УДК 537.563.5+539.183.4

Агре М. Я.

КІНЕМАТИКА ПРОЦЕСУ ДВОФОТОННОЇ ІОНІЗАЦІЇ АТОМАРНИХ СИСТЕМ

На основі загальних міркувань симетрії встановлено компактний інваріантний вираз для кутового розподілу фотоелектронів, що в процесі двофотонної іонізації вилітають з неполяризованих атомів та молекул. У цьому розподілі повністю відокремлено залежність від усіх геометричних параметрів. Показано, що в кутовому розподілі фотоелектронів з оптично активних молекул можна спостерігати ефект кругового дихроїзму, тоді як для молекул, що не мають оптичної активності, та атомів залишається тільки специфічний ефект еліптичного дихроїзму. Отримано також: інваріантний вираз для повної ймовірності двофотонної іонізації аксіально-симетрично поляризованих (орієтованих та вишикуваних) атомарних систем. Проаналізовано ефекти кругового та еліптичного дихроїзмів процесу іонізації, що спричиняються орієнтацією та вишикуваністю.

1. Вступ

Добре відомо, що фотоефект характеризується червоною межею: він припиняється, коли енергія фотона, що поглинається електроном зі світлової хвилі, стає недостатньою для відриву електрона від системи, з якою він був зв'язаний (атома, молекули чи твердого тіла). Але це не означає, що відрив електрона за таких умов стає неможливим взагалі. В принципі, електрон може, поглинувши одночасно два, три чи більше фотонів, успішно подолати відповідний енергетичний бар'єр. І хоча в ідейному плані можливість такого процесу, який дістав назву багатофотонного фотоефекту для твердого тіла, чи багатофотонної іонізації для атомів та молекул, не викликає сумніву, його експериментальне спостереження та дослідження стало можливим тільки з 60-х років минулого століття після винаходу лазера й широкого застосування цього приладу у наукових дослідженнях. Річ у тім, що багатофотонні процеси стають помітними тільки у достатньо потужному електромагнітному полі, яке опромінює фізичну систему. Останнє зрозуміло вже з елементарних фізичних міркувань: ймовірність зустріти водночас два, три тощо фотонів, очевидно, зростає зі збільшенням густини потоку фотонів, що є пропорційною інтенсивності електромагнітного випромінювання.

З початку дослідження багатофотонних процесів в атомних системах, і зокрема багатофотонної іонізації, накопичено величезну кількість експериментального та теоретичного матеріалу. Результати перших 10-15 років досліджень були узагальнені в монографіях [1, 2]. У книзі [2] серед іншого докладно розглядаються розроблені авторами ефективні методи розрахунку атомних складених матричних елементів, що цілком природно виникають у разі застосування в теорії багатофотонних процесів різних варіантів квантово-механічної теорії збурень. З подальшими результатами, одержаними в дослідженнях процесу багатофотонної іонізації, можна ознайомитись за оглядовою працею [3] та нещодавнім оглядом [4].

У нашому дослідженні процесу двофотонної іонізації вважатимемо, що для врахування взаємодії електромагнітного випромінювання з атомарною системою, яку воно іонізує, можна застосовувати теорію збурень. Далеко від резонансу, тобто коли енергія фотона є достатньо віддаленою від енергії збудження системи, це припущення виконується, якщо напруженість електричного поля світлової хвилі є значно меншою за характерне поле F_n, що діє на атомарні електрони [1]. Отже поле хвилі не є надсильним. Після одержання у другому

[1] Так, наприклад, для оптичного електрона в основному та не сильно збудженому станах $F_n \sim 5 \cdot 10^9$ В/см.

порядку теорії збурень загального виразу для ймовірності двофотонної іонізації задача суттєво спрощується, якщо у цьому виразі відокремити геометричні та динамічні параметри. Взагалі це робиться за допомогою методів алгебри кутового момента [5]. Динамічні параметри визначаються внутрішньою структурою атомарної системи (включно зі структурою початкового стану атома чи молекули), і їх розрахунок є достатньо складною остаточно не розв'язаною задачею (див., наприклад, [2]). Навпаки, залежність ймовірності процесу від геометричних параметрів має загальний характер, і дуже важливо подати цю залежність у простому компактному та зручному для аналізу вигляді. Подібний запис виразу для процесу іонізації, з одного боку, дає змогу передбачити у загальному випадку різноманітні ефекти, що можна спостерігати на експерименті (включно з тонкими ефектами залежності процесу від поляризації іонізуючого випромінювання), а з другого боку — є корисним під час постановки й розв'язання оберненої задачі експериментального визначення динамічних параметрів атомної системи.

Слід зазначити, що для фотоефекту (однофотонної іонізації), який є найкраще вивченим елементарним фотопроцесом і у такому сенсі може бути названий класичним, диференціальний переріз, тобто кутовий розподіл фотоелектронів, визначається у дипольному наближенні двома динамічними атомними параметрами — повним перерізом фотоефекту σ та скалярним параметром кутової асиметрії β [6]. У загальному випадку повної поляризації іонізуючого випромінювання (еліптичної поляризації), яка задається одиничним комплексним вектором поляризації e, кутовий розподіл фотоелектронів при фотоефекті записується у такому вигляді (див., наприклад, [7]) [2]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi}\left(1+\beta\frac{3|\mathbf{e}\cdot\mathbf{p}|^2-1}{2}\right). \qquad (1)$$

Тут **p** — одиничний вектор, який задає напрямок руху фотоелектрона, причому маємо на увазі, що іонізується атом або молекула, яка не має оптичної активності, і, крім того, у початковому стані атомарна система була неполяризованою, тобто її квантові стани з різними значеннями проекції момента імпульсу на будь-яку вісь мали однакову заселеність. У нашій недавній праці [7] було одержано узагальнення формули (1) на випадок однофотонної іонізації поляризованої атомарної системи, разом з оптично активними молекулами, причому було показано, що всі ці результати фактично отримані на основі загальних міркувань симетрії без заглиблення у динаміку процесу. Що ж до двофотонної іонізації, то, як нам відомо, навіть у випадку неполяризованої атомної системи для кутового розподілу електронів у літературі не наводились загальні формули типу (1). Вираз для кутового розподілу фотоелектронів записувався та аналізувався тільки у найпростіших випадках лінійної та циркулярної поляризацій іонізуючого атом випромінювання, причому в останньому випадку додатково ще припускалося, що орбітальний момент атома у початковому стані дорівнював нулю (S-стан). Отже, метою даної праці є одержання та аналіз загального виразу для кутового розподілу фотоелектронів, що утворюються в процесі двофотонної іонізації неполяризованих атомарних систем. Буде також виведена формула для повної ймовірності двофотонної іонізації поляризованих систем.

План статті є таким. У наступному розділі покажемо, як із міркувань симетрії можна в рамках дипольного наближення встановити загальну структуру виразу для ймовірності двофотонної іонізації атомарної системи, в якому геометричні та динамічні параметри вже відокремлені. Прості компактні формули для кутового розподілу фотоелектронів, що вилітають з неполяризованих атомів та молекул, виведемо в розділах 3 та 4, де також детально проаналізуємо ефекти кругового та еліптичного дихроїзмів у кутовому розподілі. Низка корисних тотожностей, необхідних для виведення цих формул, наводиться у Додатку. Нарешті в розділі 5 одержуємо та аналізуємо вираз для повної ймовірності двофотонної іонізації аксіально-симетрично поляризованої атомарної системи.

[2] У праці [6] наводиться вираз для кутового розподілу фотоелектронів тільки у випадках лінійної та циркулярної поляризацій електромагнітного випромінювання.

2. Відокремлення геометричних та динамічних параметрів у загальному виразі для ймовірності двофотонної іонізації

Виходячи зі стандартних наближень, які використовуються в теорії двофотонної іонізації, та керуючись міркуваннями симетрії, можна встановити залежність ймовірності процесу від геометричних параметрів, тобто векторів, що його характеризують. Покажемо, як це робиться.

У другому порядку теорії збурень за взаємодією $\widehat{V}$ атомарної системи із зовнішнім електромагнітним полем, що її іонізує, ймовірність переходу системи в кінцевий стан $|f\rangle$ з поглинанням двох фотонів пропорційна такому виразу:

$$\sum_{m,m',\dots} \langle f|\widehat{V}\widehat{G}_{E_i+\hbar\omega}\widehat{V}|\nu_i jm\rangle\langle jm|\widehat{\rho}|jm'\rangle\times \\ \times\langle \nu_i jm'|\widehat{V}^{+}\widehat{G}^{+}_{E_i+\hbar\omega}\widehat{V}^{+}|f\rangle. \quad (2)$$

Тут припускається, що початковий стан системи був змішаним за проекціями її момента імпульсу m (спін-поляризований стан [8]) і, отже, задавався матрицею густини $\langle jm|\widehat{\rho}|jm'\rangle$, де j — квантове число повного момента імпульсу (спіна) системи. Далі, ν_i позначає набір внутрішніх квантових чисел початкового стану. В цей набір вже не входять квантові числа j та m. Крапками в підсумовуванні позначається можлива сума за деякими квантовими числами кінцевого стану $|f\rangle$, $\widehat{G}_E$ — функція Гріна незбуреної атомарної системи (резольвента гамільтоніана),

$$\widehat{G}_E = \sum_n \frac{|n\rangle\langle n|}{E_n - E - i0},$$

E_i — енергія початкового стану, ω — частота іонізуючого випромінювання. Електромагнітне випромінювання вважається повністю поляризованим, тобто його поляризація може бути задана одиничним комплексним вектором $\mathbf{e}$. У дипольному наближенні[3] оператор взаємодії з електромагнітним випромінюванням $\widehat{V}$ в (2) є пропорційний скалярному добутку $\mathbf{e}\cdot\mathbf{d}$,

$$\widehat{V} \sim \mathbf{e}\cdot\mathbf{d} = \sum_{q=-1}^{1} e_q d_{-q}, \quad (3)$$

де $\mathbf{d}$ — оператор дипольного момента атомарної системи, і через a_q, $q=0,\ \pm1$ тут і далі позначаються сферичні компоненти вектора $\mathbf{a}$ [5], які зв'язані з його декартовими компонентами:

$$a_{\pm1} = \mp\frac{1}{\sqrt{2}}(a_x \pm i a_y), \quad a_0 = a_z. \quad (4)$$

Вважатимемо тут, що процес іонізації характеризується, крім вектора поляризації е, тільки одним додатковим вектором. Таке припущення, очевидно, виконується в двох наступних випадках:

1. У початковому стані атомарна система є вільноорієнтованою (неполяризованою), що є найбільш типовою ситуацією, окрім того, експериментатор цікавиться тільки кутовим розподілом фотоелектронів і не вимірює їх спінову поляризацію. Неполяризованій системі відповідає матриця густини
$$\langle jm|\widehat{\rho}|jm'\rangle = \frac{\delta_{mm'}}{2j+1} \quad (5)$$
(рівнозаселеність станів з різними значеннями проекції момента імпульсу), а кутовому розподілу фотоелектронів — підсумовування у (2) також за проекціями спіна фотоелектрона і фотоіона у кінцевому стані $|f\rangle$. Внаслідок такого підсумовування в диференціальній імовірності двофотонної іонізації (2), окрім $\mathbf{e}$ залишиться залежність тільки від напрямку руху фотоелектрона, що задається одиничним вектором $\mathbf{p}$.
2. Вимірюється тільки повна кількість фотоелектронів чи іонів, що з'явилися

[3] Для процесу двофотонної іонізації енергія фотона є меншою, ніж енергія іонізації системи, отже умова застосовності дипольного наближення — довжина електромагнітної хвилі є значно більшою за розміри атомарної системи — чітко виконується.

(тобто повна проінтегрована за напрямками руху фотоелектрона $\mathbf{p}$ імовірність іонізації), але у початковому стані атомарна система була аксіально-симетрично поляризованою (див. далі розділ 5). Якщо вісь симетрії задається одиничним вектором $\mathbf{n}$, то у цьому разі повна ймовірність іонізації має залежати від векторів $\mathbf{e}$ та $\mathbf{n}$.

Для відокремлення залежності від геометричних параметрів у виразі для ймовірності двофотонної іонізації нагадаємо, що сферичні компоненти вектора (4) утворюють незвідний тензор першого рангу [5]. З двох незвідних тензорів A_{rq} та $B_{r'q'}$ рангів r та r' можна утворити незвідні тензори рангів $K = r + r'$, $r + r' - 1, \ldots, |r - r'|$ за правилом (використовується позначення з праці [5])

$$\{A_r \otimes B_{r'}\}_{KQ} = \sum_{q,q'} C^{KQ}_{rqr'q'} A_{rq} B_{r'q'}, \qquad (6)$$

де $C^{KQ}_{rqr'q'}$ — коефіцієнти Клебша–Гордона. Скалярний добуток двох незвідних тензорів позначатимемо круглою дужкою:

$$(A_r \cdot B_r) = \sum_{q=-r}^{r} (-1)^q A_{rq} B_{r-q} = $$
$$= (-1)^r \sqrt{2r+1}\, \{A_r \otimes B_r\}_{00}. \qquad (7)$$

Відповідно до правила (6) з вектора поляризації $\mathbf{e}$ можна скласти незвідні тензори рангів $r = 0, 1$ та 2

$$\{\mathbf{e} \otimes \mathbf{e}\}_{rQ} = \sum_{q,q'} C^{rq}_{1q1q'} e_q e_{q'}, \qquad (8)$$

причому скаляр є пропорційним скалярному добутку:

$$\{\mathbf{e} \otimes \mathbf{e}\}_{00} = -\frac{1}{\sqrt{3}}\, \mathbf{e} \cdot \mathbf{e}$$

(див., наприклад, [5]), а тензор першого рангу пропорційний векторному добутку:

$$\{\mathbf{e} \otimes \mathbf{e}\}_1 = \frac{i}{\sqrt{2}}\, \mathbf{e} \times \mathbf{e} = 0.$$

Обертаючи співвідношення (8), можна виразити добутки компонент $e_q e_{q'}$, що входять у (2) з оператором взаємодії (3), через компоненти незвідних тензорів $\{\mathbf{e} \otimes \mathbf{e}\}_r$, $r = 0,\ 2$. Так само добутки $(e^*)_q (e^*)_{q'}$ записуються через компоненти тензорів $\{\mathbf{e}^* \otimes \mathbf{e}^*\}_r$. З другого боку, добутки компонент цих тензорів

$$\{\mathbf{e} \otimes \mathbf{e}\}_{rQ} \{\mathbf{e}^* \otimes \mathbf{e}^*\}_{r'Q'},$$

що з'являються в результаті даної операції у виразі (2), можна аналогічним способом записати через компоненти незвідних тензорів:

$$\{\{\mathbf{e} \otimes \mathbf{e}\}_r \otimes \{\mathbf{e}^* \otimes \mathbf{e}^*\}_{r'}\}_K,$$

$K = 0, 1, 2, 3, 4$. Отже, вся залежність від векторів поляризації електромагнітної хвилі в (2) може бути включена в ці останні незвідні тензори. Враховуючи тепер, що ймовірність іонізації є скаляром і крім вектора $\mathbf{e}$ процес, як було припущено, характеризується ще тільки одним вектором (візьмемо для певності вектор $\mathbf{p}$), дійдемо висновку, що вираз для диференціального перерізу процесу двофотонної іонізації повинен мати таку структуру:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sum_{K=0}^{4} \sum_{r,r'} \Big(A_K^{r,r'}(\mathbf{p}) \cdot$$
$$\cdot \{\{\mathbf{e} \otimes \mathbf{e}\}_{\mathrm{r}} \otimes \{\mathbf{e}^* \otimes \mathbf{e}^*\}_{\mathrm{r}'}\}_{\mathrm{K}} \Big). \qquad (9)$$

Під перерізом тут і далі розумітимемо відношення ймовірності іонізації за одиницю часу до квадрата густини потоку фотонів, тобто величину, що не залежить від інтенсивності іонізуючого випромінювання. Явну залежність компонент незвідного тензора $A^{rr'}_{KQ}(\mathbf{p})$ в (9) від вектора $\mathbf{p}$ також можна встановити із загальних міркувань симетрії без конкретизації структури атомарної мішені та подальших наближень, що зазвичай робляться в атомарних розрахунках. Справді, незвідним тензором K-го рангу, який породжено вектором $\mathbf{p}$, є, наприклад,

$$\{\ldots\{\{\mathbf{p} \otimes \mathbf{p}\}_2 \otimes \mathbf{p}\}_3 \ldots \otimes \mathbf{p}\}_{KQ}.$$

З другого боку, будь-який з таких тензорів, що є функцією тільки одного одиничного вектора $\mathbf{p}$, має бути пропорційним сферичній функції

$Y_{KQ}(\mathbf{p})$[4]. Це твердження легко довести, розклавши компоненти подібного тензора в ряд за сферичними функціями і пригадавши, що набір сферичних функцій $Y_{lm}(\mathbf{p})$ утворює за визначенням [5] незвідний тензор рангу l. Таким чином,

$$A^{rr'}_{KQ}(\mathbf{p}) = a^{rr'}_K \, \{\ldots\{\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\}_2\ldots\otimes\mathbf{p}\}_{KQ}\,, \tag{10}$$

де константи $a^{rr'}_K$ є динамічними параметрами атомарної системи.

Формули (9) та (10) визначають у явному вигляді залежність ймовірності процесу двофотонної іонізації від геометричних параметрів системи. Відзначимо, що індекси підсумовування r та r' в (9) фактично набувають тільки значень 0 і 2, бо незвідний тензор першого рангу (8), утворений з вектора поляризації $\mathbf{e}$ (або $\mathbf{e}^*$), дорівнює, як було вказано, нулю.

3. Кутовий розподіл фотоелектронів. Ефект еліптичного дихроїзму

Формулами (9) та (10), де $\mathbf{p}$ — одиничний вектор вздовж напрямку руху фотоелектрона, визначається кутовий розподіл електронів, що вилітають з неполяризованої атомарної системи в процесі двофотонної іонізації. Зауважимо, що динамічні параметри $a^{rr'}_K$ залежать від структури початкового стану та інших властивостей системи і за стандартних наближень можуть в принципі бути виражені через радіальні складені матричні елементи другого порядку (див., наприклад, [2]), $6j$-коефіцієнти і т. ін. У нашій праці зосередимось на геометричній частині кутового розподілу фотоелектронів і в цьому розділі розглянемо випадок іонізації атомів або таких молекул, що не мають оптичної активності (тобто нехіральних молекул). Стан подібних атомарних систем не змінюється при операції просторової інверсії, а отже їх динамічні параметри є справжніми скалярами (не змінюють знак при інверсії). З другого боку, вектор $\mathbf{p}$ та незвідний тензор $\{\{\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\}_2\otimes\mathbf{p}\}_3$ змінюють знак при просторовій інверсії (є P-непарними). Враховуючи, що незвідні тензори, складені з векторів поляризації в (9), є P-парними, а сам переріз іонізації є справжнім скаляром, доходимо висновку, що для атомів та нехіральних молекул $a^{rr'}_K = 0$ при $K = 1$, 3.

Кутовий розподіл фотоелектронів (9) можна подати у простому та зручному для аналізу вигляді, якщо записати скалярні добутки незвідних тензорів, складені з вектора поляризації $\mathbf{e}$ та вектора $\mathbf{p}$, через скалярні та векторні добутки векторів. Ця операція виконується за допомогою тотожностей (Д.1), (Д.2), (Д.4), (Д.5) та (Д.7), наведених у Додатку. Наводимо остаточний результат:

$$\begin{aligned}\frac{d\sigma^{(a)}}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} + \frac{2}{3\sqrt{3}}\left(\mathrm{Re}\,a^{02}_2 + \frac{1}{\sqrt{7}}a^{22}_2\right)\times \\ \times\left[1 - 3|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|^2\right] + \frac{1}{3\sqrt{3}}\xi^2\times \\ \times\left(\mathrm{Re}\,a^{02}_2 - \frac{2}{\sqrt{7}}a^{22}_2\right)\left[1 - 3|\mathbf{k}\cdot\mathbf{e}|^2\right] + \\ + \frac{2}{\sqrt{3}}\,\mathrm{Im}\,a^{02}_2\xi\,\mathrm{Re}\left[\mathbf{k}\cdot(\mathbf{p}\times\mathbf{e})(\mathbf{p}\times\mathbf{e}^*)\right] + \\ + a^{22}_4\left[|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|^4 - \frac{1}{7}\left(6|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|^2 - \xi^2(\mathbf{p}\times\mathbf{k})^2\right) + \right. \\ \left. + \frac{1}{35}(3-\xi^2)\right],\end{aligned} \tag{11}$$

де

$$\sigma = \frac{4\pi}{3}\left[a^{00}_0 + \frac{2}{\sqrt{5}}\,a^{22}_0 + \left(\frac{1}{\sqrt{5}}\,a^{22}_0 - a^{00}_0\right)\xi^2\right] \tag{12}$$

— повний проінтегрований за всіма напрямками фотоелектрона переріз двофотонної іонізації. У виразі (11) цілком природно з'явилися одиничний вектор $\mathbf{k}$, спрямований вздовж напрямку поширення електромагнітної хвилі, та ступінь її циркулярної поляризації ξ:

$$\xi = i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{e}\times\mathbf{e}^*). \tag{13}$$

Для правої (лівої) циркулярної поляризації $\xi = \pm 1$, за лінійної поляризації $\xi = 0$, у загальному ж випадку еліптичної поляризації

[4] Див., наприклад, [5]:

$$\{\ldots\{\{\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\}_2\otimes\mathbf{p}\}_3\ldots\otimes\mathbf{p}\}_{KQ} = \sqrt{\frac{4\pi K!}{(2K+1)!!}}Y_{KQ}(\mathbf{p}).$$

$0<|\xi|<1$. Через ξ та $\mathbf{k}$ виражається векторний добуток $\mathbf{e}^* \times \mathbf{e} = i\xi\mathbf{k}$, крім того, квадрат ступеня лінійної поляризації хвилі $l = |\mathbf{e}\cdot\mathbf{e}|$ всюди у виразі (11) записується через ξ^2 відповідно до тотожності $l^2+\xi^2=1$.

Формула (11) дає змогу проаналізувати різноманітні ефекти, що їх можна спостерігати у кутовому розподілі електронів у разі двофотонної іонізації. У цьому зв'язку варто зазначити, що вираз для диференціального перерізу звичайного фотоефекту (однофотонної іонізації) (1) містить тільки скалярний добуток $|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|^2$. У кутовому розподілі фотоелектронів при двофотонній іонізації, зокрема, з'являється нетривіальна залежність від поляризації світлового випромінювання. Найцікавішим, на нашу думку, є несподіваний ефект, що спричиняється лінійним за ступенем циркулярної поляризації ξ доданком у виразі (11): в напрямках, що не є колінеарними напрямку поширення електромагнітної хвилі $\mathbf{k}$, потік фотоелектронів залежить від знаку ξ, тобто від того, за чи проти годинникової стрілки обертається вектор напруженості поля електромагнітної хвилі.

Зауважимо, що лінійні за псевдоскалярним ступенем циркулярної поляризації ξ (13) ефекти відомі для низки атомних фотопроцесів: фотоефект у оптично активних молекулах [9, 10], розсіяння світла (з урахуванням квадрупольних ефектів) атомами [11], дипольне розсіяння світла орієнтованими [12] та вишикуваними [13] системами, фотоефект у спін-поляризованих системах [7, 14] та інші. Подібні ефекти заведено називати ефектами кругового (циркулярного) дихроїзму, бо атомарна система по-різному взаємодіє з електромагнітною хвилею правої та лівої циркулярної поляризації. Але в нашому випадку кругового дихроїзму в означеному тут сенсі немає, бо у разі циркулярної поляризації хвилі скалярна конструкція

$$\xi\,\mathrm{Re}\left[\mathbf{k}\cdot(\mathbf{p}\times\mathbf{e})(\mathbf{p}\times\mathbf{e}^*)\right] \tag{14}$$

у виразі (11) перетворюється на нуль. Це вже очевидно з міркувань симетрії: у разі циркулярної поляризації світла залишаються тільки два вектори $\mathbf{k}$ та $\mathbf{p}$, від яких може залежати кутовий розподіл фотоелектронів, але з цих векторів не можна утворити псевдоскаляр, який множиться на псевдоскаляр ξ у виразі для перерізу процесу. Безпосередньо ж у тому, що вираз (14) дорівнює нулю, легко переконатися, враховуючи, що для векторів правої та лівої циркулярної поляризації

$$\mathbf{e}_\pm = \mp\frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y)$$

($\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$ – одиничні орти осей x, y) виконується співвідношення $\mathbf{e}_+ = -\mathbf{e}_-^*$, а отже

$$\begin{aligned}\mathrm{Re}\left[\mathbf{k}\cdot(\mathbf{p}\times\mathbf{e}_+)\left(\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}_+^*\right)\right] &= \\ = \mathrm{Re}\left[\mathbf{k}\cdot(\mathbf{p}\times\mathbf{e}_-)\left(\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}_-^*\right)\right] &= \\ = \frac{1}{2}\sum_{\lambda=\pm}\mathrm{Re}\left[\mathbf{k}\cdot(\mathbf{p}\times\mathbf{e}_\lambda)\left(\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}_\lambda^*\right)\right]&,\end{aligned}$$

і застосовуючи для суми за двома взаємно ортогональними поляризаціями відому тотожність [15]:

$$\sum_{\lambda=\pm}(\mathbf{a}\cdot\mathbf{e}_\lambda)(\mathbf{b}\cdot\mathbf{e}_\lambda^*) = (\mathbf{a}\times\mathbf{k})\cdot(\mathbf{b}\times\mathbf{k}).$$

Таким чином, ефект, що спричиняється лінійним за ξ доданком у виразі (11), природніше назвати ефектом еліптичного дихроїзму в кутовому розподілі фотоелектронів. При еліптичній поляризації іонізуючого випромінювання ($0<|\xi|<1$) він визначає залежність потоку фотоелектронів від знаку ступеня циркулярної поляризації хвилі ξ.

Зауважимо, що скалярна конструкція (14) є T-непарною, тобто вона змінює знак при операції обернення часу (вектори $\mathbf{k}$ та $\mathbf{p}$ змінюють при оберненні часу напрямок на протилежний, а $\mathbf{e}$ змінюється на $\mathbf{e}^*$). Отже T-непарним має бути динамічний параметр $\mathrm{Im}\,a_2^{02}$ (див. (11)). У стандартному наближенні T-непарний динамічний параметр може виникати за рахунок T-непарної фази розсіяння фотоелектрона на іоні (у кутовий розподіл фотоелектронів входить синус різниці фаз). Крім того, за резонансної двофотонної іонізації з'являється додатковий T-непарний дисипативний параметр – ширина резонансного рівня, який входить у динамічні параметри системи через антиермітову частину $\widehat{G}$-оператора в (2). Аналогічні прояви дисипативних ефектів у процесах розсіяння світла розглядались у працях [11, 13].

4. Круговий дихроїзм у кутовому розподілі електронів при іонізації оптично активних молекул

Стан оптично активної (хіральної) молекули змінюється при операції просторової інверсії. Тому серед динамічних параметрів такої молекули можуть бути як справжні скаляри, так і псевдоскаляри. Таким чином, псевдоскалярні при $K = 1$, 3 параметри $a_K^{rr'}$ не дорівнюють нулю, і в суму (9), що визначає кутовий розподіл фотоелектронів, дають внесок всі доданки. Кутовий розподіл тепер можна подати у такому вигляді:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{d\sigma^{(a)}}{d\Omega} + \frac{d\sigma^{(x)}}{d\Omega}, \tag{15}$$

де перший доданок визначається формулою (11), а другий, що містить внесок хіральних ефектів, виходить з відповідних доданків у виразі (9) ($K = 1$, 3) при застосуванні тотожностей (Д.3) та (Д.6):

$$\frac{d\sigma^{(x)}}{d\Omega} = -\sqrt{\frac{2}{5}}\, a_1^{22} \xi\, \mathbf{k}\cdot\mathbf{p} + \\ + a_3^{22} \xi\, \mathbf{k}\cdot\mathbf{p} \left(|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|^2 - \frac{1}{5} \right). \tag{16}$$

Обидва доданки в (16) є лінійними за ступенем циркулярної поляризації електромагнітної хвилі ξ (13), не зникають за циркулярної поляризації і, отже, призводять до ефекту циркулярного дихроїзму в кутовому розподілі фотоелектронів (див. також обговорення у попередньому розділі). Як відомо, ефект кругового дихроїзму у кутовому розподілі має спостерігатися і за умови однофотонної іонізації (фотоефект) хіральних молекул [9,10], відповідно, в диференціальному перерізі фотоефекту присутня псевдоскалярна конструкція $\xi\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ [7].

Ефект кругового дихроїзму, спричинений хіральністю молекули, очевидно, зникає, якщо фотоелектрони реєструються у напрямку, перпендикулярному до напрямку поширення електромагнітної хвилі $\mathbf{k}$ (див. (16)). Отже, у цьому напрямку можна спостерігати тільки ефект еліптичного дихроїзму, що докладно обговорювався у розділі 3.

Нарешті відзначимо, що в повній імовірності іонізації неполяризованої системи ефекти кругового та еліптичного дихроїзмів не проявляються, а відповідний переріз процесу визначається формулою (9). Справді, при інтегруванні виразу (11), а отже і (15), за всіма $\mathbf{p}$ доданки з $K \neq 0$, що є пропорційними сферичній функції $Y_{KQ}(\mathbf{p})$, очевидно, зникають. Але на відміну від класичного фотоефекту (однофотонної іонізації) у повній імовірності двофотонної іонізації все ж таки залишається залежність від стану поляризації електромагнітної хвилі, бо повний переріз процесу (12) містить ξ^2 (див. також [2]).

5. Іонізація орієнтованих та вишикуваних систем

У розділі 2 зазначалось, що якщо у початковому стані атомарна система була аксіально-симетрично поляризованою, то повна ймовірність її іонізації залежить від вектора поляризації електромагнітної хвилі $\mathbf{e}$ та одиничного вектора $\mathbf{n}$, який задає напрямок осі симетрії спін-поляризованої системи. Фактично це означає, що формули, одержані у попередніх розділах цієї праці, визначають, за незначної зміни позначень, залежність повної проінтегрованої за напрямками руху фотоелектрона ймовірності двофотонної іонізації спін-поляризованої атомарної системи від геометричних параметрів. Перед тим як навести відповідні формули, зробимо кілька зауважень стосовно стану поляризованої квантової системи та способу його математичного опису.

Нехай квантове число повного момента імпульсу (спіна) атома чи молекули (далі для стислості казатимемо атом) $j \neq 0$. Із загальних міркувань, що базуються на властивостях стану статистичної рівноваги, зрозуміло, що за відсутності зовнішніх полів квантові стани атома з різними значеннями проекції момента імпульсу на будь-яку вісь мають бути рівнозаселеними. Це означає, що у стані з певним значенням повного момента імпульсу j матриця густини атома є діагональною за проекціями момента імпульсу і визначається формулою (5). Квантову систему в такому стані називають неполяризованою, чи такою, що є вільноорієнтованою. Зауважимо, що хоча стан вільної орієнтації є сферично-симетричним і з цього погляду найпростішим станом атома з $j \neq 0$, але такому стану не можна поставити у відповідність хвильову функцію, тобто це не є чистий квантовий стан [8].

При різних зовнішніх діях на атом симетрія його стану, взагалі, порушується, і, відповідно, матриця густини стає недіагональною. Атомна система в такому стані називається поляризованою (спін-поляризованою). Стан поляризованої системи в атомній та ядерній фізиці зручно задавати не елементами матриці густини, а її незвідними компонентами ρ_{KQ}, які називаються мультиполями стану (статистичними тензорами) [8]. Розкладання елементів матриці густини за незвідними компонентами (фактично, визначення ρ_{KQ}) має такий вигляд:

$$\langle jm|\hat{\rho}|jm'\rangle = \sum_{K,Q}(-1)^{j-m}(2K+1)^{\frac{1}{2}}\times \times \begin{pmatrix} j & j & K \\ m & -m' & -Q \end{pmatrix} \rho_{KQ}, \quad (17)$$

де $\begin{pmatrix} a & b & c \\ \alpha & \beta & \gamma \end{pmatrix}$ — відомий з алгебри кутового моменту $3j$-символ, що пропорційний коефіцієнту Клебша–Гордона і задовольняє низці співвідношень симетрії [5]. Мультиполь стану ρ_{KQ}, де $K=0,\, 1,\, \ldots,\, 2j$, $Q=-K,\, -K+1,\, \ldots,\, K$, є незвідним тензором рангу K. За відсутності поляризації, коли система є сферично-симетричною, тільки скаляр (мультиполь стану нульового рангу)

$$\rho_{00} = (2j+1)^{-\frac{1}{2}} \quad (18)$$

не дорівнює нулю. У випадку спінової поляризації використовується така термінологія: якщо відрізняється від нуля хоча б один із мультиполей стану непарного (парного) рангу, то систему називають орієнтованою (вишикуваною). Задля уточнення типу поляризації будемо так само, як у наших попередніх працях з розсіяння світла [16, 17], розрізняти орієнтацію та вишикуваність різних порядків: якщо ненульовим є вектор ρ_{1Q}, пропорційний середньому моменту імпульсу поляризованої системи [8]

$$\rho_{1Q} = (-1)^Q\sqrt{3}\,[j(j+1)(2j+1)]^{-\frac{1}{2}}\,\overline{j}_{-Q},$$

говоритимемо про орієнтацію першого порядку, якщо тензор $\rho_{3Q} \neq 0$ — про орієнтацію другого порядку і т. д.; відповідно вишикуваність першого, другого і т. д. порядків зв'язується з відмінністю від нуля мультиполей стану другого, четвертого та наступних парних рангів.

Важливим випадком поляризації атома є аксіально-симетрична поляризація з віссю симетрії, що задається одиничним вектором $\mathbf{n}$. Такий тип поляризації виникає, очевидно, коли зовнішнє збурення, яке поляризує систему, також має аксіальну симетрію (наприклад, неполяризоване електромагнітне випромінювання чи випромінювання, що є поляризованим циркулярно або лінійно). Можна показати [8], що у разі аксіально-симетричної поляризації матриця густини атома має бути діагональною за проекціями моменту імпульсу атома M на напрямок $\mathbf{n}$. Це випливає також із простих фізичних міркувань: наявність осі симетрії означає, що стан поляризованої системи можна задати, вказавши лише одні заселеності станів з певними значеннями проекції моменту імпульсу M на цю вісь — діагональні елементи матриці густини. За умов аксіальної симетрії тільки нульові компоненти $\rho_{K0} \equiv \rho_K^n$ всіх мультиполей стану в системі координат, де вісь z спрямована вздовж $\mathbf{n}$, відрізняються від нуля [8] (див. (17)). Зауважимо, що всі ρ_K^n непарного рангу K змінюють знак при оберненні часу та просторовій інверсії, тобто вони є T-непарними псевдоскалярами, тоді як ρ_K^n парного рангу є T-парними скалярами. Зазначимо також, що у разі додаткової дзеркальної симетрії збурення, яке поляризує атомну систему (наприклад, неполяризоване електромагнітне випромінювання), всі мультиполі стану непарного рангу дорівнюють нулю, тобто система вишиковується, але не орієнтується [8]. Застосовуючи закон перетворення мультиполей стану при поворотах системи координат [8], можна знайти мультиполі стану аксіально-симетрично поляризованої системи у довільній системі координат:

$$\rho_{KQ} = \sqrt{\frac{4\pi}{2K+1}}(-1)^Q Y_{K,-Q}(\mathbf{n})\rho_K^n,$$

а підстановка цього виразу в формулу (17) визначає, відповідно, елементи матриці густини:

$$\langle jm|\widehat{\rho}|jm'\rangle =$$
$$= \sqrt{4\pi}\sum_{K,Q}(-1)^{j-m-Q}\begin{pmatrix} j & j & K \\ m & -m' & Q \end{pmatrix}\times$$
$$\times Y_{K,Q}(\mathbf{n})\rho_K^n. \quad (19)$$

Переходячи до нашої основної задачі, записуємо спочатку аналогічно (9) вираз для повного перерізу двофотонної іонізації поляризованого атома у вигляді

$$\sigma(\mathbf{n}) = \sum_{K=0}^{4}\sum_{r,r'}(B_K^{r,r'}(\mathbf{n})\cdot\{\{\mathbf{e}\otimes\mathbf{e}\}_r\otimes$$
$$\otimes\{\mathbf{e}^*\otimes\mathbf{e}^*\}_{r'}\}_K), \quad (20)$$

де незвідний тензор K-го рангу $B_K^{r,r'}(\mathbf{n})$ має бути пропорційним сферичній функції $Y_{KQ}(\mathbf{n})$, тобто мати структуру (10). Враховуючи далі, що залежність від напрямку осі симетрії $\mathbf{n}$ з'являється у виразі для ймовірності іонізації (2) за рахунок матриці густини (19), доходимо висновку, що

$$B_{rr'}^{KQ}(\mathbf{n}) = \rho_K^n b_K^{rr'}\times$$
$$\times\{\ldots\{\{\mathbf{n}\otimes\mathbf{n}\}_2\otimes\mathbf{n}\}_3\ldots\}_{KQ}\sim$$
$$\sim\rho_K^n Y_{KQ}(\mathbf{n}),$$

де $b_K^{rr'}$ — скалярні динамічні параметри атомної системи. За допомогою тотожностей, наведених у Додатку, вираз (20) для повного перерізу двофотонної іонізації записується у зручному для аналізу вигляді. Зрозуміло, що результат є сумою правих частин (11) та (16), в яких зроблені очевидні заміни:

$$a_K^{rr'}\to\rho_K^n b_K^{rr'},\quad \mathbf{p}\to\mathbf{n}.$$

Повний переріз двофотонної іонізації поляризованої атомної системи (20) є лінійним за мультиполями станів ρ_K^n, отже подаємо $\sigma(\mathbf{n})$ у такому вигляді:

$$\sigma(\mathbf{n}) = \sigma + \sum_{K=1}^{4}\rho_K^n\sigma_K^{(\mathbf{n})}. \quad (21)$$

Тут повний переріз двофотонної іонізації неполяризованого атома:

$$\sigma = \frac{1}{3}\rho_0^n\left[b_0^{00} + \frac{2}{\sqrt{5}}b_0^{22} + \left(\frac{1}{\sqrt{5}}b_0^{22} - b_0^{00}\right)\xi^2\right],$$

причому $b_0^{rr'} = 4\pi(2j+1)^{\frac{1}{2}}a_0^{rr'}$, як випливає з формул (12) та (18);

$$\sigma_1(\mathbf{n}) = -\sqrt{\frac{2}{5}}\mathrm{b}_1^{22}\xi\mathbf{k}\cdot\mathbf{n} \quad (22)$$

визначає внесок орієнтації 1-го порядку у повну ймовірність двофотонної іонізації,

$$\sigma_2(\mathbf{n}) = \frac{1}{3}\left(\frac{2}{\sqrt{3}}\operatorname{Re}b_2^{02} + \frac{2}{\sqrt{3\cdot 7}}b_2^{22}\right)\times$$
$$\times\left[1-3|\mathbf{n}\cdot\mathbf{e}|^2\right] + \frac{1}{3}\xi^2\left(\frac{1}{\sqrt{3}}\operatorname{Re}b_2^{02}-\right.$$
$$\left.-\frac{2}{\sqrt{3\cdot 7}}b_2^{22}\right)\left[1-3|\mathbf{k}\cdot\mathbf{n}|^2\right]+$$
$$+\frac{2}{\sqrt{3}}\operatorname{Im}b_2^{02}\xi\operatorname{Re}\left[\mathbf{k}\cdot(\mathbf{n}\times\mathbf{e})(\mathbf{n}\cdot\mathbf{e}^*)\right] \quad (23)$$

— внесок вишикуваності 1-го порядку; внески в (21) орієнтації та вишикуваності 2-го порядку визначаються відповідно такими виразами:

$$\sigma_3(\mathbf{n}) = \mathrm{b}_3^{22}\xi\mathbf{k}\cdot\mathbf{n}(|\mathbf{n}\cdot\mathbf{e}|^2 - \frac{1}{5}), \quad (24)$$
$$\sigma_4(\mathbf{n}) = \mathrm{b}_4^{22}[|\mathbf{n}\cdot\mathbf{e}|^4 - \frac{1}{7}(6|\mathbf{n}\cdot\mathbf{e}|^2-$$
$$-\xi^2(\mathbf{k}\times\mathbf{n})^2) + \frac{1}{35}(3-\xi^2)].$$

Таким чином, із $2j$ можливих типів поляризації атомної системи з моментом імпульсу j у повну ймовірність двофотонної іонізації можуть давати внесок тільки чотири типи поляризації, а саме — орієнтація та вишикуваність двох перших порядків, що раніше вже відзначалось у нашому огляді [18]. У цьому зв'язку нагадаємо, що у повний переріз однофотонної іонізації (фотоефекту) поляризованої системи дають внесок тільки орієнтація та вишикуваність першого порядку [7, 14], тоді як у кутовому розподілі фотоелектронів проявляються всі можливі мультиполі стану [7] (останнє зауваження, очевидно, стосується і кутового розподілу електронів при двофотонній іонізації). Звертаємо також увагу на те, що всі динамічні параметри $b_K^{rr'}$, які входять у $\sigma(\mathbf{n})$ (21), є скалярами, а отже у повній ймовірності іонізації оптично активних молекул не проявляються хіральні ефекти, і залежність повного перерізу процесу від геометричних параметрів має однаковий вигляд (21) для атомів, молекул, що не мають оптичної активності, та оптично активних молекул.

Зазначимо нарешті, що у повній імовірності двофотонної іонізації поляризованих систем мають спостерігатися ефекти кругового та еліптичного дихроїзмів. Орієнтована система характеризується псевдоскалярними величинами — ρ^n_K непарного рангу K. Тому цілком природно у виразі для повного перерізу фотопроцесу на орієнтованій системі з'являється псевдоскаляр $\xi\mathbf{k}\cdot\mathbf{n}$ (див. (21), (22), (24)), що і веде до ефекту кругового дихроїзму. Круговий дихроїзм повинен також спостерігатися і в повному перерізі фотоефекту (однофотонній іонізації) на орієнтованій системі [7], але на відміну від фотоефекту при двофотонній іонізації вишикуваних у першому порядку атомарних систем має також спостерігатися ефект еліптичного дихроїзму, який спричиняється останнім доданком у виразі (23). Цей доданок містить T-непарну комбінацію векторів, подібну до (14), яка призводила до ефекту еліптичного дихроїзму у кутовому розподілі фотоелектронів при двофотонній іонізації неполяризованих систем (11). Таким чином, динамічний параметр $\mathrm{Im}\, b_2^{02}$ теж має бути T-непарним. T-непарна фаза розсіяння фотоелектрона випадає з виразу для повної ймовірності іонізації [18], тому T-непарність може вноситися у динамічний параметр тільки шириною резонансного атомного рівня (див. також обговорення у розділі 3). Отже відзначений тут ефект еліптичного дихроїзму може проявитися тільки у разі резонансної двофотонної іонізації. Цей ефект можна, очевидно, спостерігати і у чистому вигляді без ефекту кругового дихроїзму, якщо іонізуюче випромінювання поширюється перпендикулярно до осі симетрії $\mathbf{n}$ поляризованої атомарної системи (див. (21)–(24)) або за умов, що система є тільки вишикуваною (вишикуваною у першому порядку, тобто $\rho^n_2 \neq 0$), але не орієнтованою, а отже ρ^n_1 та ρ^n_3 дорівнюють нулю.

Додаток

Наведемо для довідок низку тотожностей, які дають змогу записати скалярні добутки утворених із векторів $\mathbf{e}$ та $\mathbf{p}$ незвідних тензорів у виразі (9) через скалярні та векторні добутки цих векторів.

При $K=r=r'=0$ скаляр в (9) є простим добутком двох незвідних тензорів нульового рангу $\{\mathbf{e}\otimes\mathbf{e}\}_0$ та $\{\mathbf{e}^*\otimes\mathbf{e}^*\}_0$, які елементарно записуються через скалярні добутки векторів [5]:

$$\{\mathbf{a}\otimes\mathbf{b}\}_0 = -\frac{1}{\sqrt{3}}\,\mathbf{a}\cdot\mathbf{b}. \qquad (Д.1)$$

При $K=0$, $r=r'=2$ маємо (див. (7)) незвідний тензор нульового рангу, складений з векторів поляризації, який розписується за допомогою тотожності [5]

$$\{\{\mathbf{a}\otimes\mathbf{b}\}_2\otimes\{\mathbf{c}\otimes\mathbf{d}\}_2\}_0 = \\ = \frac{1}{\sqrt{5}}[\frac{1}{2}(\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{d}) + \frac{1}{2}(\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{c}) - \\ - \frac{1}{3}(\mathbf{a}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{d})]. \qquad (Д.2)$$

При $K=1$, $r=r'=2$ відповідний скаляр у (9) є скалярним добутком вектора $\mathbf{p}$ та незвідного тензора першого рангу (вектора), складеного з векторів поляризації. Останній вектор записується у простішому вигляді за допомогою тотожності [5]

$$\{\{\mathbf{a}\otimes\mathbf{b}\}_2\otimes\{\mathbf{c}\otimes\mathbf{d}\}_2\}_1 = \\ = -\frac{i}{2\sqrt{2\cdot 5}}\{(\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{b}\times\mathbf{d}) + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{b}\times\mathbf{c}) + \\ + (\mathbf{b}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{a}\times\mathbf{d}) + (\mathbf{b}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{a}\times\mathbf{c})\}. \qquad (Д.3)$$

Скаляр, що входить у вираз (9), при $K=2$, $r=0$, $r'=2$ можна з урахуванням визначень (6) та (7) розкрити за допомогою тотожностей (Д.1), (Д.2). Справді,

$$\left(\{\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\}_2\cdot\{\{\mathbf{e}\otimes\mathbf{e}\}_0\otimes\{\mathbf{e}^*\otimes\mathbf{e}^*\}_2\}_2\right) = \\ = \{\mathbf{e}\otimes\mathbf{e}\}_0\left(\{\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\}_2\cdot\{\mathbf{e}^*\otimes\mathbf{e}^*\}_2\right). \qquad (Д.4)$$

Так само розкривається відповідний скаляр при $K=2$, $r=2$, $r'=0$.

Решта скалярних добутків у виразі (9) перетворюється за допомогою тотожностей, що були одержані нами в працях [13, 16, 17]:

$$\left(\{\mathbf{a}\otimes\mathbf{b}\}_2\cdot\{\{\mathbf{c}\otimes\mathbf{d}\}_2\otimes\{\mathbf{e}\otimes\mathbf{f}\}_2\}_2\right) = \\ = -\sqrt{\frac{3}{7}}\{\frac{1}{4}[(\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{e}\cdot\mathbf{d}) + \\ + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{e})(\mathbf{d}\cdot\mathbf{f}) + \\ + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{e}) + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{e}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{f}) + \\ + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{e})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{f}) + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{e})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{d}\cdot\mathbf{f}) + \\ + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{e}) + (\mathbf{a}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{e}\cdot\mathbf{d})] -$$

$$
-\frac{1}{3}[(\mathbf{a}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{e}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{f})+(\mathbf{a}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{d}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{e})+
+(\mathbf{c}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{e})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{f})+(\mathbf{c}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{e})+
+(\mathbf{e}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{d})+(\mathbf{e}\cdot\mathbf{f})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{c})]+
+\frac{4}{9}(\mathbf{a}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{e}\cdot\mathbf{f})\}, \quad (Д.5)
$$

$$
(\{\{\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\}_2\otimes\mathbf{p}\}_2\cdot
\cdot\{\{\mathbf{a}\otimes\mathbf{b}\}_2\otimes\{\mathbf{c}\otimes\mathbf{d}\}_2\}_3)=
=\frac{i}{4}\{\mathbf{p}\cdot(\mathbf{b}\times\mathbf{c})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{p})(\mathbf{d}\cdot\mathbf{p})+
+\mathbf{p}\cdot(\mathbf{b}\times\mathbf{d})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{p})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{p})+
+\mathbf{p}\cdot(\mathbf{a}\times\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{p})(\mathbf{d}\cdot\mathbf{p})+
+\mathbf{p}\cdot(\mathbf{a}\times\mathbf{d})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{p})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{p})-
-\frac{1}{5}[\mathbf{p}\cdot(\mathbf{b}\times\mathbf{c})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})+\mathbf{p}\cdot(\mathbf{b}\times\mathbf{d})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})+
+\mathbf{p}\cdot(\mathbf{a}\times\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{d})+\mathbf{p}\cdot(\mathbf{a}\times\mathbf{d})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{c})]\}, \quad (Д.6)
$$

$$
(\{\{\{\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\}_2\otimes\mathbf{p}\}_3\otimes\mathbf{p}\}_4\cdot
\cdot\{\{\mathbf{a}\otimes\mathbf{b}\}_2\otimes\{\mathbf{c}\otimes\mathbf{d}\}_2\}_4)=
=(\mathbf{p}\cdot\mathbf{a})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{d})-
-\frac{1}{7}[(\mathbf{p}\cdot\mathbf{a})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{d})+(\mathbf{p}\cdot\mathbf{a})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{c})+
+(\mathbf{p}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})+(\mathbf{p}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})+
+(\mathbf{p}\cdot\mathbf{a})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{d})+(\mathbf{p}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{p}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{a}\cdot\mathbf{b})]+
+\frac{1}{35}[(\mathbf{a}\cdot\mathbf{c})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{d})+(\mathbf{a}\cdot\mathbf{d})(\mathbf{b}\cdot\mathbf{c})+(\mathbf{a}\cdot\mathbf{b})(\mathbf{c}\cdot\mathbf{d})]. \quad (Д.7)
$$

Примітка. Авторові стало відомо, що загальний вираз для кутового розподілу фотоелектронів при двофотонній іонізації атомів (див. розділ 3) був одержаний раніше у праці [19] іншим методом і, відповідно, поданий у дещо іншому, але еквівалентному (11) вигляді. На жаль, починаючи з 1995 р. науковий журнал, де була опублікована ця праця, не був доступний в Україні, і лише кілька місяців тому його електронний архів відкрили на обмежений термін для співробітників НаУКМА.

Ця праця була частково підтримана грантом Міжнародного благодійного фонду відродження КМА, і автор висловлює йому щиру подяку.

[1]. *Делоне Н. Б.. Крайнов В. П.* Атом в сильном световом поле.— М.: Атомиздат, 1978.— 288 с.

[2]. *Рапопорт Л. П., Зон Б. А., Манаков Н. Л.* Теория многофотонных процессов в атомах.— М.: Атомиздат, 1978.- 182 с.

[3]. *Делоне Н. Б., Федоров М. В.* Многофотонная ионизация атомов: новые эффекты // УФН.— 1989.— Т. 158. - В. 2. - С. 215-253.

[4]. *Попов В. С.* Туннельная и многофотонная ионизация атомов и ионов в сильном лазерном поле (теория Келдыша) // УФН.- 2004. - Т. 174. - № 9.- С. 921-951.

[5]. *Варшалович Д. А., Москалев А. Н., Херсонский В. К.* Квантовая теория углового момента.— Л.: Наука, 1975. - 440 с.

[6]. *Yang С. N.* On the angular distribution in nuclear reactions and coincidence measurements // Phys. Rev. - 1948. - V. 74. - № 7. - P. 764-772.

[7]. *Агре М. Я.* Теория спиновых поляризационных явлений при атомном и молекулярном фотоэффектах // Опт. и спектр.- 2006. - Т. 101.— № 3. - С. 378-393.

[8]. *Блум К.* Теория матрицы плотности и её приложения. - М.: Мир, 1983. - 247 с.

[9]. *Cherepkov N. A.* Spin polarization of atomic and molecular photoelectrons // Adv. At. Mol. Phys.- 1983. - V. 19. - P. 395-447.

[10]. *Ritchie В.* Theory of the angular distribution for ejection of photoelectrons from optically active molecules and molecular negative ions. II // Phys. Rev. A.— 1976. - V. 14. - № 1. - P. 359-362.

[11]. *Манаков Н. Л.* Поляризационные аномалии в рассеянии света газами, обусловленные диссипативными процессами // ЖЭТФ. - 1994. - Т. 106. - В. 5. - С. 1286-1305.

[12]. *Агре М. Я.* Рассеяние частично поляризованного света ориентированными атомами // ЖЭТФ.— 2001.- Т. 120. - В. 3.- С. 562-569.

[13]. *Агре М. Я.* Круговой дихроизм в процессе рассеяния света выстроенными атомами, индуцируемый диссипацией световой энергии // ЖЭТФ.— 1996.— Т. 110. — В. 6. - С. 2018-2027.

[14]. *Cherepkov N. A., Kuznetsov V. V.* Optical activity of polarized atoms // J. Phys. B. - 1989. - V. 22. - № 14. - P. L405-L409.

[15]. *Берестецкий В. Б., Лифшиц Е. М., Питаевский Л. П.* Квантовая электродинамика.— М.: Наука, 1980. - 704с.

[16]. *Агре М. Я.* Эффекты ориентации второго порядка в рассеянии света поляризованными атомами // ЖЭТФ. - 2002. - Т. 122. - В. 2. - С. 233-240.

[17]. *Агре М. Я.* Проявление выстраивания второго порядка в рассеянии света поляризованными атомами // Опт. и спектр.- 2003. - Т. 94. - № 2. - С. 193-199.

[18]. *Agre M. Ya. Ovsiannikov V. D., Rapoport L. P.* Polarization effects in multiphoton ionization of atoms // Laser Physics. - 1993. - V. 3. - № 3. - P. 719-747.

[19]. *Manakov N. L., Maquet A., Marmo S. J., Veniard V., Ferrante G.* Elliptic and angular dichroism of electrons in two-photon ionization of atoms // J. Phys. B. - 1999. - V. 32. - № 15. - P. 3747-3767.

M. Ya. Agre

TWO-PHOTON IONIZATION KINEMATICS OF ATOMIC SYSTEMS

A compact invariant expression for the angular distribution of photoelectrons escaping from unpolarized atoms and molecules in the process of two-photon ionization is derived on the basis of the general symmetry considerations. The dependence on all geometric parameters is completely separated in the angular distribution. It is shown that the circular dichroism effect can be observed in the angular distribution of photoelectrons escaping from the optically active molecules, while the specific elliptical dichroism effect only remains for the optically inactive molecules and atoms. The invariant expression for the total probability of two-photon ionization of axisymmetrically polarized (oriented and aligned) atomic systems is also derived, and caused by the orientation and alignment effects of circular and elliptical dichroism are analysed.