размерностью, которая требуется для описания электронов мишени, т.е. трехмерному в случае использования одноэлектронного приближения. Результаты РА оказались в хорошем соответствии с экспериментом.

Кроме того, мы использовали РА1В для расчетов двойной ионизации гелия [37]. В этом случае задача сводилась к шестимерному ВУШ, решавшемуся с помощью разработанного нами численного метода на основе динамического преобразования Чанга-Фано и расширяющейся координатной сетки. Такой подход позволяет промоделировать распространение двух испущенных электронов на больших расстояниях от иона. Результаты показали, что расхождение результатов уникального He(e,3e) эксперимента с результатами ранее применявшихся к этой задаче других теоретических методов не связаны с некорректным описанием асимптотического поведения двухэлектронной функции континуума.

В разделе 3.2 представлена упрощенная модель для перезарядки-ионизации атома гелия быстрым протоном, в которой движение всех частиц полагается одномерным [19]. С помощью этой модели исследуются причины некорректной работы теоретических методов, применяемых для реальных расчетов данного процесса, и отклонения их результатов от экспериментальных данных. Реакция перезарядки-ионизации (ПИ) при столкновении быстрого протона с атомом гелия



исследовалась как экспериментально, так и теоретически в течении длительного времени. Экспериментальные измерения импульсного распределения испущенных электронов показали возможность исследования радиальных и угловых корреляций в основном состоянии атома гелия с помощью этой реакции. Из-за малости длины волны налетающего протона и небольшой величины относительного изменения скорости налетающей частицы достаточно точным является классическое приближение для движения налетающей частицы. Реакция ПИ в этом приближении описывается шестимерным ВУШ, которая может быть решена с использованием современных вычислительных средств. Тем не менее, мы еще больше упростили задачу и ограничили движение каждой из частиц одним измерением. Мы сравнили результаты решения редуцированного ВУШ с различными расчетами в борновском приближении. Проанализировав результаты ВУШ и борновского приближения, мы пришли к выводу, что расхождения экспериментальных

и теоретических данных могут быть объяснены дефектом теоретических подходов, используемых другими авторами. Мы продемонстрировали, что корректный борновский ряд для ПИ должен включать интеграл перекрытия импульсного пространства между амплитудой ионизации и волновой функцией переданного протону электрона.

В разделе 3.3 описан предсказанный нами эффект отложенного влияние испущенного фотоэлектрона на симметрию ионизации–диссоциации молекулы водорода [18]. Симметрия распределения испущенных ионных p фрагментов по отношению к направлению испускания электрона нарушается за счет прямого воздействия испущенного электрона на остаточный ион H_2^+ , происходящего уже после того, как электрон удалился на большое расстояние от остаточного иона. Это происходит вследствие того, что состояния H_2^+ иона $1s\sigma_g$ и $2p\sigma_u$ образуют пару так называемых зарядово–резонансных состояний, энергетический зазор между которыми уменьшается с ростом межядерного расстояния R , а дипольный матричный элемент растет. При большом R зарядово–резонансные состояния сильно связываются между собой даже слабым внешним полем. Кулоновское поле испущенного электрона может вызывать переход остаточного иона H_2^+ из четного состояния $1s\sigma_g$ в нечетное диссоциативное состояние $2p\sigma_u$, когда ядра в связанном колебательном состоянии достигают внешней точки поворота. Суперпозиция этого процесса с прямым переходом в колебательный континуум позволяет появиться асимметрии в испускании p -Н относительно направления испускания электрона при малой выделившейся кинетической энергии (ВКЭ) фрагментов диссоциировавшего иона.

На рис. 6а показано абсолютное значение скорости перехода из четного состояния в нечетное для ВКЭ $E_R = 0.4$ эВ как функция времени t , прошедшего после ионизации H_2 . Видно, что заметный переход начинается только когда колебательный волновой пакет достигает внутренней точки поворота колебательного движения для нечетного состояния.

Из наших расчетов следует, что параметр асимметрии обратно пропорционален энергии испущенного электрона E_e . Так что мы можем записать его как

$$\beta = \frac{\tilde{\beta}(E_R)}{E_e}, \quad (2)$$

где $\tilde{\beta}(E_R)$ — не зависящий от энергии электрона приведенный параметр асимметрии. На рис. 6б, параметр $\tilde{\beta} = E_e\beta$ показан как функция ВКЭ в единицах эВ. При любой ВКЭ протон предпочитает вылетать в направлении испускания электрона. Существование данного эффекта позднее было подтверждено экспериментально.

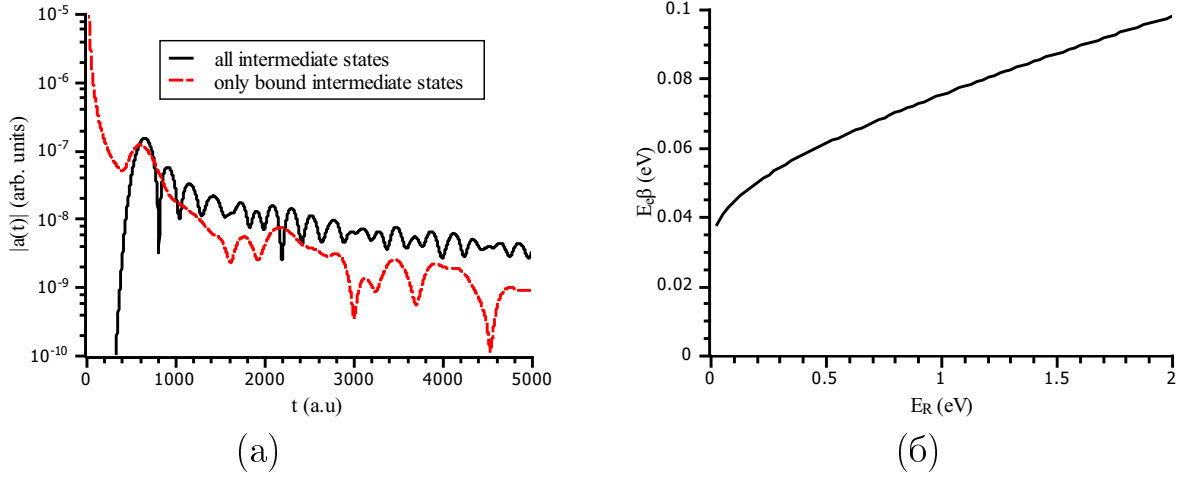


Рис. 6: а) Абсолютное значение амплитуды перехода в единицу времени (скорость перехода) $|a(t)|$ между состояниями иона при ВКЭ $E_R = 0.4$ эВ как функция времени, полученное с помощью прямой эволюции колебательного волнового пакета (сплошная линия) и с помощью разложения по связанным колебательным состояниям (штриховая линия); б) Приведенный параметр асимметрии $\tilde{\beta} = E_e \beta$ как функция E_R (эВ) при $\mathbf{R} \parallel \mathbf{n}_e$. Рис. из [18].

Глава 4 посвящена использованным для выполнения расчетов численным методам, в том числе разработанным самим автором диссертации.

В **разделе 4.1** представлен модифицированный метод зависящего от времени потока амплитуд вероятности через границу t&E-SURFF [22, 23] для расчета амплитуд ионизации без использования точных функций континуума для конечного состояния, обеспечивающий точный результат для конечного промежутка времени эволюции волновой функции, а также его упрощенный аналог t-SURFFc.

При численном решении уравнения (1) на конечной пространственной сетке возникает проблема нефизического отражения волнового пакета, описывающего свободную частицу, от границ сетки. Для его подавления используется метод внешнего комплексного скейлинга — поворот радиальной переменной в комплексную плоскость начиная с какой-то точки. Для расчета амплитуд ионизации можно применять метод зависящего от времени потока амплитуд вероятности через поверхность (time-dependent surface flux, t-SURFF), расположенную внутри границы начала комплексного скейлинга. Однако, при применении его на конечном промежутке времени $t \in [0, T]$ он дает погрешность, связанную с тем, что часть волнового пакета, описывающая медленные частицы, не успевает дойти до границы. Мы предложили t&E-SURFF, усовершенствование t-SURFF, дающее точные амплитуды путем добавки потока, который пройдет сквозь границу при $t \in (T, \infty)$ после окончания воздействия внешнего поля. Данный поток может быть вычислен с использованием решения стационарного уравнения шредингеровского типа с правой частью, равной волновой функции $\psi(\mathbf{r}, T)$.

Также мы предложили упрощенный метод t-SURFFc, в котором используется приближенная поправка, вычисление которой не требует решения стационарного уравнения. Данный метод затем использовался автором в работах [1, 2, 4, 5, 9, 10].

В разделе 4.2 представлен метод решения задачи рассеяния на двухэлектронной молекуле на основе формализма шестимерного стационарного уравнения Шредингера в сфероидальных координатах с источником в правой части и внешнего комплексного скейлинга (PSECS) [33, 34]. Задачи о об однофотонной фотоионизации или ионизации ударом быстрой частицы можно свести к решению уравнения

$$(\hat{H} - E)\psi^{(+)} = -\hat{\mu}\varphi_0 \quad (3)$$

где \hat{H} — невозмущенный гамильтониан молекулы, φ_0 — волновая функция начального состояния, $\hat{\mu}$ — оператор возмущения. Волновая функция $\psi^{(+)}$ должна удовлетворять граничным условиям уходящей волны, которые обеспечивались с помощью внешнего комплексного скейлинга.

Для молекулы H_2 в случае неподвижности ядер ур.(3) шестимерно. Для его решения использовались вытянутые сфероидальные координаты, обеспечивающие более быструю сходимость численной схемы для данной задачи, чем сферические, так как их использование снимает проблему наличия разрыва первой производной волновой функции в двух точках сингулярности кулоновского потенциала двух ядер. Ур. (3) решалось с помощью численной схемы на основе базиса из b-сплайнов по двум квазирадиальным переменным и сферических гармоник для квазиугловых переменных [34].

Оператор возмущения в случае воздействия на молекулу непрерывного излучения определяется выражением [34] $\hat{\mu} = \mathbf{e} \cdot (\mathbf{r}_1 + \mathbf{r}_2)$, где \mathbf{e} — вектор поляризации падающего излучения. Для случая удара быстрой частицей [34], оператор возмущения в первом борновском приближении записывается в виде $\hat{\mu}_{1B} = -\frac{1}{2\pi} \langle \mathbf{k}_s | V | \mathbf{k}_i \rangle$, где \mathbf{k}_i — импульс приходящего электрона, \mathbf{k}_s — импульс рассеянного электрона. Во втором борновском приближении учитывалась [33] только бидипольная компонента $\hat{\mu}_{2BD}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \sum_{M_1, M_2=-1}^1 \mathcal{M}^{M_1 M_2} (x_{1M_1} + x_{2M_1})(x_{1M_2} + x_{2M_2})$.

Метод PSECS использовался в работах [7, 11, 20, 26, 29, 33, 34].

В разделе 4.3 описан метод сопутствующих координат (метод расширяющейся со временем координатной сетки) для решения ВУШ (1), позволяющий предотвратить нефизическое отражение от границ пространственной сетки, и представлено его использование для прямого извлечения амплитуд ионизации из волновой функции. Он основан на применении зависящего от времени масштабного преоб-

разования координат и замены волновой функции [41]

$$\mathbf{r} = a(t)\boldsymbol{\xi}; \quad \psi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{a^{3N_e/2}} \exp\left(\frac{i}{2}a\dot{a}\xi^2\right) \Psi(\boldsymbol{\xi}, t), \quad (4)$$

где $a(t)$ — масштабный множитель, который переходит в линейную функцию при $t \rightarrow \infty$, $\boldsymbol{\xi}$ — вектор сопутствующих координат, N_e — число электронов.

Также представлена разработанная автором численная схема для решения шестимерного ВУШ на основе метода двуциклического расщепления, динамического преобразования Чанга-Фано и представления дискретной переменной [37]. В ней для угловых переменных используется базис из бисферических гармоник $Y_{l_1 l_2}^{LM}(\theta_1, \phi_1, \theta_2, \phi_2)$. Чтобы диагонализировать матрицу потенциала межэлектронного взаимодействия, используется два ортогональных преобразования. Сначала применяется преобразование Чанга-Фано, обеспечивающее переход от разложения по бисферическому базису к D -базису из функций $D_{M m_2}^{L*}(\phi_1, \theta_1, \phi_{12}) Y_{l_2 m_2}(\theta_{12}, 0)$, где $D_{m_1 m_2}^L(\alpha, \beta, \gamma)$ — функция Вигнера. Для финальной диагонализации используется переход к представлению дискретной переменной для межэлектронного угла θ_{12} . При расчете временной эволюции с помощью метода расщепления, данные преобразования выполняются перед шагом с межэлектронным потенциалом, а после него — обратные преобразования. Данная численная схема использовалась в работах [25, 26, 32, 35–37].

В разделе 4.4 представлен разработанный автором алгоритм быстрого ортогонального сферического преобразования Бесселя на равномерной сетке (БСПБ) [13], а также численная схема решения ВУШ (1) на основе данного метода, представления дискретной переменной для угловых переменных и метода расщепления для временной эволюции. Метод использовался в работах [12–14].

Предложенный алгоритм БСПБ основан на двух последовательных быстрых ортогональных преобразованиях: преобразовании на основе дискретных ортогональных полиномов Лежандра и быстром преобразовании Фурье (БПФ). Число математических операций, необходимых для выполнения БСПБ на сетке с числом узлов N порядка $N \log_2 N$, т.е. как у БПФ. Использование БСПБ при решении ВУШ в сферических координатах вместо БПФ для радиальной переменной позволяет избавиться от необходимости выполнения шага расщепления с сингулярным центробежным потенциалом. Ортогональность преобразования обеспечивает сохранение нормы волновой функции при многократном прямом и обратном преобразованиях, требующихся при реализации метода расщепления. Равномерность сетки важна для задач по расчету ионизации, требующих высокой точности аппроксимации волновой функции на большом расстоянии от центра. Исторически

первый алгоритм БСПБ на основе конволюционного интеграла быстр, но использует сильно неравномерную сетку с экспоненциальной зависимостью положения узла от его номера. Преимуществом нового алгоритма БСПБ является то, что он обладает полным набором перечисленных свойств — быстрота, ортогональность и равномерность сетки, в отличие от всех ранее предлагавшихся алгоритмов.

Также в разделе описано приближение одного активного электрона на основе функционала плотности с поправкой на самовоздействие, с помощью которого предложенная схема была применена для многоэлектронных молекул [12].

В разделе 4.5 описано приложение приближения параксиальной оптики [31, 37] к задаче рассеяния быстрого электрона на молекуле.

Данное приближение состоит в том, что если взять стационарное уравнение Шредингера, описывающее частицу с массой μ , начальным импульсом k_i и радиус-вектором \mathbf{r}_0 , налетающую на мишень (атом или молекулу) с эффективным гамильтонианом $\hat{H}(\mathbf{r}_1)$, первоначально находящуюся в стационарном состоянии с энергией ϵ_i

$$\left[-\frac{1}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}_0}^2 + \hat{H}(\mathbf{r}_1) + V(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_0) \right] \Phi(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) = \left(\frac{k_i^2}{2\mu} + \epsilon_i \right) \Phi(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1), \quad (5)$$

представить волновую функцию в виде произведения огибающей и плоской волны $\Phi(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) = \tilde{\Psi}(\mathbf{r}_\perp, z_0, \mathbf{r}_1) \exp(ik_i z_0)$, и пренебречь второй производной от огибающей $\tilde{\Psi}(\mathbf{r}_\perp, z_0, \mathbf{r}_1)$ по z_0 , то получится временное уравнение Шредингера с на единицу меньшим числом пространственных размерностей

$$i \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_\perp, t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2\mu} \nabla_\perp^2 + \hat{H}(\mathbf{r}_1) + V\left(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_\perp, \frac{k_i}{\mu} t\right) \right] \Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_\perp, t). \quad (6)$$

Здесь в качестве времени выступает параметр $t = z_0 \mu / k_i$, сделана дополнительная замена $\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_\perp, t) = \tilde{\Psi}(\mathbf{r}_\perp, k_i t / \mu, \mathbf{r}_1) \exp(i\epsilon_i t)$, а $\mathbf{r}_\perp = (x_0, y_0)$ — двухкомпонентный вектор компоненты \mathbf{r}_0 , перпендикулярной \mathbf{k}_i .

В том же разделе представлена численная схема на основе представления дискретной переменной и метода двуциклического расщепления для решения пятимерного параксиального уравнения [31]. Данная схема включает в себя в качестве компонента схему для решения трехмерного ВУШ (1), которая также использовалась отдельно для расчета ионизации атомов и молекул полем лазерного импульса [1, 2, 4, 5, 9, 10].

В **Заключении** сформулированы основные результаты работы и обсуждаются возможности их использования.

ПУБЛИКАЦИИ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

- [1] Serov V. V., Kheifets A. S. Dynamic extension of the Keldysh-Rutherford model for attoclocks // *Physical Review A*. — 2022. — Vol. 105, no. 6. — P. 063106.
- [2] Ionization phase retrieval by angular streaking from random shots of XUV radiation / Kheifets A. S., Wielian R., Serov V. V., Ivanov I. A., Wang A. L., Marinelli A., and Cryan J. P. // *Physical Review A*. — 2022. — Vol. 106, no. 3. — P. 033106.
- [3] Role of nuclear-electronic coupling in attosecond photoionization of H₂ / Wang A. L., Serov V. V., Kamalov A., Bucksbaum P. H., Kheifets A., and Cryan J. P. // *Physical Review A*. — 2021. — Vol. 104, no. 6. — P. 063119.
- [4] Serov V. V., Cesca J., Kheifets A. S. Numerical and laboratory attoclock simulations on noble-gas atoms // *Physical Review A*. — 2021. — Vol. 103, no. 2. — P. 023110.
- [5] Two-pulse interference and correlation in an attoclock / Kheifets A. S., Cesca J., Serov V. V., Kim K. T., and Ivanov I. A. // *Physical Review A*. — 2021. — Vol. 104, no. 3. — P. 033118.
- [6] Serov V., Bray A. W., Kheifets A. S. Numerical attoclock on atomic and molecular hydrogen // *Journal of Physics: Conference Series*. — 2020. — Vol. 1412, no. 7. — P. 072041.
- [7] Revealing the two-electron cusp in the ground states of He and H₂ via quasifree double photoionization / Grundmann S., Serov V. V., Trinter F., Fehre K., Strenger N., Pier A., Kircher M., Trabert D., Weller M., Rist J., Kaiser L., Bray A. W., Schmidt L. P. H., Williams J., Jahnke T., Dörner R., Schöffler M. S., and Kheifets A. S. // *Physical Review Research*. — 2020. — Vol. 2, no. 3. — P. 033080.
- [8] Attosecond angular streaking on H₂ with all-ionic fragments detection / Quan W., Zhao M., Serov V. V., Wei M. Z., Zhou Y., Lai X. Y., Kheifets A. S., and Liu X. J. // *Journal of Physics: Conference Series*. — 2020. — Vol. 1412, no. 7. — P. 072043.
- [9] Attosecond molecular angular streaking with all-ionic fragments detection / Quan W., Serov V. V., Wei M., Zhao M., Zhou Y., Wang Y., Lai X., Kheifets A. S., and Liu X. // *Physical Review Letters*. — 2019. — Vol. 123, no. 22. — P. 223204.

- [10] Serov V. V., Bray A. W., Kheifets A. S. Numerical attoclock on atomic and molecular hydrogen // *Physical Review A*. — 2019. — Vol. 99, no. 6. — P. 063428.
- [11] Imaging the square of the correlated two-electron wave function of a hydrogen molecule / Waitz M., Bello R. Y., Metz D., Lower J., Trinter F., Schober C., Keiling M., Lenz U., Pitzer M., Mertens K., Martins M., Viehhaus J., Klumpp S., Weber T., Schmidt L. P. H., Williams J. B., Schöffler M. S., Serov V. V., Kheifets A. S., Argenti L., Palacios A., Martín F., Jahnke T., and Dörner R. // *Nature Communications*. — 2017. — Vol. 8, no. 1.
- [12] Serov V. V., Kheifets A. S. Time delay in XUV/IR photoionization of H₂O // *Journal of Chemical Physics*. — 2017. — Vol. 147, no. 20. — P. 204303.
- [13] Serov V. V. Orthogonal fast spherical Bessel transform on uniform grid // *Computer Physics Communications*. — 2017. — Vol. 216. — P. 63–76.
- [14] Serov V. V., Kheifets A. S. Angular anisotropy of time delay in XUV+IR photoionization of H₂⁺ // *Physical Review A*. — 2016. — Vol. 93, no. 6. — P. 063417.
- [15] Serov V. V., Kheifets A. S. A time-dependent analysis of transfer ionization in one-dimensional kinematics // *Journal of Physics: Conference Series*. — 2015. — Vol. 635, no. 2. — P. 022009.
- [16] Serov V. V., Derbov V. L., Sergeeva T. A. Interpretation of the time delay in the ionization of Coulomb systems by attosecond laser pulses // *Advanced Lasers*. — Berlin : Springer Netherlands, 2015. — Vol. 193 of Springer Series in Optical Sciences. — P. 213–230.
- [17] Serov V. V., Sergeeva T. A. Solution of the Schrödinger equation using exterior complex scaling and fast Fourier transform // *Mathematical Modelling and Geometry*. — 2015. — Vol. 4, no. 1. — P. 1–18.
- [18] Serov V. V., Kheifets A. S. p-H symmetry breaking in dissociative photoionization of H₂ due to the molecular ion interacting with the ejected electron // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2014. — Vol. 89, no. 3. — P. 031402.
- [19] Serov V. V., Kheifets A. S. Time-dependent calculations of transfer ionization by fast proton-helium collision in one-dimensional kinematics // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2014. — Vol. 90, no. 6. — P. 062706.

- [20] Serov V. V., Kheifets A. S. Dissociative ionization of H_2 by 400 eV circularly polarized photons // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 2014. — Vol. 47, no. 11. — P. 115006.
- [21] Derbov V. L., Serov V. V., Sergeeva T. A. Attosecond pulse measurements and time delay in the ionization of Coulomb systems // 2014 16th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON). — IEEE. — 2014. — P. 1–7.
- [22] Серов В. В., Сергеева Т. А. Получение амплитуды ионизации из решения временного уравнения Шрёдингера с помощью потока вероятности сквозь поверхность // Вестник Российского университета дружбы народов. Серия: Математика, информатика, физика. — 2014. — № 2. — С. 419–430.
- [23] Hybrid surface-flux method for extraction of the ionization amplitude from the calculated wave function / Serov V. V., Derbov V. L., Sergeeva T. A., and Vinitzky S. I. // Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2013. — Vol. 88, no. 4. — P. 043403.
- [24] Serov V. V., Derbov V. L., Sergeeva T. A. Interpretation of time delay in the ionization of two-center systems // Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2013. — Vol. 87, no. 6. — P. 063414.
- [25] Серов В. В. Расчет «из первых принципов» двукратной ионизации атомов // Ядерная Физика. — 2013. — Т. 76, № 2. — С. 176–183.
- [26] Современные методы расчета фотоионизации и ионизации электронным ударом двухэлектронных атомов и молекул / Серов В. В., Дербов В., Сергеева Т. и Виноцкий С. // Физика элементарных частиц и атомного ядра. — 2013. — Т. 44, № 4. — С. 1434–1499.
- [27] Derbov V. L., Serov V. V., Sergeeva T. A. Interpretation of the ultrafast optical measurements of time delay in the ionization of Coulomb systems // 2013 International Conference on Advanced Optoelectronics and Lasers (CAOL 2013). — IEEE. — 2013. — P. 271–274.
- [28] Ivanov I. A., Kheifets A. S., Serov V. V. Attosecond time-delay spectroscopy of the hydrogen molecule // Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics. — 2012. — Vol. 86, no. 6. — P. 063422.

- [29] Serov V. V., Ivanov I. A., Kheifets A. S. Single-photon double ionization of H_2 away from equilibrium: A showcase of two-center electron interference // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2012. — Vol. 86, no. 2. — P. 025401.
- [30] Serov V. V., Joulakian B. B. The external complex scaling method in prolate spheroidal coordinates for the electron impact ionization of molecular hydrogen // *Journal of Physics: Conference Series*. — 2012. — Vol. 388, no. 5. — P. 052039.
- [31] Serov V. V. Calculation of intermediate-energy electron-impact ionization of molecular hydrogen and nitrogen using the paraxial approximation // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2011. — Vol. 84, no. 6. — P. 062701.
- [32] Serov V. V., Sergeeva T. A. Validity of the Wannier threshold law for angular correlation width in double photoionization of atoms // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2010. — Vol. 82, no. 6. — P. 063413.
- [33] Serov V. V., Joulakian B. B. Calculation of the multifold differential cross section of the electron-impact ionization of molecular hydrogen by prolate spheroidal external complex scaling method with second Born corrections // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2010. — Vol. 82, no. 2. — P. 022705.
- [34] Serov V. V., Joulakian B. B. Implementation of the external complex scaling method in spheroidal coordinates: Impact ionization of molecular hydrogen // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2009. — Vol. 80, no. 6. — P. 062713.
- [35] Серов В. В., Сергеева Т. А., Дербов В. Л. Угловые корреляции в однофотонной двойной ионизации гелиеподобных ионов // *Проблемы Оптической Физики и Биофотоники*. — 2009. — С. 141–145.
- [36] Charge-scaling law for angular correlation in double photoionization of ions and atoms with two active electrons / Serov V. V., Derbov V. L., Joulakian B. B., and Vinitzky S. I. // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2008. — Vol. 78, no. 6. — P. 063403.
- [37] Wave-packet-evolution approach for single and double ionization of two-electron systems by fast electrons / Serov V. V., Derbov V. L., Joulakian B. B., and

- Vinitsky S. I. // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2007. — Vol. 75, no. 1. — P. 012715.
- [38] Double ionization of hydrogen molecule by fast electron impact: Calculation using exact wave functions of two-center continuum / Serov V. V., Derbov V. L., Lobanov V. I., and Vinitsky S. I. // *SPIE Proceedings* / ed. by Derbov V. L., Melnikov L. A., Babkov L. M. — SPIE. — 2007. — Vol. 6537. — P. 65370M–1–6.
- [39] Joulakian B., Serov V., Lahmidi N. Correlation effects in electron-diatomic molecule inelastic collisions // *AIP Conference Proceedings*. — AIP. — 2006. — Vol. 811. — P. 150.
- [40] Ionization excitation of diatomic systems having two active electrons by fast electron impact: A probe to electron correlation / Serov V. V., Joulakian B. B., Derbov V. L., and Vinitsky S. I. // *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. — 2005. — Vol. 38, no. 15. — P. 2765–2773.
- [41] Adaptive numerical methods for time-dependent Schrödinger equation in atomic and laser physics / Derbov V. L., Kaschiev M. S., Serov V. V., Gusev A. A., and Vinitsky S. I. // *SPIE Proceedings* / ed. by Zimnyakov D. A., Derbov V. L., Melnikov L. A., Babkov L. M. — SPIE. — 2003. — Vol. 5067. — P. 52–60.