

**Министерство высшего и среднего специального образования
Республики Узбекистан
Ташкентский государственный технический университет
им Абу Райхана Беруни**

Факультет «Электроника и Автоматика»
Кафедры «Электроники и Радиотехники»

Турсунов Махмуд Арифович

ПО ТЕМУ:

**Лазерная спектроскопия многофотонной ионизации
щелочноземельных атомов**

ДИССЕРТАЦИОННАЯ РАБОТА
на соискание степени магистра технических наук

Ташкент - 2012

УДК 535.21.612

Турсунов М.А Лазерная спектроскопия многофотонной ионизации щелочноземельных атомов. – Т.: ТашГТУ, 2012. - 162 стр.

В работе рассматриваются вопросы атомной спектроскопии многофотонной ионизации щелочноземельных атомов. Описывается проведенный цикл исследований, который существенным образом дополняет современное понимание физической сущности процессов. Проведены анализ и обобщение полученных экспериментальных и имеющихся теоретических материалов, а также подробно представлены исследования о влиянии корреляции валентных электронов на процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов. Приводятся результаты экспериментов и их толкование, а именно:

- эффективность возбуждения запрещенных интеркомбинационных переходов и разрешенных переходов;

- поведение щелочноземельных атомов в рамках L-S связи и классификации энергетических уровней этих атомов.

- коллективные эффекты в атомах и молекулах и обнаружение явления нарушения дипольного приближения.

Монография предназначена для специалистов в области лазерной физики аспирантов и магистрантов, изучающих лазерную физику и атомную лазерную спектроскопию.

Рецензенты: д.ф.- м.н Азаматов З.Т.;

д.ф.- м.н Бердилов М.Р.

© Ташкентский государственный технический университет, 2012.

©© Турсунов М.А., 2012.

Введение

Процесс многофотонной ионизации к настоящему времени хорошо изучен и физическая картина его реализации достаточно полно описывается в рамках утвердившихся представлений. Более того, метод многофотонной ионизации дал возможность обосновать и реализовать на практике новый метод спектроскопии атомов и молекул - многофотонную ионизационную спектроскопию, благодаря которой появилась уникальная возможность исследования элементарных возбуждений с одновременным поглощением нескольких фотонов, что было невозможно в классической спектроскопии.

Многофотонная ионизация спектроскопия базируется на фундаментальных знаниях оптического спектра и закономерностях поглощения света. Именно в этих вопросах и появляется специфика отдельного атома или молекулы, благодаря которой обнаруживается новая неизвестная ранее закономерность процесса многофотонной ионизации. В связи с этим актуальность проведения исследований процессов многофотонного взаимодействия лазерного излучения с атомарными средами не вызывает сомнений.

Созданная теория многофотонных процессов в одноэлектронном приближении хорошо описывает основные закономерности многофотонных процессов в атомах с одним валентным электроном. Но насколько хорошо она будет работать и для более сложных атомов, в частности для атомов с двумя валентными электронами, неясно. Имея во внешней оболочке два электрона, эти атомы обладают более богатым спектром энергетических уровней. Наряду с нормами синглетных и триплетных терм появляются так называемые смещенные термы, соответствующие возбуждению двух электронов. Часть этих термов лежит выше первого потенциала ионизации и является автоионизационной. Можно ожидать, что наличие этих состояний и корреляция между двумя валентными электронами может существенно влиять на процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов, у которых два валентных электрона - во внешней оболочке. Результаты экспериментальных исследований позволят выявить оптимальные теоретические методы расчета процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов.

Особый интерес к изучению процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов вызван ещё и тем, что наряду с

однозарядными ионами этих атомов образуются и двухзарядные ионы.

Следует отметить, что достаточно подробно были исследованы процессы многофотонной ионизации атомов бария и стронция. Однако остался открытым вопрос носят ли полученные ранее результаты общий характер для всех щелочноземельных атомов. Поэтому необходимо было проведение тщательного исследования процессов многофотонной ионизации и других атомов (кальция и магния) щелочноземельной группы.

В настоящей работе изучаются специфические особенности процесса многофотонной ионизации атомов щелочноземельных элементов, дается детальное сопоставление как полученных результатов с собственными данными автора по многофотонной ионизации щелочных атомов, так и с результатами, из различных лабораторий мира.

Целью работы являлось экспериментальное исследование влияния корреляции валентных электронов на процесс многофотонной ионизации щелочных атомов, анализ и обобщение достаточно разрозненного экспериментального и теоретического материала.

В результате проведенных исследований установлены новые общие закономерности процесса многофотонной ионизации атомов; дано объяснение аномально высокой вероятности многофотонной ионизации через запрещенные переходы, измерены абсолютные значения сечений процесса двух-, трех-, четырех-, пяти- и шести фотонной ионизации атомов K, Na, Mg, Ba, Ca, получена новая спектроскопическая информация об энергиях и ширинах АИС щелочноземельных атомов, проведены систематические исследования ширины АИС одной конфигурации от атомной массы.

Установленные закономерности и их интерпретация, подтвержденные экспериментальными результатами, отражены в следующих положениях:

1. Экспериментальный комплекс для изучения процесса многофотонной ионизации, оригинальная методика исследований созданная на его основе и практические результаты экспериментов по многофотонной ионизационной спектроскопии щелочных и щелочноземельных атомов.

2. Особенности поляризационных зависимостей щелочноземельных атомов, обусловленные корреляционными эффектами, вызванными связью внешних электронов.
3. Абсолютные величины сечений прямого процесса многофотонной ионизации щелочных и щелочноземельных атомов для ряда фиксированных частот лазерного излучения в оптическом диапазоне.
4. Условия реализации и закономерности процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов с возникновением промежуточных резонансов на запрещенных дипольными правилами отбора оптических переходах. Интеркомбинационные дефекты для синглетных и триплетных состояний отличные друг от друга
5. Интенсивные интеркомбинационные синглет-триплетные переходы при резонансном процессе многофотонной ионизации атомов щелочноземельных элементов, обусловленные корреляционными эффектами оптических электронов. Фундаментальный вывод из этих результатов: интеркомбинационные переходы, считавшиеся ранее запрещенными для оптических переходов, таковыми не являются.
6. Наблюдения интенсивных квадрупольных переходов в щелочноземельных атомах, идентификация их, аномально высокие вероятности процесса ионизации с участием квадрупольных переходов.
7. Резонансы с автоионизационными состояниями и их влияние на вероятность многофотонной ионизации щелочноземельных атомов, обнаружение уменьшения ширин АИС с ростом атомной массы.

Проведенный цикл исследований и множество полученных различных результатов представляет собой существенное развитие понимания физической природы поглощения света атомной средой и позволяет создать новое перспективное направление научных исследований - многофотонную ионизацию спектроскопии атомов, включающую запрещенные переходы.

Приведенные в работе исследования проводились в рамках планов научно-исследовательских работ Отдела теплофизики АН Республики Узбекистан. Полученные новые экспериментальные данные представляют

практический интерес для совершенствования численных расчетов и теоретических моделей процесса многофотонной ионизации сложных атомов. Ценность полученных результатов обусловлена не только потребностями теории, но и необходимостью решения ряда прикладных задач, таких как разработка лазеров на самоограниченных переходах с высоким КПД, создание мощных лазерных устройств на запрещенных переходах сложных атомов.

Основные результаты работы докладывались: на X, XI, XII Всесоюзных и XIII Международной конференциях по когерентной и нелинейной оптике (Киев- 1980, Ереван- 1982, Москва- 1985, Минск- 1988), на V Всесоюзном совещании и VI, VII Всесоюзных конференциях по нерезонансному воздействию оптического излучения с веществом (Ленинград- 1981, Паланга- 1984, Ленинград- 1987) на Международной конференции по многофотонным процессам (Будапешт- 1980), на VIII и IX Всесоюзной конференции по физической электронике и атомным столкновениям (Ленинград- 1981, Юрмала- 1984), на Всесоюзной конференции по теории атомов и атомным спектрам (Минск- 1983), на XVI Международной конференциях по явлениям в ионизованных газах (Дюссельдорф- 1983), на IV, V Всесоюзной конференции по воздействию электромагнитного излучения с плазмой (Ташкент- 1985, 1989), на IX Международной школе по когерентной оптике (Ужгород- 1989), на рабочих совещаниях по нелинейной ионизации атомов и молекул (Ужгород 1985, 1986, 1987, 1991) и других конференциях и семинарах.

Глава I. Физическая картина процесса многофотонной ионизации атомов лазерным излучением

1.1. Резонансный и нерезонансный процессы ионизации

Физическая картина взаимодействия света с атомной системой принципиально зависит от соотношения между энергией кванта и потенциалом ионизации. Хорошо известно, что когда энергия кванта превышает потенциал ионизации, имеет место линейный фотоэффект и справедливы хорошо известные соотношения Эйнштейна. Но если энергия кванта меньше потенциала ионизации излучения и интенсивность света достаточна велика необходимо принимать во внимание и нелинейные процессы. Еще в 60-е годы Л.В.Келдышем было обнаружено, что нелинейная ионизация атомов может носить характер многофотонной ионизации и туннельного эффекта. Условия реализации этих процессов были выявлены путем решения модельной задачи вырывания электрона из короткодействующей потенциальной ямы [1]. В дальнейшем основные положения, описывающие процессы многофотонной ионизации атомов были описаны в монографиях и обзорах [2-4].

Если переход электрона из связанного состояния в непрерывный спектр происходит в результате поглощения атомом нескольких квантов внешнего электромагнитного излучения и при этом осуществляются только лишь виртуальные переходы, в каждом из которых выполняется закон сохранения энергии с точностью до соотношения неопределенности энергии- время, то такой процесс принято называть прямым процессом многофотонной ионизации атомов. В случае, когда энергия перехода в какое -либо связанное состояние электрона, равного правилам отбора, соответствует энергии нескольких квантов внешнего поля, то такой процесс ионизации называется резонансной многофотонной ионизацией.

а) Прямой процесс многофотонной ионизации атомов.

При рассмотрении прямого процесса многофотонной ионизации расстройка резонансов превышает ширину резонансных состояний атома. Степень нелинейности K - прямого процесса многофотонной ионизации равна числу фотонов, поглощение которых необходимо для выполнения закона сохранения энергии.

$K = \langle I/h\omega + 1 \rangle$ где I - потенциал ионизации атома, ω - частота лазерного излучения

В этом случае вероятность прямого процесса многофотонной ионизации в монохроматическом поле выражается соотношением

$$W = \sigma_k(\omega) F^k, \quad (1.1)$$

где $\sigma_k(\omega)$ сечение прямого процесса многофотонной ионизации.

Исследование прямого процесса многофотонной ионизации атомов представляет большой интерес, как для практики, так и для теории. Результаты, полученные по абсолютной величине вероятности, служат критерием оптимальности того или иного теоретического метода описания волновой функции оптического электрона в атоме и, в частности в выборе метода суммирования в нестационарной теории возмущения высших порядков. С практической точки зрения, данные о вероятности процесса ионизации показывают, насколько прозрачна атомарная среда для интенсивности света данной частоты.

б) Резонансный процесс многофотонной ионизации атома.

Многофотонная ионизация атома называется резонансной в случае, когда энергия перехода в какое-то связанное электронное состояние соответствует энергии поглощения нескольких квантов внешнего электромагнитного поля. В этом случае критерием реализации резонансного процесса с изолированным уровнем является условие

$$|\Delta| \ll \Gamma \ll |E_n - E_1| \quad (1.2)$$

расстройка и ширина резонансного состояния должна быть намного меньше, чем расстояние до ближайших уровней. Также $|\Delta| < \Gamma$ величина резонансной расстройки должна быть не более ширины резонансного уровня.

В случае слабого монохроматического поля, когда сдвиг и уширение резонансного состояния меньше его естественной ширины, вероятность резонансной многофотонной ионизации описывается формулой Брейта-Вигнера

$$W = \frac{2\pi |V_{01}^{(k1)}|^2}{\Delta^2 + \Gamma^2} |V_{1E}^{(k2)}|^2 \approx F^k, \quad (1.3)$$

где V - матричный элемент перехода, Γ - естественная ширина резонансного состояния. В этом случае ионизация может быть реализована как каскадный переход электрона из основного состояния в возбужденное и затем из возбужденного в непрерывный спектр.

Экспериментальные исследования резонансного процесса многофотонной ионизации атомов позволяют выяснить физическую картину процесса, возникающую при сильном возмущении спектра атома в поле излучения лазера. В случаях исследования при сильных полях, когда сдвиг уширения резонансного состояния больше естественной ширины, то имеется три различных физических явления, которые могут приводить к возмущению резонансного состояния: перемешивание резонансных состояний, их нерезонансный сдвиг и уширение резонансного состояния за счет переходов в непрерывный спектр (ионизационное уширение). Амплитуды этих возмущений описываются следующими выражениями:

$$\Gamma_f = d_{01} \varepsilon^{k_1} = d_{01} F^{k_1/2}, \quad (1.4)$$

$$\delta E = \frac{1}{4} \alpha \varepsilon^2 = \frac{1}{4} \alpha F^2, \quad (1.5)$$

$$\Gamma_i = \sigma_{1E} \varepsilon^{2k} = \sigma_{1E} F^{2k}, \quad (1.6)$$

где d_{01} матричный элемент дипольного момента при $K = 1$ и соответствующий составной матричный элемент при $K_1 > 1$, α - разница динамических поляризуемостей основного и резонансного состояний, σ_{1E} процесса ионизации из резонансного состояния, Γ_f и Γ_i - полевое и ионизационное возмущения определяются степенью многофотонности соответствующих переходов K_1 и K_2 .

В зависимости от величины K_1 и K_2 доминирует тот или иной процесс возмущения.

1.2. Правила отбора

Переходы атомного электрона по спектру возбужденных состояний определяются правилами отбора, которые отражают в квантомеханическом рассмотрении законы сохранения различных величин при переходах между начальными и конечными состояниями. Сильное поле возмущает атомный спектр, тем самым изменяет правила отбора. Если рассмотреть общеизвестные правила отбора [5] в слабом поле, то разрешенные переходы подчиняются следующим правилам отбора

$$\Delta J = J - J' = 0, \pm 1;$$

$$\Delta M = M - M' = 0,$$

где J и J' - угловые моменты начального и конечного состояния M и M' магнитные квантовые числа этих состояний. Кроме того запрещен переход $J = 0$, $J' = 0$. Причем при переходе изменяется четность состояния. Правила отбора для

многоквантовых процессов получаются из правил отбора для однофотонных переходов [6,7].

Для поляризованного излучения:

$$\dots \Delta J = K, K-1, \dots -K; \Delta M = 0$$

Для циркулярно-поляризованного излучения:

$$\Delta J = 0, \pm 1; \Delta M = \pm 1.$$

Знак в формуле зависит от направления циркулярной поляризации. В случае K -квантовых переходов имеем $\Delta J = K, K-1, \dots -K$; $\Delta M = \pm K$ (знак \pm перед K определяется направлением циркулярной поляризации).

Когда число поглощаемых фотонов четное, K имеет $\Delta J^\pi = 0^+, 2^+, \dots K^+$ где (π -изменение четности), а при нечетном числе поглощаемых фотонов-имеем $\Delta J^\pi = 1^-, 3^-, \dots K^-$. Эти правила отбора относятся как для случая линейной, так и для циркулярной поляризации излучения.

Таким образом, изменение четности равно $(-1)^K$. При эллиптической поляризации излучения снимается правило отбора по M .

Рассмотрим общий случай в сильном поле, когда на внешней орбите находится несколько валентных электронов. Как известно, в сильных полях для многофотонных процессов взаимодействие атома с полем оказывается сильнее, чем взаимодействие атомных электронов. Очень сильное поле разрывает LS - связь и правила отбора для квантовых чисел всего атома определяются правилами отбора только для одной пространственной части волновой функции. Для однофотонных переходов в поле линейнополяризованного излучения правила отбора для LS - связи имеют вид:

$V \ll V_{LS}$	$V \gg V_{LS}$
$\Delta J = 0, \pm 1$	$\Delta L = 0, \pm 1$
$\Delta L = 0, \pm 1$	$\Delta S = 0$
$\Delta S = 0$	$\Delta m_s = 0$
$\Delta M = 0$	$\Delta M = \Delta m_l = 0$
$J + J' \geq 1$	$L + L' \geq 1$
$L + L' \geq 1$	$\Delta \pi = 1$
$\Delta \pi = 1$	

где L - орбитальный угловой момент системы валентных электронов, S - спиновый угловой момент, Δm_s и Δm_l - проекции на ось z орбитального и спинового угловых моментов

1.3. Динамический эффект Штарка. Динамические поляризуемости

В отличие от возмущения атомного спектра постоянным электрическим и магнитным полями (эффект Штарка и Зеемана) возмущение под воздействием светового поля носит качественно другой характер, обусловленный специфическими свойствами поля. Во-первых, амплитуда светового поля может быть сравнима с внутриатомным. Во-вторых, световое поле может быть резонансным с каким-нибудь переходом в спектре атома. В-третьих, световое поле может иметь различную степень эллиптичности.

Под воздействием внешнего постоянного поля уровни энергии атомной системы сдвигаются (эффект Штарка). В случае, когда атомная система имеет непрерывный спектр, то кроме сдвига под действием постоянного поля возникает уширение уровней. Аналогичные эффекты могут возникать и в случае переменного поля.

Как известно, в отсутствие внешнего поля электронные состояния в атомном спектре изолированы друг от друга и локализованы. Наличие внешнего поля может привести к перемешиванию соседних состояний атома. Под воздействием внешнего поля изменение энергии дискретного состояния атома определяется линейной восприимчивостью (поляризуемостью) $X_{ij}^{(1)}$ или так называемой поляризуемостью [8,9]. На рис..1.1 приведена зависимость динамической поляризуемости от частоты лазерного излучения.

$$X_{ij}^{(1)} = \sum_m \frac{r_{km}^i r_{mn}^j}{\omega_{mn} - \omega} + \frac{r_{kn}^i r_{mn}^j}{\omega_{mn} + \nu} , (1.7)$$

где r^i, r^j - проекции вектора r на соответствующие оси координат. Выражение (1.7) определяет восприимчивость атома на частоте ω при действии внешнего поля частоты ν .

Когда $\omega \rightarrow 0$, мы имеем случай со статической поляризуемостью:

$$\delta\epsilon_m^{(2)} = 1/2 \sum \frac{1}{\omega_{nm}} |(r_{nm} E)|^2 , (1.8)$$

Если с помощью выражения (1.8) произвести замену E на $E \cos(\omega t)$ и усреднить временную часть возмущения по времени, имеем $\cos^2(\omega t) = 1/2$,

$\delta\epsilon_m^{(2)} = \epsilon_m - \epsilon_m^{(0)} \approx E^2$ сдвиг энергетического уровня.

При высоких частотах, когда $\omega \gg \omega_{mn}$ для динамической поляризуемости, имеем выражение (1.1), и на основе дипольных правил отбора [8] получим:

$$x_{ij}^{(1)} = -(Z/\omega^2)\delta_{ij}, \quad (1.9)$$

где Z - число электронов в атоме. Выражение (1.9) справедливо в случае, когда мы имеем дело с одноэлектронным атомом. По принципу Паули заполненные оболочки атома подобны для валентных электронов, поэтому в качестве Z в выражение (1.9) следует подставить число валентных электронов атома.

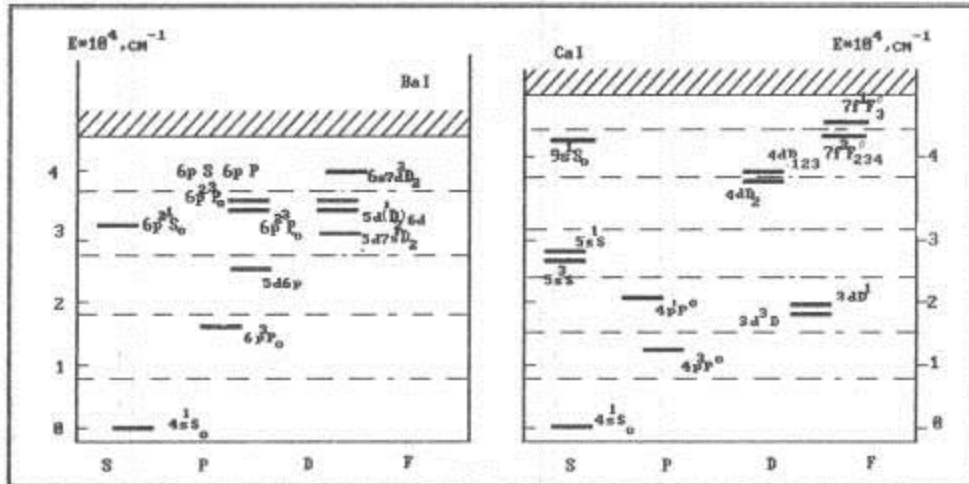


Рис..1.1. Зависимость динамической поляризуемости атома Са от частоты излучения

Если $\omega_{\text{номо}} \gg \omega \gg \omega_{\text{мн}}$ где $\omega_{\text{номо}}$ и $\omega_{\text{мн}}$ - разности энергий связи валентных электронов и электронов атомного остова, то вклад электронов остова в изменение энергии в условиях $\omega \ll \omega_{\text{номо}}$ в постоянном поле будет мал по сравнению со вкладом валентных электронов:

$$\delta\epsilon_{n_0}^{(2)} \approx (1/\omega_{n_0 m_0}) |(r_{n_0 m_0} E)|^2, \quad (1.10)$$

В случае линейнополяризованного поля

$$\delta\epsilon = (Z^2 / 4\omega^2) E^2, \quad (1.11)$$

Выполнение условия (1.5) дает вклад в энергию от свободных колебаний Z валентных электронов в одночастотном поле $E \cos(\omega t)$.

В условиях $\omega_{\text{мн}} \ll \omega$ высокочастотный эффект (1.11) мал по сравнению с эффектом Штарка (1.4) в постоянном поле. Диагональные элементы динамической поляризуемости (1.11) являются четными функциями частоты ω . Учитывая это, имеем

$$\alpha_n \equiv x_{ZZ}^{(1)} = 2 \sum \frac{\omega_{nm} |Z_{nm}|^2}{\omega_{nm}^2 - \omega^2}, \quad (1.12)$$

1.4. Специфические особенности процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов

В конце 70-х годов при взаимодействии лазерного излучения с некоторыми атомами щелочноземельной группы и лантаноидов, а именно, с атомами Sr [10], Ba [11], Sm [12], наряду с образованием однозарядных ионов, было обнаружено образование и двухзарядных ионов. В случае ионизации атомов кальция и магния были зафиксированы только однозарядные ионы. Образование однозарядных ионов наблюдалось при величине параметра адиабатичности $\gamma \approx 10^2$ и напряженности электромагнитного поля $\varepsilon \approx 10^{-3} \varepsilon_0$. Причем вероятность образования двухзарядных ионов незначительно отличается от вероятности образования однозарядных ионов.

Достаточно последовательно процесс одноэлектронной многофотонной ионизации атомов Ba, Sr и Ca [13-27] исследован в двух спектральных диапазонах $\omega = 9380-9494 \text{ см}^{-1}$ и $\omega = 18760-19000 \text{ см}^{-1}$. На определенных частотах лазерного излучения были измерены функциональные зависимости выхода однозарядных ионов Ba, Sr и Ca от энергии лазерного излучения. Измеренная степень нелинейности процесса совпадала с числом фотонов, поглощение которых необходимо для ионизации $K = K_0 = \langle I/h\omega + 1 \rangle$. Анализ спектров вышеуказанных атомов и сопоставление их с энергией нескольких квантов показали, что расстройки между энергией дискретных уровней и энергией квантов значительны $10^2-10^3 \text{ см}^{-2}$. Из оценок возмущения спектра в поле, максимальная напряженность, которого $\varepsilon \sim 5 \cdot 10^6 \text{ В см}^{-1}$, видно, что сдвиг уровней, обусловленный динамическим Штарк-эффектом, не компенсирует статических расстроек. Эти данные свидетельствуют о реализации прямых процессов ионизации на определенных частотах. Измеренные дисперсионные характеристики ионизации атомов кальция, бария и стронция позволяют утверждать о нерезонансных процессах ионизации на фиксированных частотах. Наличие прямых (нерезонансных процессов) позволило авторам измерить абсолютные значения сечений многофотонной ионизации [21- 27].

Как уже отмечалось при прямых процессах с невысокой степенью нелинейности $K_0 \leq 4$ для ионизации атомов щелочных металлов были получены

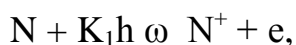
выражения, отражающие поляризационные особенности процесса многофотонной ионизации. Рассмотрим имеющиеся в литературе данные, касающиеся зависимостей выхода однозарядных ионов от поляризации излучения для щелочноземельных атомов. Для вероятностей трёхфотонной ионизации при циркулярной и линейной поляризациях лазерного излучения для щелочноземельных атомов вдали от резонансных частот только для ионизации атома стронция справедлива формула Кларцфельда, при ионизации атомов бария и кальция она не выполняется.

Необходимо отметить, что потенциалы ионизации атома и иона щелочноземельных металлов отличаются примерно в два и более раза. Поэтому, если исходить из нестационарной теории возмущений, вероятность многофотонной ионизации иона должна быть исчезающе мала по сравнению с вероятностью ионизации атома.

В экспериментах, в которых были зафиксированы двухзарядные ионы [10,11], одновременно наблюдались и однозарядные. Во всех экспериментах выход двухзарядных ионов лишь в 10^{-1} - 10^{-2} раз меньше выхода однозарядных ионов. Отсутствие двухзарядных ионов при многофотонной ионизации атомов кальция и магния объяснялось спектральными особенностями этих элементов [13].

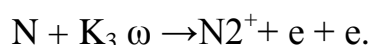
Начиная с первых экспериментов до настоящего времени [13-32], обсуждается вопрос о механизме возникновения двухзарядных ионов. Были предложены следующие модели образования двухзарядных ионов.

Во-первых, когда атом поглощает K_1 фотон, образуется ион, от которого при поглощении K_2 фотонов отрывается второй электрон:



здесь $K_1 = \langle I_1 / h \omega + 1 \rangle$. $K = \langle I_2 / h \omega + 1 \rangle$, I_1 и I_2 - потенциалы ионизации атома и иона, соответственно. Причем поглощение K_1 и K_2 фотонов происходит в одном элементарном акте ионизации. В этом случае процесс ионизации носит ступенчатый (каскадный) характер и определяется спектром связанных состояний атома и иона. Разновидностью ступенчатого процесса является процесс, когда отрыв второго электрона осуществляется не из основного, а из возбужденного ионного состояния. Поэтому при теоретическом моделировании механизма отрыва электронов необходимо учитывать явление надпороговой ионизации. В работах [33-36] было показано, что вероятность поглощения $K_0 + 1$, $K_0 + 2$... фотонов сопоставима с вероятностью поглощения K фотонов.

Во-вторых, когда при ионизации поглощается K_3 фотонов и одновременно отрываются два электрона



Этот процесс получил название двухэлектронного и определяется спектром двухэлектронных состояний атома.

В настоящее время известно несколько вариантов теоретического описания процесса двухэлектронной нелинейной ионизации атомов [37,38].

Рассмотрим подробно диффузионную модель процесса двухэлектронной нелинейной ионизации щелочноземельных атомов: предполагается, что переход двух электронов в область около первого потенциала ионизации носит многофотонный характер, а дальнейший переход до второго потенциала ионизации носит характер диффузии, т.к. в этой области выполняется условие возникновения квазиконтинуума.

Как показали экспериментальные данные [39] и теоретические расчеты [40], проведенные для атома бария, плотность спектра автоионизационных состояний достаточно велика не только при выполнении условия $\hbar\omega \gg \Delta E$ (ΔE – среднее расстояние между уровнями спектра), но и для квазирезонансного характера перехода. Таким образом, вероятность отрыва двух электронов будет определяться вероятностью их многофотонного перехода в область около первого потенциала, а так как переход от первого до второго потенциала ионизации происходит с вероятностью равной 1 за счет диффузии, то она сопоставима с вероятностью отрыва одного электрона.

К моменту начала наших исследований данные по образованию двухрядных ионов не поддавались однозначной трактовке. В одних случаях при взаимодействии атомов щелочноземельной группы с интенсивным лазерным излучением образовывались как одно-, так и двухзарядные ионы, а в других – только однозарядные. В последние годы появились работы, в которых показано, что коллективные эффекты возбуждения атомов существенно проявляются при фотоионизации [41,42].

Нестационарная теория возмущения в одноэлектронном приближении достаточно хорошо описывает одноэлектронную многофотонную ионизацию щелочных атомов: насколько хорошо она будет описывать процесс многофотонной ионизации атомов с двумя валентными электронами – неизвестно.

Следует также заметить, что имеющийся экспериментальный материал не дает однозначного ответа об условиях реализации и конкуренции каскадного и прямого процессов.

1.5. Основные соотношения, справедливые для LS-связи

Имея во внешней оболочке два электрона, щелочноземельные атомы обладают более богатым спектром энергетических уровней. Наряду с нормальными синглетными и триплетными термами появляются так называемые смещенные термы, в которых оба электрона внешней оболочки возмущены. Часть из них лежит выше первого потенциала ионизации и является автоионизационными. В таких атомах даже одноэлектронные состояния нормальных термов, строго говоря, нельзя описывать в одноэлектронном приближении, когда электрон, оставшийся в основном состоянии, приписывается к остову и пренебрегается возможностью его возбуждения. Такая модель справедлива только в том случае, когда минимальная энергия возбуждения остова много больше энергии ионизации внешнего электрона. Связанные двухэлектронные состояния могут настолько сильно возмущать спектр одноэлектронных состояний, что ранее принятая в приближении L-S связи, систематика одноэлектронных состояний становится не верна [5]. Наличие спектра двухэлектронных состояний существенно усложняет картину взаимодействия лазерного излучения с щелочноземельными атомами, приводя к ряду особенностей [43]. Одной из таких особенностей является резкое увеличение вероятности спин-запрещенных переходов на некоторых участках энергетического спектра щелочноземельных атомов [44]. Для выяснения природы этого явления необходимо было проведение систематических исследований в широком диапазоне изменения частоты излучения, которые смогли бы связать воедино отдельные данные о наблюдении интенсивных спин-запрещенных переходов в области низких и высоких энергий.

Общепринято называть запрещенными переходы, в которых нарушаются правила отбора. Однако большинство правил отбора не строгие и зависят от условий связи в различных приближениях [45]. Есть только два строгих правила отбора, которые не зависят от условий связи. Первое - это ограничение на изменение полного момента системы электронов: $\Delta J = 0, \pm 1$ и $J = 0 \rightarrow J' = 0$. Второе - правило симметрии Лапорте, которое разрешает переходы только

между уровнями разной четности. Таким образом, если не нарушаются строгие правила запрета, то переход является запрещенным лишь в первом приближении, причем, только если приближение соответственно выбрано. Например, интеркомбинационные переходы запрещены в приближении LS-связи, но разрешены в jj- связи. Следовательно, говоря о запрещенных переходах в щелочноземельных атомах, мы должны оговорить приближение, в котором описываются эти атомы.

В общем случае для любого типа связи энергии уровней sl конфигурации двухэлектронных атомов представлены выражениями [46]:

$$L_{l-1} = F_0 - G_1 / (2l+1) + 1/2l \xi_1, \quad (1.15)$$

$$\frac{{}^1L_l}{{}^3L_l} = F_0 - 1/4 \xi_1 \mp \left[(G_1 / (2l+1) + 1/4 \xi_1)^2 + 1/4l(l+1) \xi_1^2 \right]^{1/2}$$

$${}^3L_{l-1} = F_0 - G_1 / (2l+1) - 1/2(l+1) \xi_1$$

Здесь F_0 и G_1 - интегралы прямой и обменной части электростатического взаимодействия между электронами, l -орбитальный момент внешнего электрона, L - полный орбитальный момент двух электронов, ξ_1 - интеграл спин-орбитального взаимодействия. Поскольку F_0 - аддитивная составляющая для всех уровней, то различие в энергии определяется только величинами G_1 и ξ_1 . Случай, когда спин-орбитальное взаимодействие много больше обменной части электростатического ($\xi_1 \gg G_1$) и соответствует jj связи, то обратный случай ($\xi_1 \ll G_1$) - LS- связи.

В приближении LS - связи электронные состояния щелочноземельного атома разделяются на триплетные и синглетные термы:

$${}^3L_l = F_0 - G_1 / (2l+1); {}^1L_l = F_0 + G_1 / (2l+1)$$

Триплетный терм лежит ниже синглетного в полном согласии с правилом Гунта [46]. В этом приближении спин-орбитальное взаимодействие составляет небольшую добавку к электростатическому и проявляется в тонкой структуре триплетного терма.

Для того чтобы определить, какой тип связи реализуется в щелочноземельных атомах, нужно оценить отношение ξ_1 / G_1 . Значение величин ξ_1 и G_1 можно получить из экспериментальных данных об энергии уровней:

$$\varepsilon_1 = ({}^3L_{l-1} - {}^3L_{l+1}) / (2l+1), G_1 = {}^1L_l - {}^3L_l$$

Для первых возбужденных состояний конфигурации $n_0 s(n_0 - 1)d$ атомов Ca ($n_0 = 4$), Sr ($n_0 = 5$) и Ba ($n_0 = 6$) отношение ξ_1 / G_1 равно $4 \cdot 10^{-3}$, $2 \cdot 10^{-2}$ и $5 \cdot 10^{-2}$,

соответственно. Следовательно, для описания одноэлектронных состояний этих атомов, по крайней мере в первом приближении, применима LS - связь.

1.6. Интеркомбинационные переходы

Запрет на переходы с изменением спина ($\Delta S \neq 0$) в приближении LS-связи объясняется следующим. В пренебрежении магнитными взаимодействиями полная волновая функция электронов может быть записана в виде произведения пространственной и спиновой волновых функций $\psi = \varphi(r_1 r_2) \chi(S_1 S_2)$. Нерелятивистское уравнение Шредингера определяет лишь пространственную волновую функцию φ . Наличие же спина в этом приближении задает только тип симметрии пространственной функции. Так, при полном спине $S=1$ (что соответствует симметричной спиновой функции) в соответствии с принципом Паули пространственная функция должна быть антисимметричной (φ_s), а при $S=0$ (антисимметричная спиновая функция) - симметричной (φ_s). Поскольку дипольный момент двух электронов есть симметричная функция их координат, то вероятность перехода из симметричного состояния (φ) в антисимметричное (φ_a) равна нулю.

Различие в энергии синглетных ($S=0$) и триплетных ($S=1$) уровней, данных электростатическим взаимодействием электронов, точнее, обменной частью электростатического взаимодействия. Требование антисимметрии полной функции системы электронов выделяет для каждого значения S определенный тип симметрии пространственной волновой функции. В состояниях же, описываемых симметричной (φ_s) и антисимметричной (φ_a) волновыми функциями, электроны в среднем находятся на разных расстояниях друг от друга. С этим и связана зависимость энергии уровня от S . В системе из двух электронов состоянию со спином $S = 1$ соответствует антисимметричная волновая функция (φ_a) и меньшая энергия, чем состоянию с $S=0$ и (φ_s). Это же утверждает эмпирически установленное правило Гунда [46]: наименьшей энергией обладает терм с наибольшим возможным при данной электронной конфигурации значением S .

Магнитные взаимодействия перемешивают волновые функции стационарных состояний атома с различными L, S , но одним и тем же значением полного момента J . Если смешивание невелико, то новое состояние можно приближенно описать теми же квантовыми числами.

В работе [46*] приведены отношения W_{ST}/W_{SS} для переходов между основным 1S_0 и первым возбужденным $^{1,3}P^0$ состояниями Mg, Ca, Sr и Ba. Экспериментальные значения взяты из таблиц [47,48]. Видно, что учет спин-спинового взаимодействия дает лучшее согласие с экспериментом для тяжелых атомов и не существенен для легких.

Таким образом, и теоретические и данные по эмиссионной спектроскопии [47,48] показывают, что вероятности интеркомбинационных переходов в первые возбужденные состояния ($n_0s^2 \ ^1S_0 - n_0sn_0p \ ^3P_1^0$) щелочноземельных атомов на три - шесть порядков (Ba-Mg) меньше вероятности разрешенных переходов ($n_0s^2 \ ^1S_0 - n_0sn_0p \ ^3P_1^0$). Это объясняет почему до недавнего времени в расчетах многофотонных сечений и динамических поляризуемостей состояний щелочноземельных атомов [49] интеркомбинационные переходы не учитывались.

В работах [28,50-52] методом ионизационной спектроскопии исследовались двухфотонные резонансы с низколежащими состояниями $n \ snd$ ($n=5-8$) атомов Sr и Ba. Амплитуды зарегистрированных резонансов с триплетными и синглетными состояниями имели один порядок величины, что свидетельствовало большой вероятности интеркомбинационных переходов. Это явилось неожиданностью и требовало своего объяснения.

Так как в работах [28,50-52] резонансы являются двухфотонными, то можно предположить, что наблюдение сравнимых по величине амплитуд резонансов с триплетными и синглетными состояниями связано со спецификой двухфотонных переходов, т.е. малая сила осциллятора интеркомбинационного перехода в триплетное состояние компенсируется малостью расстройки с промежуточным состоянием $^1P_1^0$. В работах [53-55] рассматривалось влияние поляризации остова и релятивистских эффектов на вероятность интеркомбинационных переходов. В них показано, что эти эффекты имеют ту же величину, что и учет магнитных взаимодействий, т.е. могут изменить отношение запрещенных и разрешенных переходов на фактор 2, а не на порядок величины. А как видно из проведенных выше оценок, расхождение с экспериментом на порядок и больше.

Следует также учитывать возможность разрыва LS - связи за счет возмущения атомных уровней во внешних переменных и постоянных полях [7]. Однако проведенные оценки [56] показали, что эти возмущения в

описываемых экспериментах пренебрежимо малы, и не могут оказывать заметного влияния.

Из проведенного в [44,57] анализа причин появления интенсивных интеркомбинационных переходов следует, что объяснение наблюдаемых соотношений вероятностей надо искать в исходном спектре атомов в возмущениях, вызванных взаимодействием конфигураций.

В результате взаимодействия конфигураций энергетические уровни смещаются, иногда настолько сильно, что правило Гунта нарушается и синглетный терм лежит ниже триплетного. Мультиплетное расщепление в триплетных термах деформируется, и правило интервалов Ланде не выполняется.

1.7. Ридберговские состояния щелочноземельных атомов

Физические величины, характеризующие атом, сильно зависят от значения главного квантового числа, поэтому свойства высоковозбужденных атомов могут полностью отличаться от свойств атомов с низким возбуждением [58]. Это объясняет тот интерес, который в настоящее время вызывает спектроскопия ридберговских состояний [59,60]. За последние десять лет было выполнено большое число экспериментальных работ по изучению высоковозбужденных состояний атомов Ca [61-63], Sr [64-66], Ba [67-73]. В подавляющем большинстве перечисленных работ в качестве мишеней использовались пары щелочноземельных металлов, то есть относительно большие плотности атомов $\sim 10^{14}-10^{15} \text{ см}^{-3}$. С этим связана необходимость учитывать различные эффекты, вызванные процессами столкновения. В работах [63,-65,67] применялся метод абсорбционной спектроскопии, во всех остальных - метод резонансно-ионизационной спектроскопии.

В атоме Ca интеркомбинационные двухфотонные переходы из основного состояния в высоковозбужденные наблюдались в работе [62]. Резонансы с триплетными состояниями появлялись в очень узкой области изменения главного квантового числа n 13-14. Было зарегистрировано всего два резонанса с однофотонными триплетными состояниями $4s13d3D2$ и $4s14d3D2$ и два с двухфотонными состояниями $3d2 \text{ } ^3P0$ и $3d2 \text{ } ^2P2$. В интервале 200 см^{-1} вблизи состояния $3d2 \text{ } ^3P2$ ионизационный сигнал от синглетных состояний 1D2 уменьшался в 100 раз, а затем восстанавливался до нормального. Сигнал же от

1S_0 серии вел себя нормально. По мнению авторов, это объясняется интерференцией каналов.

Из всей совокупности экспериментальных фактов по ридберговским состояниям щелочноземельных атомов следует, что интенсивные интеркомбинационные переходы в высоковозбужденные состояния этих атомов есть следствие эффекта взаимодействия конфигураций.

1.8. Квадрупольные переходы

Однофотонные переходы между состояниями с одинаковой четностью в дипольном приближении запрещены. Такие переходы могут носить квадрупольный характер, если выполняется дополнительно ограничение на изменение полного углового момента $\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2, J + J' \geq 2$ [75]. Дипольное приближение соответствует первому члену в разложении экспоненты $e^{ikr} = 1 + ikr + \frac{(ikr)^2}{2!}$, входящей в матричный элемент однофотонного перехода $\langle \psi_1^* | (pe) e^{ikr} | \psi_k \rangle$. В оптическом диапазоне длин волн $\lambda = 5 \cdot 10^{-5}$ это приближение является хорошим, поскольку параметр разложения в данном случае мал: $kr = \frac{2\pi r_0}{\lambda} = 10^{-3}$, где r_0 - борковский радиус. Квадрупольные переходы соответствуют следующему члену разложения экспоненты и, поэтому их вероятность в оптическом диапазоне на много меньше вероятности дипольных переходов. Отношение вероятностей квадрупольного и дипольного переходов равно отношению квадратов соответствующих матричных элементов и следовательно, $W_{кв}/W_{дип} = (2\pi r_0 / \lambda)^2 = 10^{-6}$. Отличие в шесть порядков вероятностей квадрупольных и дипольных переходов объясняет, почему такие переходы называют запрещенными. Их наблюдение возможно, только если дипольный переход запрещен правилами отбора. Например, нижнее состояние атома Ва - $6s5d \ ^1D_2$ может распадаться в основное $6s5d \ ^1D_2$ только посредством квадрупольного перехода.

В одноэлектронных атомах роль квадрупольных переходов в процессах многофотонной ионизации показал эксперимент [74], в котором возбуждался переход $3P - 4F$ в спектре атома Cs. Уровень $3P$ заселялся излучением первого лазера, а затем двухфотонно ионизовался излучением второго лазера, который мог подстраиваться в резонанс с $4F$ или $4D$. По отношению выхода ионов при

осуществлении дипольного $3P-4D$ и квадрупольного $3P-4F$ резонансов оценивалась вероятность квадрупольного перехода по известным значениям вероятности дипольных переходов. Продемонстрировано, что, когда энергетический знаменатель, соответствующий квадрупольному переходу в многофотонном матричном элементе, оказывается резонансно мал, то квадрупольный переход может обусловить большую вероятность многофотонной ионизации, чем дипольный переход, происходящий с большой расстройкой резонанса. Таким образом, малый числитель (квадрупольный матричный элемент) компенсируется малым знаменателем. В эксперименте [76] при резонансе с $4F$ расстройка определялась шириной лазерной линии, т.е. $\Delta\omega=10^{-2}\text{см}^{-1}$. Расстояние же до ближайшего дипольно разрешенного уровня в этом случае $\Delta = 4D - 4F = 40 \text{ см}^{-1}$. Вероятность двухфотонной ионизации уровня $3P$ при осуществлении квадрупольного промежуточного резонанса на порядок величины превышала вероятность нерезонансной двухфотонной ионизации.

В сложных атомах на вероятность квадрупольных переходов влияют эффекты взаимодействия конфигураций. Важность корреляционных эффектов обосновывается в работе [77], в которой развивается многоэлектронная теория для квадрупольных переходов. Показано, что учет взаимодействия конфигураций приводит к лучшему согласию теоретических расчетов и экспериментальных данных. Экспериментальные исследования квадрупольных переходов в щелочноземельных атомах появились лишь в последние несколько лет [78,-81].

1.9. Цель и постановка задачи исследований

В связи с изложенным, становится ясно, что особый интерес к изучению процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов связан со спектральными особенностями этих атомов: наличие смещенных термов, автоионизационных, двухэлектронных состояний. Следует отметить, что процессы многофотонной ионизации щелочных атомов достаточно подробно исследованы. Для них выявлены основные закономерности и специфические особенности, а для щелочноземельных атомов их предстоит выяснить.

Так, на момент начала исследований были взяты процессы многофотонной ионизации атомов бария и стронция. Однако остался открытым вопрос - носят ли полученные ранее результаты общий характер для всех щелочноземельных атомов. Поэтому необходимо было проведение

тщательного исследования процессов многофотонной ионизации и других атомов (кальция и магния) щелочноземельной группы. Представлял интерес и вопрос - можно ли данные, полученные для одноэлектронных атомов экстраполировать на двухэлектронные. А также - как корреляционные эффекты, а именно эффекты, обусловленные связью внешних электронов, будут проявляться в основных характеристиках, описывающих процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов.

Поэтому настоящая монография посвящена изучению специфических особенностей процесса многофотонной ионизации атомов щелочноземельных элементов. В ней будет дано детальное сопоставление полученных результатов с собственными данными автора по многофотонной ионизации щелочных атомов, так и с результатами, полученными в различных лабораториях мира.

Таким образом, целью работы являлось экспериментальное исследование влияния корреляции валентных электронов на процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов, анализ и обобщение достаточно разрозненного экспериментального и теоретического материала.

Глава II. Экспериментальная установка и методика

2.1. Общие положения и методика проведения экспериментов

Эксперименты осуществлялись по общепринятой методике. Использовался метод пересекающихся пучков: лазерного и атомного. В данной работе приводится целая серия различных результатов, полученных с использованием как твердотельных лазерных систем, так и лазерах на красителях, с использованием как импульсного, так и постоянного вытягивающего поля. В этой главе, посвященной оригинальным результатам, приведена методика определения ошибок измерений абсолютных значений сечений .

Общая схема экспериментальной установки представлена на рис.2.1. В эксперименте использовался эффузионный атомный пучок, получаемый с помощью специального термического источника. В качестве объектов исследований брались атомные пучки кальция, бария и магния.

Конструктивно лазер на гранате состоял из трех модулей: задающего генератора, излучающего в основной поперечной моде, выделяемой диафрагмой, помещенной в генератор, и двух каскадов усиления. В качестве рабочих модулей (для экспериментов, представленных в гл.3,4 и 5)

использовались излучатели серийного лазера ЛТИПЧ5 (генератор), ЛТИПЧ8 (два каскада усиления). Выходные параметры излучения лазера на гранате после двух каскадов усиления были следующие: энергия в импульсе $Q \sim 0,15$ Дж, длительность импульса на полувысоте ~ 15 нс, что соответствует мощности $P \sim 10$ МВт.

Для проведения ряда экспериментов использовалось излучение второй и третьей гармоник лазера на иттрий-алюминиевом гранате. Преобразование основной частоты излучения в удвоенную осуществлялось с помощью монокристалла дигидроарсенита цезия (CDA), предназначенного для удвоения частоты неодимового лазера ($YAG:Nd^{3+}$) с модуляцией добротности.

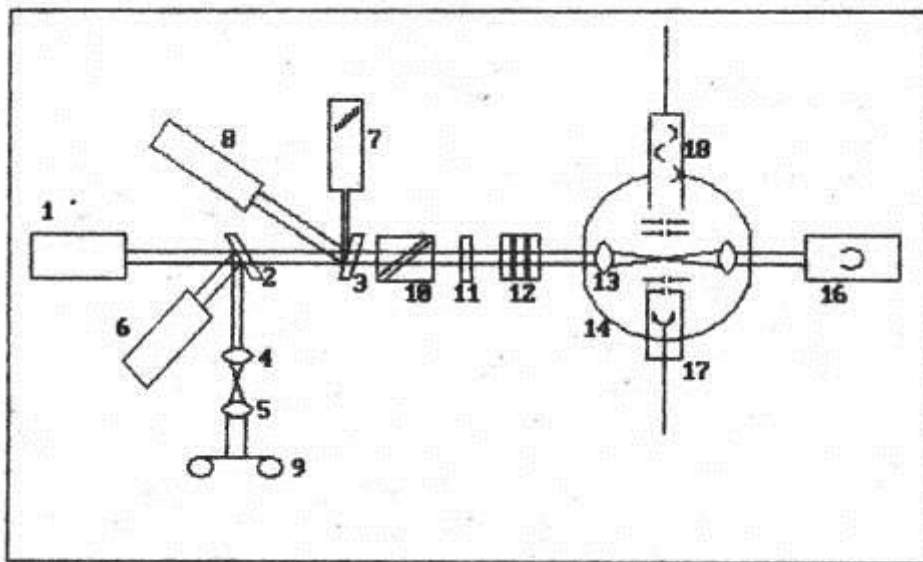


Рис. . 2.1 Схема экспериментальной установки

Известно, что коэффициент преобразования основной частоты в удвоенную зависит от температуры и ориентации кристалла. Поэтому были проведены специальные опыты для выбора оптимальной температуры синхронизма преобразователя. С этой целью кристалл CDA подогревали, используя ультрагермостат. Излучение удвоенной частоты отделялось от основной цветным светофильтром СЗС-21, в каждой серии импульсов изменялась энергия лазерного излучения, было обнаружено, что максимальный коэффициент преобразования основной частоты во вторую гармонику соответствовал 25% при температуре синхронизма $t^{\circ}=45,6$ С. Для проведения экспериментов была зафиксирована ориентация кристалла CDA в

пространстве, а оптимальная температура синхронизма поддерживалась постоянной. При этом погрешность поддержания температуры синхронизма не превышала нормы.

Параметры используемого излучения второй гармоники были следующие: энергия в импульсе $\sim 3 \cdot 10^{-3}$ Дж, длительность импульса на полувысоте $\sim 1,2 \cdot 10^{-2}$ с абсолютной величиной частоты излучения, измеренной с помощью автоколлимационной трубы УФ-90 -18790 см^{-1} . Регистрация спектра осуществлялась в четвертом дифракционном порядке (использовалась отражательная реплика с 300 шт /мм).

Дисперсия составляла величину $\sim 3 \text{ \AA/мм}$, что более чем на порядок превышает значение инструментального контура данной оптической системы. Калибровка спектрографа осуществлялась по линиям ртутной и натриевой ламп. Ошибка абсолютной калибровки не превышала 1 \AA . Напряженность электромагнитного излучения в фокусе, определенная по энергетическим и пространственно-временным характеристикам, составляла $\sim 3 \cdot 10^6 \text{ В см}^{-1}$.

Для проведения экспериментов по исследованию процессов трехфотонной резонансной ионизации щелочноземельных атомов (гл.5) была создана лазерная установка с перестройкой частоты. Два лазера на красителе, накачивались соответственно третьей и второй гармоникой излучения лазера на иттрий-алюминиевом гранате. Конструктивно лазер на гранате состоял из трех модулей: задающего генератора, излучающего в основной поперечной моде, выделяемой диафрагмой, помещенной в резонатор, и двух каскадов усиления. Выходные параметры излучения лазера на гранате после двух каскадов усиления были следующие: энергия в импульсе $Q \sim 0,15$ Дж, длительность импульса на полувысоте $\tau \sim 15$ нс, что соответствует мощности $P \sim 10 \text{ МВт}$. Преобразование излучения основной частоты во вторую и -третью гармонику осуществлялось в нелинейных кристаллах $\text{KDP}_{1,2}$ с углами синхронизма 41° (ооо-синхронизм) и 57° (еое-синхронизм). Перестройка в желто-зеленой области спектра (570-540 нм) на красителе родамин незамещенный, осуществлялась лазером ЛЖИ-504 с накачкой второй гармоникой ИАГ-лазера. Импульсная мощность излучения составляла 50 кВт, длительность импульса излучения на полувысоте 12 нс, спектральная ширина линии генерации 0,08 нм. Для перестройки в зелено-синей области спектра (540-420 нм) на красителях кумарин 7,30, 47, 120 использовался самодельный лазер, прототипом которого

послужила схема, предложенная в работе [70]. В нашей схеме использовалась реплика дифракционной решетки шириной 50 мм с 1800шт/мм. Дифракционная эффективность этой решетки в диапазоне длин волн 440-520 нм близка к максимальной и составляла 40-45%.

Сканирование длины волны осуществлялось поворотом зеркала вокруг вертикальной оси.

В ряде экспериментов (гл.6,7) в качестве источника оптического излучения использовались два лазера на красителях с синхронной накачкой твердотельным импульсным лазером. Лазерная система, употребляемая в экспериментах, включала в себя следующие основные модули: блок накачивающего излучения, внешний усилитель и два лазера на красителе. Блок накачивающего излучения представляет собой серийный твердотельный импульсный лазер ЛТИ-401 на кристаллах ИАГ: Nd^{3+} с модуляцией добротности и преобразования частоты во вторую гармонику (532 нм.), с помощью нелинейного кристалла KDP. Разделение пучков лазерного излучения основной частоты и второй гармоники осуществлялось с помощью дихроичного зеркала. Энергия лазерного импульса на выходе блока накачивающего излучения составляла:

- на длине волны 1064 нм $Q \sim 0,2$ Дж, длительность на полувысоте ~ 25 нс;

- на длине волны 532 нм $Q \sim 0,02$ Дж, $\tau \sim 20$ нс, соответствующая импульсная мощность $P \sim 1$ МВт. Энергетическая расходимость лазерного излучения - не более 0,002 рад.

Нелинейный преобразователь на основе элемента KDP с угловой перестройкой синхронизма преобразовывал излучение лазера на красителе во вторую гармонику (ультрафиолетовое излучение), длину волны которого можно было изменять в диапазоне 275-330 нм. Разделение основного излучения и второй гармоники осуществлялось дисперсионным элементом, представляющим из себя 60° кварцевую призму.

Используемое в эксперименте излучение выводилось из лазера и направлялось в вакуумную камеру, проходя через блок светофильтров, призмы Глана и диафрагму. В вакуумную камеру излучение заводилось через кварцевое окно и затем фокусировалось кварцевой линзой с фокусным расстоянием 35 мм в центр атомного пучка. Часть излучения блока накачки (с длиной волны 1064 нм) отводилась полупрозрачным зеркалом на дополнительный усилитель,

представляющий из себя две лазерные головки, питаемые от отдельного блока питания и синхронизированного с задающим блоком. Усиленное излучение преобразовывалось во вторую и третью гармоники и использовалось для накачки второго лазера на красителе. С помощью светофильтра излучение третьей гармоники, имевшее длину волны 354,6 нм, отделялось от излучения основной и второй гармоник. Призмный телескоп, с коэффициентом расширения пучка в горизонтальной плоскости ~ 3 , использовался для повышения эффективности заполнения излучением накачки кюветы с красителем. Лазер представлял собой самодельный лазер, сделанный по схеме со скользящим падением луча на дифракционную решетку и поперечной накачкой. Изменение длины волны лазерного излучения осуществлялось поворотом зеркала. Установленная в лазер дифракционная решетка была шириной 50 мм и числом штрихов 1800 шт/мм, излучение выводилось через нулевой порядок решетки. В таком варианте схемы лазера достигалась максимальная интенсивность лазерного излучения, но одновременно имелось двухпроходное суперлюминесцентное излучение красителя, выходявшее через тот же нулевой порядок дифракционной решетки, что и излучение генерации лазера. Однако суперлюминесцентное излучение имело существенно большую расходимость, чем лазерное излучение красителя. Поэтому для разделения широкополосного суперлюминесцентного и лазерного излучения использовалось пространственное разделение излучений генерации и суперлюминесценции красителя. Лазер был удален на 1,5 м от входного окна камеры и перед окном камеры была установлена диафрагма диаметром отверстия ~ 2 мм.

2.2. Ошибки экспериментальных измерений

Ошибки экспериментальных измерений складываются из ошибок измерения амплитуд ионных сигналов, абсолютизации интенсивности лазерного излучения, ошибок измерения энергии, длительности лазерного излучения, а также ошибок измерения длины волны и поляризации излучения.

В условиях проведения эксперимента можно было при измерении пространственно-временного распределения $f(x,y,z,t)$ разделить переменные и измерять функции $\psi(x,y,z)$ и $\phi(t)$. Чтобы измерить функцию пространственного распределения $\psi(x,y,z)$, часть лазерного излучения с помощью стеклянной

пластинки направлялась на линзу, идентичную фокусирующей и расположенную на таком же расстоянии от лазера, что и линза вакуумной камеры.

Распределение излучения фотографировалось в увеличенном -масштабе с помощью микроскопа (коэффициент увеличения $\times 100$) в разных сечениях области фокусировки. Микроскоп имел глубину резкости в несколько микрон, что было меньше расстояния, на котором меняется пространственное распределение сфокусированного света. В зависимости от используемой волны для фотографирования использовалась пленка ИНФРА, КН либо РФ7. Для каждой пленки находились характеристические кривые, зависящие от времени и состава проявителя. Полученные микрофотографии фотометрировались, строились зависимости $\psi(x,y)$ и графически определялась площадь в различных сечениях, соответствующих z .

Ошибка измерения площади $S_{\text{эфф}}$, возникающая в процессе фотографирования и фотометрирования, а также графического интегрирования $\sim 10\%$. По фотометрическим данным, типичные величины сечений составляли $S_{\text{эфф}} = (1,6 \pm 0,16) \cdot 10^{-5} \text{ см}^2$ (для объектива с фокусным расстоянием $f = 125 \text{ мм}$), $S_{\text{эфф}} = (4,9 \pm 0,5) \cdot 10^{-6} \text{ см}^2$ (для линзы с $f = 50 \text{ мм}$) и $S_{\text{эфф}} = (1,5 \pm 0,2) \cdot 10^{-6} \text{ см}^2$ (для $f = 25 \text{ мм}$).

Эффективный объем для K - фотонного процесса определялся графическим интегрированием функции $\psi(x,y,z)$. Строился график изменения сечения S вдоль оси z на уровне определенной интенсивности в интервале от максимальной до минимальной, которую можно оценить над уровнем фона пленки при фотометрировании. Затем производят интегрирование полученной зависимости $\psi(x,y)$

Источники ошибок в определении V_k те же, что и для S плюс ошибки, связанные с изменением третьей координаты, а также с возведением функции $\psi(x,y)$ в K - степень. Ошибка, связанная с измерением третьей координаты z , обусловлена неточностью юстировки рабочей линзы относительно центра электродов-диафрагм и не превысила $\sim 3\%$. Эффективный объем взаимодействия составлял $V_6 = (4,1 \pm 1,5) \cdot 10^{-8} \text{ см}^3$ (для $K_0 = 6$), $V_4 = (8,9 \pm 0,7) \cdot 10^{-8} \text{ см}^3$ (в случае $K_0 = 4$), $V_3 = (1,5 \pm 0,5) \cdot 10^{-7} \text{ см}^3$ (для $K_0 = 3$), $V_2 = (3,1 \pm 0,4) \cdot 10^{-7} \text{ см}^3$ (для $K_0 = 2$).

Функция временного распределения $\psi(t)$ измерялась с помощью коаксиального фотодиода ФК-19 с временным разрешением $\sim 10^{-10}$ с и скоростного осциллографа С7-10Б.

Вычисление длительности лазерного импульса T производилось путем графического интегрирования функции $\varphi(t)$. Ошибка измерения определялась нами как средняя ошибка, обусловленная погрешностью калибровки развертки осциллографа, графической обработки осциллограмм и составляла $\sim 10\%$.

Типичные величины эффективной полной длительности лазерного импульса в наших экспериментах были: $T_{\text{эфф}} = (3,0 \pm 0,4) \cdot 10^{-8}$ с, ($\lambda = 1,06$ мкм), $T_{\text{эфф}} = (2,4 \pm 0,3) \cdot 10^{-8}$ с ($\lambda = 0,53$ мкм), $T_{\text{эфф}} = (1,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-8}$ с ($\lambda = 0,35$ мкм) и $T_{\text{эфф}} = (2,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-8}$ с ($\lambda = 0,337$ мкм).

Величина $T_{K_0} = \int \varphi^k(t) dt$ находилась графическим интегрированием распределения $\varphi(t)$, возведенного в K_0 - степень. При этом к уже определенным ошибкам добавляются ошибки, связанные с возведением в K_0 - степень.

Полная энергия в импульсе определялась с помощью измерителя энергии лазерного излучения ИМО-2Н, помещенного в пучке лазерного света за вакуумной камерой. Ошибка абсолютного значения энергии составляла $\sim 10\%$, причем она обусловлена абсолютной точностью калибровки прибора. Энергия излучения в области взаимодействия измерялась с учетом потерь излучения на отражающих поверхностях, расположенных на пути лазерного излучения.

Области взаимодействия с максимальной интенсивностью F_0 дают основной вклад в число образующихся ионов. Величина F_0 определяется из соотношения:

$$F_0 = N\gamma / S_{\text{эфф}} T_{\text{эфф}},$$

где $N\gamma = Q[h\nu]$ — полное число фотонов в импульсе излучения, Q - полная энергия излучения в импульсе, $S_{\text{эфф}}$, $T_{\text{эфф}}$ - эффективные площадь и время взаимодействия.

Ошибка измерения интенсивности - есть суммарная относительная ошибка измерения энергии, площади и эффективного времени, она составляет $\sim 40\%$. Так как процесс многофотонной ионизации носит сугубо квантовый характер, то имеет смысл измерять интенсивность в $\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$

Численные значения интенсивности лазерного излучения следующие:

$$F_1 = 3,4 \cdot 10^{29} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1} (\lambda = 1,06 \text{ мкм}), F_2 = 5 \cdot 10^{28} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1} (\lambda = 0,53 \text{ мкм})$$

$$F_3 = 4 \cdot 10^{27} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1} (\lambda = 0,35 \text{ мкм}) \text{ и } F_4 = 10^{27} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1} (\lambda = 0,337 \text{ мкм}).$$

Изменение интенсивности осуществлялось с помощью нейтральных светофильтров, линейность ослабления которых проверялась в контрольных опытах.

При проведении исследований зависимости ионного сигнала от поляризации лазерного излучения в первую очередь определялся -участок линейной зависимости амплитуды ионного сигнала от интенсивности лазерного излучения. Потом при фиксированном значении энергии лазерного излучения определялся выход ионного сигнала при различной степени эллиптичности света. Для каждого значения степени эллиптичности амплитуда ионного сигнала многократно измерялась в каждой серии, что обеспечивало хорошую точность измерений. Принималось во внимание, что при фиксированной интенсивности излучения напряженность электромагнитного поля при циркулярно-поляризованном излучении (ϵ_0) меньше, чем в линейно-поляризованном, (ϵ_1), ϵ_0 и ϵ_1 связаны простым соотношением $\epsilon_0 = 1/\sqrt{2}\epsilon_1$. Для анализа поляризации света использовалась одна из разновидностей поляризационных призм Глана-Фуко [108], контраст которой предварительно измерялся, с использованием излучения гелий-неонового лазера и составлял $\sim 10^{-2}$ (т.е. $I_{\text{закр}}/I_{\text{откр}} \sim 10^{-2}$). В пучок исследуемого света помещали призму Глана и вращали ее. При определенной ориентации анализатора интенсивность прошедшего света была равна нулю. Это позволяет утверждать, что излучение удвоенной частоты неодимового лазера на иттрий-алюминиевом гранате линейно-поляризовано с точностью не хуже $\sim 2\%$, оценка точности сделана с учетом паспортных характеристик импульсного измерителя энергии лазерного излучения ИМО-2Н.

Для получения света, поляризованного по кругу, необходимо сложение двух когерентных волн с равными амплитудами, обладающими разностью фаз $\pi/2$ и поляризованных в двух взаимно перпендикулярных плоскостях. Это было достигнуто, когда линейно-поляризованное излучение было пропущено через кристаллическую пластинку с четвертью волны так, что плоскость первоначальной волны составляла 45° с главными направлениями в пластинке.

Следует отметить, что в экспериментах использовалась кварцевая пластинка, изготовленная на длину волны второй гармоники неодимового лазера и имеющая толщину $d = (m+1/4)\lambda$, где $\lambda = 53\text{ мкм}$, m -целое число. Чтобы проанализировать поляризацию излучения, полученную после помещения

фазовой пластинки в линейно-поляризованное излучение, использовалась призма Глана-Фуко и измерялась энергия света, прошедшего через анализатор, ориентированный в трех положениях, когда призма Глана-Фуко полностью пропускает излучение, когда она закрыта и в среднем положении. Точность, с которой выставлялась циркулярность излучения, не менее 5 %. Изменение степени эллиптичности осуществлялось азимутальным вращением фазовой пластинки $\lambda/4$, т.к. азимутальный угол ψ связан с полуосями эллипса поляризации простым соотношением $\operatorname{tg}\psi = I_x/I_y$, где I_x и I_y - интенсивности лазерного излучения, соответствующие двум взаимно перпендикулярным направлениям.

Глава III. Нерезонансный процесс многофотонной ионизации атомов

Хорошо известно, что такая величина, как вероятность многофотонной ионизации является одной из основных характеристик процесса взаимодействия света с атомарными средами. Так, в частности, измерив абсолютные значения сечений можно прогнозировать весь процесс в целом.

К моменту исследования нами процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов экспериментальный материал был единичный (у одних элементов, таких как барий и стронций, были обнаружены наряду с однозарядными, двухзарядные ионы, а у других (кальций, магний) - только однозарядные). На отдельных частотах были измерены и абсолютные значения сечений, но тоже не для всей группы щелочноземельных атомов.

Очевидный интерес представляет исследование общих закономерностей и особенностей процессов многофотонной ионизации щелочных и щелочноземельных атомов. Поэтому данная глава посвящена вопросу о влиянии корреляционных эффектов на процесс нерезонансной ионизации щелочноземельных атомов в целом, а именно - проявляются ли вышеуказанные эффекты на такой величине, как абсолютные значения сечений щелочноземельных атомов, а также сравнение полученных результатов с имеющимися теоретическими расчетами и оценками.

3.1. Нерезонансный процесс многофотонной ионизации атомов

Основная задача экспериментов, описанных в этом параграфе, заключалась в исследовании процесса многофотонной ионизации кальция и магния, а также в измерении абсолютных значений сечений прямого процесса одноэлектронной многофотонной ионизации атомов кальция излучением с длинами волн 1,06 мкм, 0,53 мкм, 0,337 мкм и атомов магния излучением 0,53 мкм, в сопоставлении полученных результатов с сечениями многофотонной ионизации щелочных атомов, процесс ионизации которых хорошо описывается нестационарной теорией возмущения, а также со значениями сечений, рассчитанных теоретически.

Для того чтобы проверить выполнение условий реализации прямого процесса многофотонной ионизации, мы исходили из невозмущенных энергетических спектров этих атомов, далее оценивали изменение расстроек за счет динамических штарковских сдвигов и уширений электронных состояний во внешнем возмущающем поле.

При рассмотрении энергетических диаграмм невозмущенных -спектров связанных состояний атомов Ca и Mg (рис..3.1), видно, что в случае ионизации атома кальция излучением основной частоты лазера на YAG:Nd, $\omega = 9395 \text{ см}^{-1}$ ($\lambda = 1,06 \text{ мкм}$) наименьшая расстройка реализуется между энергией пяти квантов и энергией уровней $7f^3F^0_3$, $7f^1F^0_3$ и составляет $\Delta E_1 = 31 \text{ см}^{-1}$ и $\Delta E_2 = 40 \text{ см}^{-1}$, соответственно. Дипольные переходы на эти уровни из начального S-состояния разрешены по правилам отбора. Авторами работ [14,41] показано, что у щелочноземельных атомов вероятности резонансов с триплетными и синглетными состояниями почти одинаковы. Поэтому при анализе -возможной резонансной ситуации со связанными состояниями нельзя пренебречь интеркомбинационными переходами. Расстройки суммарной энергии целого числа квантов относительно остальных уровней достаточно велики $\sim 10^2 - 10^3 \text{ см}^{-1}$. Приведенные расстройки соответствуют частоте в максимуме линии люминесценции лазерного излучения $\omega = 9395 \text{ см}^{-1}$. Здесь важно отметить, что ширина спектра излучения лазера на YAG:Nd³⁺ составляет $\sim 0,5 \text{ см}^{-1}$. Эффективная для К-фотонного процесса ширина спектра гауссовского профиля распределения интенсивности излучения определяется соотношением:

$$\langle \omega \rangle \text{Эфф} = \sqrt{K_0} \langle \omega \rangle, \quad (3.1)$$

и для $K_0 = 6$ эффективная ширина линии спектра $(\Delta\omega)_{\text{эфф}} < 1,3^{-1}$ см т.е. учет ширины линии излучения существенно не изменяет расстроек.

Оценим возмущение уровня $7f$ атома кальция во внешнем поле. Для оценок будем исходить из максимального значения, напряженности электромагнитного поля $\varepsilon \sim 5 \cdot 10^6$ В см⁻¹. Изменение под действием поля энергии перехода $4s - 7f$ для

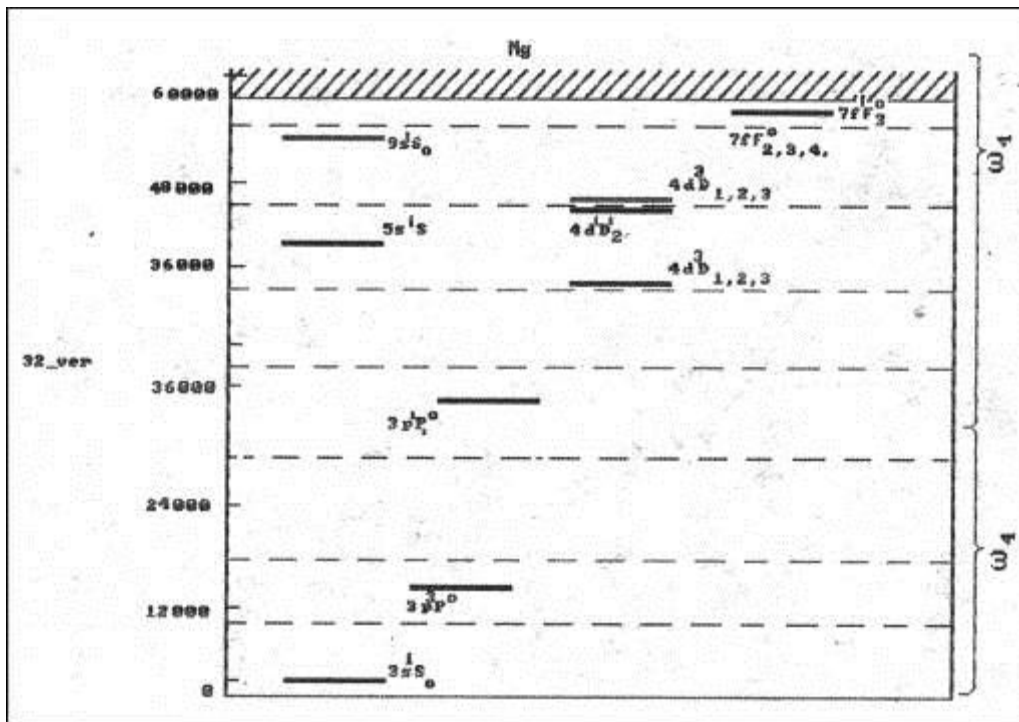


Рис.3.1 а) Энергетическая диаграмма атома Mg

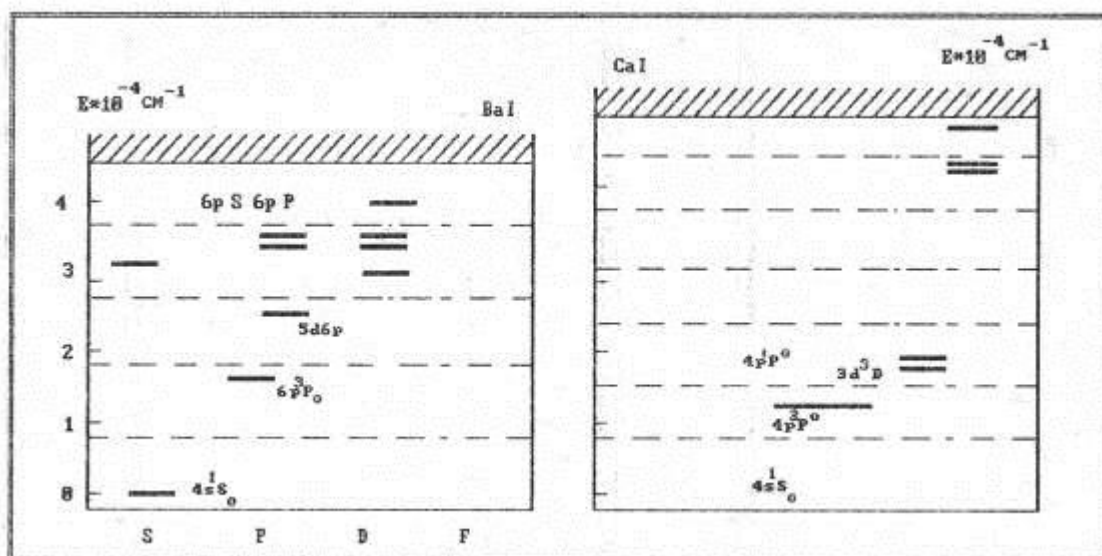


Рис.3.1 б), в) Энергетическая диаграмма атома Ba, Ca

атома кальция происходит за счет суммарного штарковского сдвига этих уровней $\Delta\varepsilon = 1/4(\alpha_{осн} + \alpha_{возб})\varepsilon^2$ ($\alpha_{осн}, \alpha_{возб}$ - Динамические поляризуемости основного и возбужденного состояний). Таким образом, для определения величины сдвигов, необходимо знать динамические поляризуемости атомов. В работе [65] приведена дисперсионная кривая динамической поляризуемости кальция. Следует особо подчеркнуть, что в этой работе при расчете параметров, характеризующих динамическую поляризуемость, учитывался вклад только от резонансов с синглетными состояниями. В данном конкретном случае можно пользоваться результатами этой работы, т.к. энергия первого кванта расположена на расстоянии $\sim 10^3 \text{ см}^{-1}$ от ближайшего триплетного состояния, так что его влияние на динамическую поляризуемость мало и им можно пренебречь. Величина динамической поляризуемости основного состояния атома кальция для частоты $\omega = 9395 \text{ см}^{-1}$ равна $\alpha_{осн} = 123,88$ ат.ед. следовательно сдвиг основного состояния в поле $\varepsilon \sim 5 \cdot 10^6 \text{ В.см}^{-1}$ составляет - $\Delta\varepsilon_{осн} \approx 26 \text{ см}^{-1}$.

Из высоковозбужденного уровня 7f открыт канал однофотонного выхода в непрерывный спектр, поэтому сдвиг этого уровня можно оценить по колебательной энергии свободного электрона в поле волны [67], а именно $\Delta\varepsilon_{возб} \approx 0,2 \text{ см}^{-1}$. Таким образом, в возмущающем поле $\varepsilon \approx 5 \cdot 10^6 \text{ В см}^{-1}$ изменение энергии перехода 4s-7f не может компенсировать статическую расстройку в 30-40 см^{-1} .

При использовании частот излучения второй гармоники $\omega_2 = 18790 \text{ см}^{-1}$, третьей гармоники $\omega_3 = 28185 \text{ см}^{-1}$ и частоты излучения лазера на молекулярном азоте $\omega_4 = 29658 \text{ см}^{-1}$, как видно из энергетической диаграммы атома кальция (рис..3.1) и атома магния, излучением с частотой ω_2 расстройки между энергиями нескольких квантов и близко расположенными уровнями, переходы разрешены по правилам отбора порядка $10^2 - 10^3 \text{ см}^{-1}$. Оценки, проведенные аналогично рассмотренным выше, показали, что в полях $(1-3) \cdot 10^6 \text{ В см}^{-1}$ максимальные сдвиги уровней атома, магния не больше единиц обратных сантиметров. Эффективная ширина лазерного излучения для $K_0 = 2-4$ не превышает одного см^{-1} ($(\Delta\omega)_{\text{эфф}} / 1 \text{ см}^{-1}$).

Таким образом, анализ штарковских сдвигов, приведенной эффективной ширины спектра ионизирующего излучения и их сравнение со статическими расстройками показывают, что включение возмущающего поля не может

значительно их изменить. Поэтому не вызывает сомнений, что под действием внешнего поля резонансы со связанными электронными состояниями не реализуются и выполняется условие прямого процесса многофотонной ионизации. Справедливость этого предположения была подтверждена в работе [14], в которой приведены дисперсионные зависимости выхода однозарядных ионов кальция, из которых следует, что на частотах $\omega = 9395 \text{ см}^{-1}$ и $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$ никаких резонансных особенностей не замечено.

Исследование прямого процесса многофотонной ионизации атомов осуществлялось при пересечении сфокусированного лазерного излучения с атомным пучком кальция или магния [83]. Малые плотности атомов $n_0 \approx 10^9 \text{ см}^{-3}$, $P \sim 10^{-6} \text{ мм рт.ст.}$), используемых в качестве исследуемой мишени, позволяли наблюдать процесс многофотонной ионизации и при этом предотвратить возникновение лавинной ионизации. При указанном давлении длина свободного пробега электрона ($L \sim 10 \text{ см}$) гораздо больше области, в которой сосредоточено световое поле, а временной интервал между соударениями ($\sim 10^{-5} \text{ с}$) много больше времени воздействия лазерного света на мишень ($\sim 10^{-8} \text{ с}$).

Следует отметить, что атомы можно считать практически неподвижными, т.к. скорости атомов в пучке тепловые и за время действия лазерного импульса атомы смещаются на расстояния, намного меньшие, чем поперечный размер области фокусировки. В таких условиях осуществляется только процесс многофотонной ионизации и конкурирующими эффектами можно пренебречь.

При исследовании процессов многофотонной ионизации использовалось излучение основной частоты лазера на YAG:Nd^{3+} и его гармоник, а также излучение лазера на молекулярном азоте.

Для того, чтобы проверить выполнение условий реализации прямого процесса многофотонной ионизации, мы исходили из невозмущенных энергетических спектров этих атомов, далее оценивали изменение расстроек за счет динамических штарковских сдвигов и уширений электронных состояний во внешнем возмущающем поле.

Как отмечалось выше, в эксперименте всегда измеряется интегральный выход ионов, т.е. полное число ионов, образованных во всем объеме взаимодействия за время длительности лазерного импульса. При достаточно слабых интенсивностях излучения и малых временах T , т.е. когда $\int^T \sigma_k F^k dt \ll 1$,

получается простое соотношение, связывающее полное число образованных ионов с величиной сечения ионизации σ_k :

$$N = n_0 \sigma_k \iint F^{k_0} dV dt, \quad (3.2)$$

Таким образом, для определения величины σ_k следует определить абсолютное значение интенсивности F , а также величины эффективных объемов, времени и плотности нейтральных атомов.

Выше уже упоминалось, что необходимо измерять не только полное число фотонов, прошедших через исследуемый объем, но также и распределение фотонов по пространству и времени. Это связано с тем, что в одном акте ионизации участвует не один, а K - фотонов. Любая неоднородность в распределении интенсивности излучения приводит к тому, что разные области будут давать вклад в ионизацию, пропорциональный интенсивности в этой области в степени K .

3.2. Экспериментальные результаты

Наблюдая процесс многофотонной ионизации атомов кальция, бария и магния, используя излучение основной и удвоенной частот неодимового лазера на иттрий-алюминиевом гранате, было обнаружено образование одно- и двухзарядных ионов этих атомов. Отношение времени появления сигнала однозарядных ионов к времени появления сигналов двухзарядных ионов равно $\sqrt{2}$. Это указывает на достоверность идентификации двухзарядных ионов. Амплитуда сигнала двухзарядных ионов всего в два раза меньше амплитуды сигнала однозарядных при максимальной энергии лазерного излучения. Этот факт свидетельствует о том, что вероятности образования одно- и двухзарядных ионов сопоставимы друг с другом. Обратимся теперь к исследованию выхода одно и двухзарядных ионных сигналов от параметров лазерного излучения.

На рис. 3.2 приведена функциональная зависимость амплитуды ионного сигнала кальция от энергии лазерного излучения линейной поляризации с частотой $\omega = 9395 \text{ см}^{-1}$ в дважды логарифмическом масштабе. Как видно из рис. 3.2, обнаружено образование одно и двухзарядных ионов кальция с сопоставимой вероятностью. Причем возникновение ионного сигнала Ca^{2+} наблюдается при интенсивности лазерного излучения, когда для однозарядных ионов выполняется условие $\sigma \cdot W dt \sim 1$. В области больших энергий

зафиксировано явление насыщения и для двухзарядных ионов кальция. Зависимость логарифма амплитуды ионных сигналов кальция от логарифма интенсивности лазерного излучения линейной поляризации с частотой $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$ представлена на рис. 3.3. Двухзарядные ионы наблюдаются одновременно с однозарядными в области интенсивности лазерного излучения, когда все нейтральные атомы, находящиеся в эффективном объеме, ионизованы. При используемых интенсивностях лазерного излучения второй гармоники лазера на YAG:Nd^{3+} насыщение в выходе двухзарядных ионов не зафиксировано.

При использовании излучения третьей гармоники частоты $\omega = 28185 \text{ см}^{-1}$ была измерена зависимость амплитуды ионного сигнала кальция от энергии лазерного излучения. Она приведена на рис. 3.4. С помощью регистрирующей аппаратуры уверенно зафиксированы только два порядка величины изменения амплитуды ионного сигнала. Увеличить динамический диапазон измеряемого сигнала не удалось, так как при работе с частотным режимом происходит локальный перегрев нелинейного кристалла КДР и резко снижается коэффициент преобразования в третью гармонику и этом случае заставить стабилизировать энергию излучения с частотой

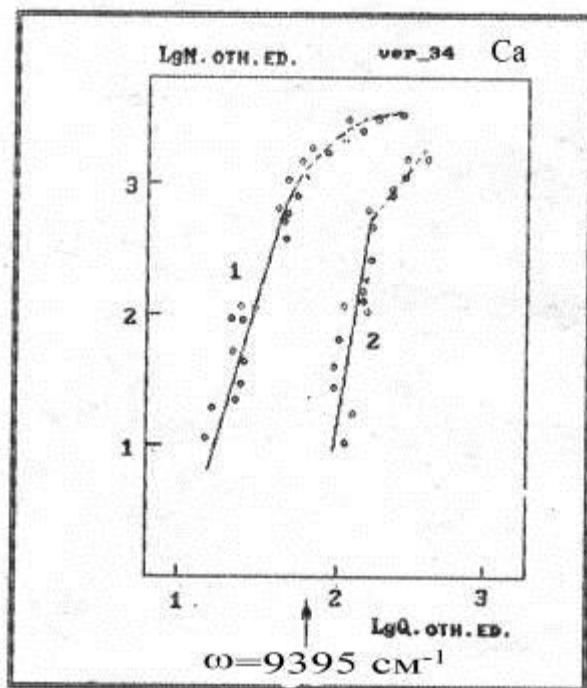


Рис.3.2. Зависимость образования одно - и двухзарядных ионов атома Ca от энергии лазерного излучения, $\omega = 9395^{-1} \text{ см} .$

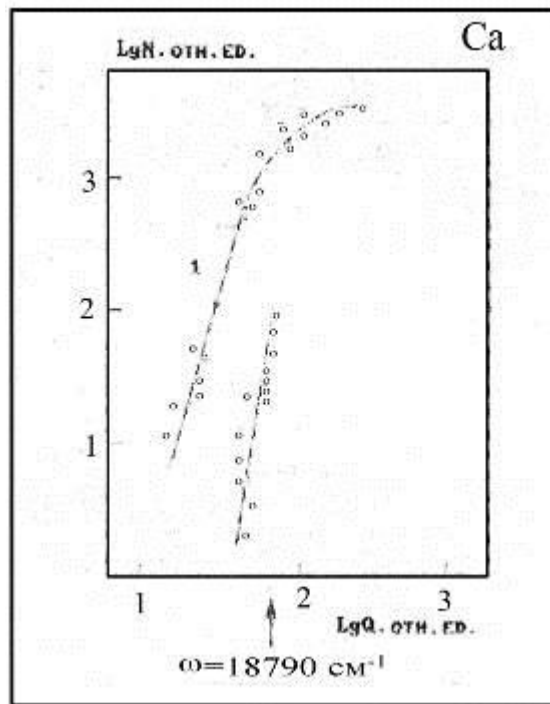


Рис.3.3. Зависимость образования одно - и двухзарядных ионов атома Ca от энергии лазерного излучения, $\omega = 13790 \text{ см}^{-1}$.

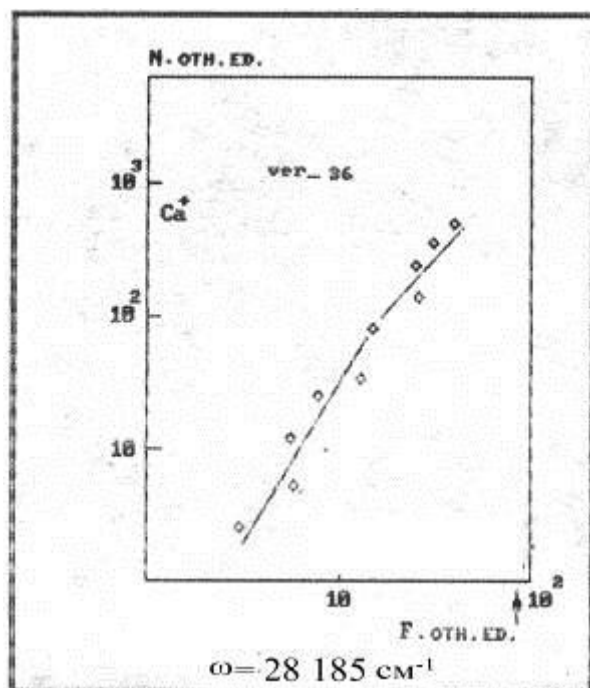


Рис.3.4. Зависимость образования однозарядных ионов атома Ca от энергии лазерного излучения, $\omega = 28185 \text{ см}^{-1}$.

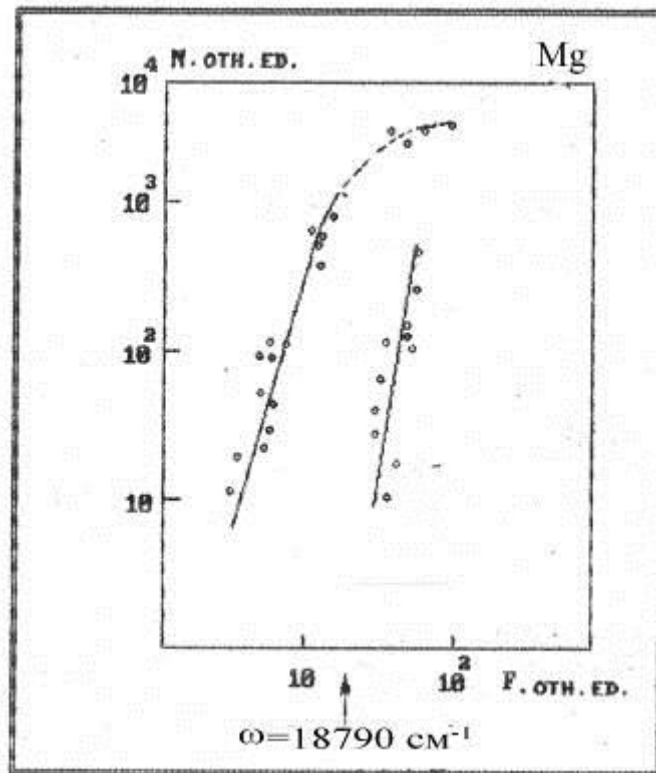


Рис.3.5. Зависимость образования одно - и двухзарядных ионов атома Mg от энергии лазерного излучения, $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$.

$\omega=28185 \text{ см}^{-1}$ было невозможно. Как видно из рис. 3.4, обнаружены только однозарядные ионы и наблюдается начальный участок отклонения функциональной зависимости $N(Q)$ от степенной зависимости.

В трех случаях, а именно при ионизации атомов кальция излучением основной и удвоенной, а атомов магния - удвоенной частот излучения (рис. 3.5) наблюдается образование как одно-, так и двухзарядных ионов. Экспериментальные факты обнаружения двухзарядных ионов кальция и магния были впоследствии подтверждены в работах [68,69].

При многофотонной ионизации атома кальция излучением третьей гармоники неодимового лазера на иттрий-алюминиевом гранате и излучении лазера на молекулярном азоте были обнаружены только однозарядные ионы. Возможной причиной отсутствия двухзарядных ионов может быть недостаточная для их образования интенсивность лазерного излучения.

В зависимостях $N(Q)$ можно выделить два области. В области малых Q эти зависимости аппроксимируются степенным законом $N \sim Q^k$. Численное значение показателя степени $K = \delta \lg N / \delta \lg Q = \delta \lg W / \delta \lg F$ определяется методом наименьших квадратов. В области больших Q наблюдается насыщение ионных

сигналов, обусловленное высокой степенью ионизации нейтральных атомов, находящихся в эффективном объеме.

В табл 3.1 представлены результаты численных значений измеренных степеней нелинейности K^+ экс и $K_{д2+}$ экс. В этой таблице также приведены степени нелинейности прямых процессов ионизации атомов K^+ о. однозарядных ионов K^{2+} о, а также K^{2+}_3 , если предполагать одновременный отрыв двух электронов от атома.

Из результатов, приведенных в табл 3.1, следует, что в случае одноэлектронной многофотонной ионизации атомов кальция и магния измеренные степени нелинейности совпадают со значениями числа фотонов, поглощение которых необходимо для ионизации. Этот факт свидетельствует в пользу прямых (нерезонансных) процессов многофотонной ионизации на использованных частотах

Таблица 3.1

Экспериментально измеренные степени нелинейности многофотонной ионизации

Атом	ω, CM^{-1}	K^+ о	K^+ экс	K^{2+} о	K^{2+} экс
Ca	9395	6	5.4±0.6	11	10.6±1.2
Ca	18790	3	2.8±0.4	6	4.9±0.9
Ca	28185	2	2.2±0.3	4	—
Ca	29658	2	1.9±0.3	4	-
Mg	18790	4	3.8±0.5	7	5.5±1.2
Ba	9395	5	5.7±0.9	9	9.5±0.6
Ba	18790	3	2.7±0.4	5	4.7±0.5

Из функциональных зависимостей, приведенных на рис.. 3.2, 3.3, 3.5, видно, что выход двухзарядных ионов наблюдается в области, где осуществляется полная ионизация нейтральных атомов и вероятность образования двухзарядных ионов сравнима с вероятностью образования однозарядных ионов.

Если сопоставить измеренные величины K^{2+} экс со значением числа фотонов, необходимых по закону сохранения энергии для прямого процесса многофотонной ионизации ионов кальция и магния K_{2+} о, то видно их соответствие в пределах точности эксперимента.

Из результатов эксперимента можно также получить данные о количественном соотношении образования однозарядных и двухзарядных

ионов. Наблюдение зависимостей $N^+(Q)$ и $N^{2+}(Q)$ дает основание считать, что соответствующие процессы в определенной области изменения интенсивности излучения носят степенной характер и их вероятности описываются обычным соотношением $W \sim F^k$.

В условиях проведения наших экспериментов отношение W^+/W^{2+} не равно отношениям N^+/N^{2+} по трем причинам:

а) коэффициент ионно-электронной эмиссии первого динода вторично-электронного умножителя различается для ионов разной кратности заряда. Согласно [70] этот коэффициент для двухзарядных ионов превышает в 2 раза коэффициент ионно-электронной эмиссии для однозарядных ионов;

б) имеется отличие в абсолютной величине эффективных объемов для процессов с разными степенями нелинейности. Экспериментально измерив эффективный объем фокусировки V_k было обнаружено, что отношения эффективных объемов равны $V_6/V_{11} \approx 3,2$; $V_3/V_6 \approx 3,6$; $V_4/V_7 \approx 2,5$;

в) статистический фактор для процессов с различными K различен. Если лазерное излучение характеризуется достаточно большим числом мод, то оно эквивалентно излучению теплового источника и статистический фактор $g_k = K!$. Как известно, спектральный состав излучения на молекулярном азоте сложный и многомодовый [61].

В случае, когда число генерируемых мод недостаточно велико, а степень нелинейности K велика, некогерентное излучение не эквивалентно излучению теплового источника. При этом статистический фактор зависит от числа генерируемых мод и величины нелинейности процесса [71]. Спектр генерации использованного неодимового лазера на $YAG:Nd^{3+}$ имеет полуширину $\approx 0,5$ см⁻², что при длине резонатора $L = 70$ см обеспечивает 140 мод. Поэтому лазерное излучение можно с достаточной точностью полагать эквивалентным излучению теплового источника только для 2-3 фотонных процессов.

Для многофотонной ионизации атомов кальция и магния учет вышеперечисленных фактов приводит к следующим коэффициентам, связывающим величины N^+/N^{2+} и W^+/W^{2+} : $k \approx 5 \cdot 10^3$ ($\omega = 9395$ см⁻¹); $k \approx 102$ ($\omega = 18790$ см⁻¹); $k \approx 10$ ($\omega = 28185$ см⁻¹).

Исходя из экспериментальных зависимостей $N^+(Q)$ и $N^{2+}(Q)$, можно получить отношение вероятностей образования ионов N^+ и N^{2+} . Очевидно, что

это отношение может быть различным для различных значений интенсивности. Наблюдение насыщения в выходе ионов N^+ позволяет абсолютизировать вероятности образования этих ионов, т.к. в области насыщения справедливо соотношение $W \sim 1/\tau$, где τ - длительность лазерного излучения. Значения N^+/N^{2+} и W^+/W^{2+} приведены в табл 3.2.

Таблица 3.2

Экспериментальные и теоретические значения отношений вероятностей образования одно- и двухзарядных ионов

Атом	$\omega, \text{см}^{-1}$	ФН	$(N^+/N^{2+})_{\text{экс}}$	$(W^+/W^{2+})_{\text{теор}}$
Ca	9395	$3 \cdot 10^{29}$	10^6	10
Ca	18790	$5 \cdot 10^{28}$	10^7	10^7
Mg	18790	$3 \cdot 10^{28}$	10^6	10^4
Ba	9395	$2 \cdot 10^{29}$	10^5	10^2
Ba	17890	$5 \cdot 10^{28}$	10^4	10^2

3.3. Измерения сечений многофотонной ионизации

Абсолютные значения сечений многофотонной ионизации можно измерить двумя методами: абсолютным и относительным [8].

Наличие участков насыщения на функциональных зависимостях $N^+(Q)$ позволяет воспользоваться методом относительных измерений для определения абсолютных значений сечений одноэлектронной многофотонной ионизации. Преимуществом относительного метода является то, что он не требует абсолютизации таких величин, как число образовавшихся ионов $N1$ и концентрация нейтральных атомов n_0 . Поэтому данный метод обеспечивает меньшие погрешности измерения сечений многофотонной ионизации σ_k по сравнению с абсолютным методом.

В последние годы разработано несколько способов реализации относительного метода [72], а именно:

- а) "идеальная" реализация относительного метода измерений сечений;
- б) относительный метод с использованием двучленного ряда;
- в) метод измерения с помощью точки пересечения.

Метод (а) может быть использован, если есть теоретически рассчитанная кривая $W(F)$ для конкретного пространственного распределения. Способ (б)

применим для произвольного пространственного распределения, а метод (в) для распределения излучения, имеющего гауссов профиль.

В данном случае для измерения абсолютных значений сечений был использован метод разложения в ряд (б). Он заключается в следующем: вводится безразмерная характеристика временного распределения интенсивности лазерного излучения $P = \sigma_{\text{ко}} F_0^{\text{ко}} T_k$, где $\sigma_{\text{ко}}$ - сечение процесса; F - интенсивность лазерного излучения; $T = \int \phi^k(t) dt$ эффективное время. Зависимость $N(F)$ аппроксимируется и производится разложение $N(P)$ в ряд по степеням P [72]

$$N_i(P) = n_0 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1}}{n!} P^n V_{nk}, \quad (3.3)$$

где n_0 - концентрация нейтральных атомов, $V_{nk} = \int \phi^k(x,y,z) dx dy dz$ - эффективный объем при k - взаимодействии. Первый член ряда $n_0 P V_{k0}$ соответствует ненасыщенной зависимости, а второй и последующие описывают насыщение. Обычно используют только два члена ряда [72]

$$N_i \approx n_0 P V_k - \frac{n_0}{2} P^2 V_{2k} \approx N_i^*(P) \left(1 - \frac{P V_{2k}}{2 V_k}\right), \quad (3.4)$$

где $N_i = n_0 P V_k$ зависимость выхода ионов без насыщения, экстраполированная в область больших P .

Сечение многофотонной ионизации вычисляется по формуле:

$$\delta_k = \frac{1 - N_i / N_i^*}{1/2 (F_0)^k T_k V_{2k} / V_k}, \quad (3.5)$$

На практике мы анализировали зависимость выхода N_i от интенсивности F на графике, выполненном в дважды логарифмическом масштабе, поэтому формула для вычисления сечения имеет несколько иной вид:

$$\delta_k = \frac{(\lg N_i)^* - (\lg N_i)}{1/2 \lg e F^k T_k V_{2k} / V_k}, \quad (3.6)$$

Использование ряда, описывающего логарифмы, имеет преимущества. Согласно результатам анализа [72], логарифмический ряд обладает большей областью действия по сравнению с рядом (3.4) при одинаковых погрешностях ионных сигналов.

Известно, что процесс многофотонной ионизации в поле излучения многочастотных лазеров характеризуется двумя особенностями [73]:

- выход ионов флуктуирует от импульса к импульсу из-за невоспроизводимости тонкой временной структуры;

- средний выход ионов в поле излучения многочастотного лазера выше, чем в поле одночастотного лазера при равных средних интенсивностях ($F_{\text{ср}} = F_0$) из-за высоких пиковых значений интенсивности излучения во флуктуациях, и насыщение ионного сигнала при использовании многочастотных лазеров наступает раньше, чем при применении одночастотных лазеров.

Флуктуации характеризуются величиной относительного среднеквадратичного разброса и зависят от числа генерируемых мод [73]:

$$d = [(g_{2k}[g_k - 1][N\sqrt{K}]^{1/2})^2]^{1/2}, \quad (3.7)$$

где g_{2k} - статистический фактор излучения для $2k$ - фотонного процесса; N - число мод излучения используемого лазера; g_k - статистический фактор, учитывающий некогерентность реального лазерного излучения.

Сделав оценки по формуле (3.7), можно убедиться, что для $K_0 = 2-6$ разброс не превышает среднего значения. Поэтому в данном случае флуктуации не искажают среднего значения.

Для того, чтобы сравнивать экспериментально измеренные величины со значениями, полученными в других работах, необходимо учесть фактор, связанный с некогерентностью используемого лазерного излучения. Известно [71], что вероятность ионизации излучения некогерентным больше, чем когерентным светом в G_k раз. Рассчитанные значения статистического фактора для разных степеней нелинейности с учетом числа мод лазерного излучения приведены в работе [74].

Ошибка в измерении абсолютных значений сечений складывается из ошибок измерения величин, входящих в формулу (3.6), т.е. ошибок графического определения логарифма величины ионного сигнала (она не превышает 5 %) и ошибки измерения интенсивности лазерного излучения, которая составляет не менее 40 %.

Экспериментально измеренные абсолютные значения сечений одноэлектронной многофотонной ионизации представлены в табл 3.3.

Таблица 3.3

Экспериментально измеренные абсолютные значения сечения
многофотонной ионизации

Атом	ω , см-1	K_0	σ_k	G_k	m_k
Ca	9395	6	$10^{-170,7+0,9}$	640	$10^{-7,2+1,2}$
Ca	18790	3	$10^{-78,6+0,3}$	5,9	$10^{-9,1+0,5}$
Ca	28185	2	$10^{-46,3+0,4}$	1,98	$10^{-6,6+0,5}$
Ca	29658	2	$10^{-45,9+0,4}$	2	$10^{-6,3+0,5}$
Mg	18790	4	$10^{-104,1+0,4}$	23	$10^{-0,1+0,6}$
Ba	9395	5	$10^{-138,9+1,0}$	120	$10^{-1,0,9+1,0}$
Ba	18790	3	$10^{-77,8+0,4}$	5,9	$10^{-8,7+0,6}$

Здесь ω - частота излучения; K_0 - число фотонов, поглощение которых необходимо для ионизации, σ_k - экспериментально измеренные значения сечений; G_k - статистический фактор, учитывающий немонохроматичность лазерного излучения; σ_{k_0} - экспериментально измеренное сечение, отнесенное к монохроматическому излучению.

3.4. Абсолютные значения сечений многофотонной ионизации щелочных атомов

Для проведения сопоставления между измеренными нами абсолютными значениями сечений щелочноземельных атомов с аналогичными значениями величин нами были проведены дополнительные специальные исследования процесса многофотонной ионизации щелочных атомов. В качестве объектов исследования были выбраны атомы калия и натрия.

Для измерения сечений двух-, трех-, четырех- и пяти фотонной ионизации атомов калия и натрия излучением первой и второй гармоник лазера на стекле с неодимом эксперименты проводились в следующей последовательности:

1. Измерялась зависимость числа образованных ионов N_i от полной энергии в импульсе Q_i . Затем строилась зависимость $N_i(Q)$ в дважды логарифмическом масштабе.

2. На измеренной зависимости выбиралась точка по энергии в области далекой от насыщения. При данном значении энергии одновременно измерялись все параметры, которые необходимы для определения сечения из σ_k соотношения (3.8), а именно: площадь максимальной фокусировки S , длительность импульса τ , абсолютное число ионов N_i , энергия в импульсе Q . Это значение энергии и являлось рабочим $Q_{\text{раб}}$.

3. Определяем объем V_k , т.е. в нескольких последовательных импульсах лазера измерялось сечение пучка излучения в различных точках оси z вблизи фокальной плоскости.

4. Для двух-, трех-, четырех- и пятифотонных процессов ионизации атомов калия и натрия устанавливалась величина сечения (δ) методом абсолютных измерений. Для четырехфотонного процесса ионизации атома калия сечение σ_4 вычислялось также методом относительных измерений.

В табл 3.4 приведена сводка всех параметров, измеренных в описанных экспериментах и необходимых для вычисления сечения многофотонной ионизации методом абсолютных измерений.

Численные значения сечений двух-, трех-, четырех- и пятифотонных процессов ионизации атомов калия и натрия, определенные по ниже приведенному соотношению

$$\delta_{k_0} = \frac{N_i}{n_0 F_0^k V_{k_0} \tau_{k_0}} = \frac{N_i}{n_0 \left(\frac{h\omega}{Q}\right)^{k_0} V_{k_0} \tau_{k_0}} \frac{S_{\text{эф}}^{k_0} \tau_{\text{эф}}^{k_0}}$$

с использованием данных, записанных в табл 3.4, представлены в табл 3.5. Там же дано сечение четырехфотонной ионизации атома калия, определенное относительным методом, описанным выше. Во всех случаях в численные значения экспериментальных величин σ_k введены поправки в соответствии с соотношением, учитывающим многомодовый характер используемого лазерного излучения.

В табл 3.5, помимо экспериментально измеренных сечений двух- и пяти фотонной ионизации, приведены также сечения, рассчитанные методом теории возмущений с использованием различных приближений.

Следует обратить внимание на удовлетворительное совпадение данных о четырехфотонном сечении, полученных разными методами.

Таблица 3.4

Сводка экспериментальных данных, измеренных для вычисления
многофотонных сечений

Ат	ω	K	Q	τ_{ko}	S	V_{ko}	Ni	n_o
K	2,36	2	$3,8 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$2,1 \cdot 10^{-6}$	75	$1,6 \cdot 10^8$
Na	2,36	3	$9,7 \cdot 10^{-3}$	$1,1 \cdot 10^{-8}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$	$6,3 \cdot 10^{-7}$	54	$2,5 \cdot 10^8$
K	1,18	4	$3,3 \cdot 10^{-3}$	$1,4 \cdot 10^{-8}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$6,9 \cdot 10^{-7}$	44	$3,4 \cdot 10^8$
Na	1,18	5	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$1,3 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-6}$	30	$1,5 \cdot 10^8$

Q - энергия в импульсе излучения; τ_k и V_k время и эффективный объем для нелинейного процесса Ко -го порядка; S - площадь максимальной фокусировки; Ni - число ионов, образованных во всем объеме взаимодействия за время импульса лазера, n_o - начальная плотность нейтральных атомов.

Таким образом, измерены абсолютные значения сечений двух-, трех-, четырех- и пятифотонных процессов нерезонансной ионизации атомов калия и натрия излучением линейной поляризуемости на длине волны 1,06 мкм и 0,53 мкм.

Таблица 3.5

Экспериментальные и теоретические значения сечений δ

Атом	ω	K	$\lg \sigma_{ko}$ (абс)	$\lg \sigma_{ko}$ (отн)	$\lg \sigma_{ko}$ (теор)
K	2,36	2	$-48,8 \pm 0,8$		-48,8
Na	2,36	3	$-79,6 \pm 1,1$		-77,5
K	1,18	4	$-107 \pm 1,4$	$-109,2 \pm 0,8$	-108,5
Na	1,18	5	$-138 \pm 1,7$		-140,3

С точностью до ошибки измерений экспериментальные данные согласуются с расчетными, использующими нестационарную теорию возмущений Ко порядка. Согласование расчетов с экспериментальными данными в широком диапазоне изменения степени нелинейности процесса ионизации дает основание предполагать, что расчеты с указанной точностью описывают процесс ионизации и других атомов.

3.5. Обсуждение и анализ полученных результатов

Спектры атомов кальция и магния отличаются от спектров атомов бария и стронция тем, что в области первого потенциала ионизации нет близко расположенных двухэлектронных и автоионизационных состояний. Этим ранее [12] и объяснялось отсутствие образования у этих элементов двухзарядных ионов.

Рассмотрим полученные нами экспериментальные результаты с точки зрения каскадного механизма образования двухзарядных ионов. В этом случае мишенью, из которой образуются двухзарядные ионы, являются однозарядные ионы. Поэтому, очевидно, что можно наблюдать степенную зависимость выхода двухзарядных ионов $N^{2+}(Q)$ с показателем степени нелинейности $K_{\text{экс}}^{2+} = K_{\text{о}}^{2+}$, только если при изменении Q число однозарядных ионов не изменяется, т.е. все атомы ионизованы. Так как степень нелинейности процесса ионизации ионов $K_{\text{о}}^{2+}$ существенно превышает степень нелинейности процесса ионизации атома $K_{\text{о}}^{+}$, то образование двухзарядных ионов происходит в той области, где напряженность поля максимальна. Соответствующие эффективные объемы $V_{\text{к}}^{2+}$ гораздо меньше эффективных объемов $V_{\text{к}}^{+}$, в которых происходит ионизация атома.

Как видно из табл 3.1, измеренные степени нелинейности многофотонной ионизации согласуются с предположением о каскадном механизме процесса образования двухзарядных ионов щелочноземельных атомов. К сожалению, из-за ограниченности чувствительности регистрирующей аппаратуры со стороны малых сигналов не были выполнены подобные измерения в области столь малой интенсивности, когда выход однозарядных ионов еще не насыщен.

Представляет интерес сравнить отношение выходов одно-и двухзарядных ионов с предсказываемыми величинами, которые можно получить исходя из теории возмущений.

В настоящее время экспериментальные данные о многофотонном отрыве электрона от иона отсутствуют, поэтому для оценок предположим, что вероятность ионизации иона сопоставима с вероятностью ионизации атома при фиксированной величине $K_{\text{о}}$. В этом случае, чтобы сделать оценки, можно использовать данные о многофотонной ионизации нейтрального атома. В табл 3.2 приведены предполагаемые величины вероятностей исходя из

совокупности экспериментальных и теоретических данных, известных для атомов благородных газов и щелочных металлов.

Как видно из табл 3.2, сопоставление отношения выходов и вероятностей одно- и двухзарядных ионов не позволяет сделать общего вывода. Так, в случае многофотонной ионизации атома кальция излучением с частотой $\omega = 9395 \text{ см}^{-1}$ очень велика разница между N^+/N^{2+} и W^+/W^{2+} ($\sim 10^{11}$), при использовании излучения с частотой $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$ наблюдается удовлетворительное согласие, а в случае многофотонной ионизации атома магния излучением с частотой $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$ разница отношений $\sim 10^{-2}$.

Таким образом, однозначно интерпретировать полученные экспериментальные результаты по образованию двукратно заряженных ионов исходя из одноэлектронного приближения теории возмущения невозможно.

Обратимся теперь к результатам, полученным по одноэлектронной многофотонной ионизации атомов кальция, бария и магния.

Типичные экспериментально измеренные значения сечений двух и трех фотонных процессов ионизации щелочных атомов $\sim 10^{-47} \text{ см}^4 \text{ с}$ и $\sim 10^{-77} \text{ см}^6 \text{ с}^2$, соответственно, а шестифотонной ионизации атомов инертных газов $\sim 10^{-172} \text{ см}^{12} \text{ с}^5$ [43].

Как видно из табл 3.5, измеренные нами величины сечений незначительно отличаются от приведенных выше значений.

Следует особо отметить, что полученные в данной работе значения сечений трех-и шестифотонных процессов ионизации атома кальция в пределах ошибок измерений совпадают с величинами сечений, измеренных на других частотах [14]. Данные по двухфотонной ионизации атома кальция и четырехфотонной ионизации атома магния в литературе отсутствуют.

Используя метод модельного потенциала, теоретически были рассчитаны абсолютные значения сечений [66] многофотонной ионизации атомов кальция и магния. Для трех-и шестифотонной ионизации атомов кальция $\sigma_3 = 10^{-78} \text{ см}^6 \text{ с}^2$, $\sigma_6 = 10^{-171} \text{ см}^{12} \text{ с}^5$, соответственно, а для четырехфотонной ионизации атома магния $\sigma_4 = 10^{-105} \text{ см}^8 \text{ с}^3$. Из сопоставления экспериментально измеренных нами сечений со значениями, предсказываемыми нестационарной теорией возмущения, видно их удовлетворительное согласие в пределах ошибки эксперимента.

Представляет интерес провести сравнение измеренных сечений с расчетными величинами, полученными в рамках квазиклассических приближений. Известно, что квазиклассическое приближение позволяет рассчитать сечения многофотонной ионизации высоковозбужденных состояний. В [97,98] в рамках квазиклассики для атома водорода были получены выражения для сечений многофотонной ионизации, а также показано, что полученные результаты согласуются с расчетами, выполненными квантово-механическим способом. В [99], исходя из соотношений, полученных в [97,98], было определено приближенное простое выражение для многофотонного сечения, имеющее вид

$$\sigma_{\text{KT}} = V_k \omega^{-(7K+2) \cdot 3} \cdot (3.9)$$

где ω - частота лазерного излучения (эВ); K - степень нелинейности процесса, V_k - табулированные коэффициенты, различные для линейной и циркулярной поляризации. Так, для линейной поляризации

$$V_k^L \approx 1.2 \cdot (35)^K \cdot 10^{-(31K+16) \cdot [(2K+1)^{2K+1.5}]},$$

а для циркулярной поляризации

$$V_k^0 \approx 1.8 \cdot (41)^K \cdot 10^{-(31K+16) \cdot [(2K+1)^{2K+1.5}]}.$$

Для каждого значения K и ω были вычислены по формуле (3.9) величины сечений многофотонной ионизации. Они приведены в табл 3.6.

Сравнение вычисленных величин с измеренными экспериментально проведено путем вычисления соотношения $\beta = \sigma_{\text{экс}}/\sigma_{\text{т}}$ для каждого случая отдельно. Усреднение величин β для всего диапазона изменений $K+O$ и ω показало, что существует такой единый феноменологический параметр $\beta = 10^{-0,4 \pm 0,7}$, который удовлетворяет всей совокупности данных. Отметим, что эта величина ~ 1 аналогична той величине, которую дает квазиклассика для атома водорода [99]. Таким образом, экспериментально полученные в [24,26,83, 84, 100-102] результаты позволяют сделать заключение, что можно оценивать сечения многофотонной ионизации основных состояний щелочноземельных атомов по квазиклассической формуле (3.9).

Таблица 3.6

Абсолютные значения сечений многофотонной ионизации

Ат.	$\omega, \text{эВ}$	K	$1g\sigma_{\text{Клин}}^{\text{ЭК}}$	ссылки	$1g\sigma_{\text{Клин}}^{\text{T}}$	$1g\sigma_{\text{Кцир}}^{\text{ЭК}}$	$1g\sigma_{\text{Кцир}}^{\text{T}}$
Ba	1,17	5	-140,9±1,1	[99]	-141,1	-141,4±1,1	-140,7
Ba	2,34	3	-78,3±0,4	[83]	-79,4	-78,1±0,4	-79,2
Ca	1,17	6	-173,2±1,2	[84]	-173,3	-173,4±1,2	-172,8
Ca	2,34	3	-79,1±0,5	[89]	-79,4	-79,3±0,5	-79,2
Ca	3,51	2	-46,6±0,5	[102]	-47,9	-	-47,8
Ca	3,7	2	-46,3±0,5	[102]	-48,1	-	-47,1

Обнаружение двухзарядных ионов кальция и магния свидетельствует о том, что характер процесса многофотонной ионизации этих атомов аналогичен характеру процесса многофотонной ионизации других щелочноземельных атомов, а именно бария и стронция.

3.6. Выводы

Таким образом, в данной главе представлены следующие результаты исследований:

- проведены измерения степеней нелинейности процессов образования однозарядных и двухзарядных ионов;
- проведены измерения абсолютных значений сечений нерезонансных процессов образования однозарядных ионов щелочноземельных атомов;
- выполнены специальные измерения абсолютных значений сечений многофотонной ионизации щелочных атомов;
- проведено сопоставление полученных экспериментальных результатов с имеющимися в литературе, а также с теоретическими расчетами и оценками.

Таким образом, на основе вышеприведенных результатов можно сделать следующее заключение:

- процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов носит единый характер, образование двухзарядных ионов наблюдается у всех элементов щелочно-земельной группы;
- оценочные значения отношения вероятности образования двухзарядных ионов к однозарядным, сделанные в рамках первого порядка теории возмущения, отличаются от этих значений, полученных

экспериментально. В случае образования однозарядных ионов значения степеней нелинейности подтвердили реализацию нерезонансных процессов ионизации на используемых частотах лазерного излучения. В случае образования двухзарядных ионов полученные значения степеней нелинейности свидетельствуют в пользу механизма образования двухзарядных ионов из однозарядных в результате ступенчатого механизма;

- соответствие экспериментально полученных нами и другими авторами, а также теоретически рассчитанных величин сечений позволяет утверждать, что для прямых процессов многофотонной ионизации щелочноземельных атомов одноэлектронное приближение нестационарной теории возмущения позволяет достаточно хорошо описать абсолютные значения вероятности одноэлектронной многофотонной ионизации атомов с двумя валентными электронами во внешней оболочке.

Корреляционные эффекты, обусловленные наличием двух валентных электронов во внешней оболочке не проявляются в такой фундаментальной характеристике нерезонансного процесса, как абсолютное сечение многофотонной ионизации щелочноземельных атомов.

Глава IV. Поляризационные зависимости процесса многофотонной ионизации атомов

Характер процесса многофотонной ионизации существенно зависит от поляризации воздействующего излучения. Это обусловлено тем, что система (атом+поле) имеет разную симметрию в полях с различной поляризацией, а поэтому возникает отличие в спектральных характеристиках. Наиболее резко такое отличие проявляется в двух предельных случаях: линейной и циркулярной поляризации излучения. Оптимальным является проведение измерений сравнительной эффективности образования ионов при линейной и циркулярной поляризации света, сохраняя неизменными все остальные параметры, характеризующие свет и атом. В таком эксперименте не возникает необходимости в абсолютных измерениях различных величин, а достоверность результата определяется разбросом отношения сигналов для двух случаев поляризации при неизменной средней интенсивности.

Представляет интерес вопрос: а будут ли результаты, полученные для двухэлектронных (щелочно-земельных) атомов отличаться от результатов, полученных для одноэлектронных (щелочных) атомов? Поэтому данная глава

посвящена исследованию влияния поляризации лазерного излучения на процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов, влияния наличия двух электронов на поляризационные зависимости.

4.1. Влияние поляризации на процесс нерезонансной многофотонной ионизации

Достаточно хорошо известна роль поляризации излучения при многофотонной ионизации щелочных атомов. Она исследована как теоретически, так и экспериментально [2]. Система “атом+поле” имеет разную симметрию в полях различной поляризации. При циркулярной Поляризации каждый последующий переход из S-состояния происходит с увеличением орбитального квантового числа на единицу, так как все фотоны имеют либо правую, либо левую спиральность. В этом случае возможен следующий канал ионизации: $s \rightarrow p \rightarrow d \rightarrow f$. При ионизации линейно-поляризованным излучением возможны переходы как с увеличением, так и с уменьшением орбитального квантового числа, т.к. свет представляет смесь фотонов с противоположными спиральностями. Число каналов, через которые осуществляется многофотонная ионизация, резко увеличивается:

$$s \rightarrow p \rightarrow d \rightarrow f \dots$$

$$s \rightarrow p \rightarrow s \rightarrow \dots$$

$$s \rightarrow p \rightarrow d \rightarrow p \dots$$

Первые теоретические расчеты, в которых отмечались поляризованные особенности многофотонной ионизации, были проведены в начале семидесятых годов [104,110]. В дальнейшем развитие этого вопроса шло в основном по пути уточнения этих результатов и совершенствования теории расчетов с использованием различных моделей процесса [111-114]. В дальнейшем изложении этого вопроса будем следовать работе [85].

С учетом поляризационных особенностей, в пренебрежении мультипольной структурой в возбужденных состояниях, вероятность K-фотонной ионизации описывается соотношением:

$$W_{k_0}^{(0)} = \left(\omega \frac{F}{F_0}\right)^{k_0} |T^{k_0}, k_0 - 1, \dots, 2| \frac{2\pi K_0!}{(2K_0 + 1)!!} \quad , (4.1)$$

для циркулярного света и

$$W_{k_0}^{(1)} = 2\pi(\omega \frac{F}{F_0})^{k_0} \sum \frac{1}{2L+1} C^L(l_2, \dots, l_{k_0}) C^L(l_2, \dots, k_{k_0-1} T_L, \dots, l_2 T_L^*, \dots, l_2) \quad , (4.2)$$

для линейно-поляризованного света, где $CL(l_2, \dots, l_{k_0-1})$ - символ Кронекера; $F = c\epsilon_0 E^2 [8\pi h \omega$ — интенсивность излучения в $\text{см}^{-2} \text{сек}^{-1}$; $F_0 = c [2\pi a_0^3 = 3,22 \cdot 10^{34} \text{ см}^{-2} \text{сек}^{-1}$ - атомная единица интенсивности излучения; $T_{L, l_{k_0-1}, \dots, l_2}$ - радиальный составной матричный элемент.

В (4.2) суммирование идет по всем возможным наборам T_{L, \dots, l_1} .

Важной характеристикой процесса многофотонной ионизации является отношение вероятностей $\mu_{k_0} = W_{k_0}^0 / W_{k_0}^1$. Как показывают численные расчеты, для большинства частот в сумме (4.2) максимальным является матричный элемент $T_{L, L-1, \dots, 2}$. Опуская в (4.2) остальные члены, имеем для μ_{k_0} следующую оценку [104]

$$\mu_{k_0}^{\max} = \frac{(2K_0 - 1)!!}{K_0!} \quad , (4.3)$$

Следовательно, для большинства частот в межрезонансном промежутке истинное отношение μ_{k_0} должно быть близко к величине, даваемой формулой (4.3).

Следует помнить, однако, что отношение (4.3) дает верхнюю границу для μ_{k_0} и в ряде случаев может нарушаться. Во-первых, при ω , когда $W_{k_0}^0 \sim 0$, а $W_{k_0}^1 \neq 0$, при учете членов с $L < K_0$ в сумме (4.2). Во-вторых, при определенных частотах $W_{k_0}^0$ может иметь промежуточные n - фотонные резонансы на уровнях с орбитальным моментом $1 < n$, которые в $W_{k_0}^0$ не проявляются. При этом $W_{k_0}^0 > W_{k_0}^1$. С увеличением K вероятность таких почти резонансных ситуаций возрастает (исключением является атом водорода, где резонансы $W_{k_0}^0$ и $W_{k_0}^1$ совпадают). Кроме того, при больших K_0 число матричных элементов, опущенных в (4.2) быстро растет и суммарный вклад начинает превышать $T_{L, k_0-1, \dots, 2}$ при $K_0 \mu 5$. Таким образом, оценка (4.3) качественно справедлива лишь при малых K_0 . В случае же больших K_0 эффективность ионизации линейно-поляризованным светом становится больше $W_{k_0}^0$ в качественном согласии с квазиклассическим рассмотрением.

Ряд расчетов поляризационного эффекта представлен в работах [111-117], на них мы останавливаться не будем, так как их результаты качественно согласуются с предыдущими.

Как показали исследования, для прямого нерезонансного процесса многофотонной ионизации из основного S-состояния щелочных атомов, описываемых LS-связью, выполняется соотношение [104]:

$$\mu = \frac{(2K_0 - 1)!!}{K_0!} \approx \frac{1}{\sqrt{\pi K_0}} 2^{k_0}, \quad (4.4)$$

которое показывает, что циркулярный свет эффективнее линейного. Последнее соотношение в (4.4) написано на основе формулы Стерлинга для факториалов при $K_0 \gg 1$ [106]. Это соотношение дает верхнюю границу отношения и справедливо для небольших значений K_0 .

Следует иметь в виду, что вывод соотношения (4.4) был основан на трех предположениях:

- 1) атом описывается в одноэлектронном приближении;
- 2) в линейно-поляризованном поле доминируют матричные элементы, которые соответствуют одновременному увеличению главного и орбитального квантовых чисел на единицу при поглощении каждого фотона;
- 3) взаимодействие излучения с атомом является дипольным.

В работе [85], по многофотонной ионизации щелочных атомов было показано, что соотношение (4.4) справедливо для степеней нелинейности $K \leq 4$, в частотном диапазоне, исключаящем так называемые "окна нелинейной прозрачности" [107], и частот, на которых возможны резонансы только в линейно-поляризованном излучении.

Интересно рассмотреть роль поляризации излучения при прямом процессе многофотонной ионизации щелочноземельных атомов. В этом случае возникает более сложная ситуация, обусловленная более богатым спектром атомов, перемешивание конфигураций, вызванное эффектами взаимодействия внешних электронов. Как показали эксперименты [15,26,105], в случае многофотонной ионизации щелочноземельных атомов возникают промежуточные резонансы не только с синглетными, но и одноэлектронными триплетными, а также двухэлектронными синглетными и триплетными состояниями.

4.2. Особенности постановки эксперимента

Эксперименты осуществлялись по общепринятой методике. Предварительно измерялись функциональные зависимости амплитуды ионного сигнала от интенсивности лазерного излучения. Далее выбиралось такое значение интенсивности, для которого выполняется условие $\int_0^T dWdt \ll 1$, чтобы избежать влияния эффектов, связанных с насыщением ионного сигнала. Потом при фиксированном значении энергии лазерного излучения определялся выход ионного сигнала при различной степени эллиптичности света. Для каждого значения степени эллиптичности амплитуда ионного сигнала многократно измерялась в каждой серии, что обеспечивало хорошую точность измерений.

Для проведения исследований использовалось излучение второй гармоники лазера на иттрий-алюминиевом гранате. Преобразование основной частоты излучения в удвоенную осуществлялось с помощью монокристалла дигидроарсенита цезия (CDA), предназначенного для удвоения частоты неодимового лазера (YAG:Nd³⁺) с модуляцией добротности.

Известно, что коэффициент преобразования основной частоты в удвоенную зависит от температуры и ориентации кристалла. Поэтому были проведены специальные опыты для выбора оптимальной температуры синхронизма преобразователя. С этой целью кристалл CDA подогревали, используя ультратермостат. Излучение удвоенной частоты отделялось от основной цветным светофильтром СЗС-21, в каждой серии импульсов измерялась энергия лазерного излучения. Было обнаружено, что максимальный коэффициент преобразования основной частоты во вторую гармонику соответствовал 25% при температуре синхронизма $t^{\circ} = 45,6^{\circ}\text{C}$. Для проведения экспериментов была зафиксирована ориентация кристалла CDA в пространстве, а оптимальная температура синхронизма поддерживалась постоянной. При этом погрешность поддержания температуры синхронизма не превышала $\pm 0,1^{\circ}\text{C}$.

Параметры используемого излучения были следующие: энергия в импульсе $-3 \cdot 10^{-3}$ Дж, длительность импульса на полувысоте $\sim 1,2 \cdot 10^{-2}$ с, абсолютная величина частоты излучения, измеренная с помощью автоколлимационной трубы УФ-90, -18790 см^{-1} . Регистрация спектра осуществлялась в четвертом дифракционном порядке (использовалась от-

ражательная реплика с 300 шт[мм). Дисперсия составляла величину ~ 3 А[мм, что более чем на порядок превышает значение инструментального контура данной оптической системы. Калибровка спектрографа осуществлялась по линиям ртутной и натриевой ламп. Ошибка абсолютной калибровки не превышала 1 А. Напряженность электромагнитного излучения в фокусе, определенная по энергетическим и пространственно-временным характеристикам, составляла $\sim 3 \cdot 10^6 \text{ В см}^{-1}$.

4.3. Зависимости образования однозарядных ионов щелочноземельных атомов от поляризации лазерного излучения

Как уже отмечалось, предварительно измерялись функциональные зависимости выхода ионов исследуемых атомов от энергии лазерного излучения. Функциональная зависимость выхода трехфотонной ионизации атома бария от энергии лазерного излучения была измерена нами ранее и представлена в работе [23].

Экспериментально измеренные численные значения степеней нелинейности $K^+_{\text{ЭКС}} = \delta \lg N^+ / \delta \lg Q$ совпадают с числом фотонов, поглощение которых необходимо для ионизации. Так, в случае ионизации линейно-поляризованным излучением с частотой $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$ атомов кальция $K^+_{\text{ЭКС}} = 2,8 + 0,4$ ($K_0 = 3$), атомов бария - $K^+_{\text{ЭКС}} = 2,7 + 0,4$ ($K_0 = 3$), атомов магния - $K^+_{\text{ЭКС}} = 3,8 + 0,5$ ($K_0 = 4$). Аналогичные результаты были получены и для циркулярно поляризованного излучения. Сопоставление невозмущенных спектров атомов кальция, бария и магния с энергией нескольких фотонов показало, что расстройки между состояниями перехода, которые разрешены по правилам отбора, и энергией двух- и трех- фотонов, значительны (порядка $\sim 10^2 - 10^3 \text{ см}^{-1}$). Оценки возмущения, выполненные с использованием данных для динамических поляризуемостей атомов кальция, бария и магния [49,88] в полях $\sim 3 \cdot 10^6 \text{ В см}^{-1}$, дают величины максимального изменения энергии перехода порядка десятков см^{-1} .

Таким образом, экспериментально измеренные функциональные зависимости выхода однозарядных ионов кальция, бария и магния от энергии лазерного излучения и проведенный анализ возмущения атомных спектров, позволяют утверждать, что на частоте излучения второй гармоники

неодимового лазера $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$ реализуются прямые нерезонансные процессы ионизации атомов кальция, бария и магния.

Далее, выбрав интенсивность лазерного излучения, при которой не сказываются эффекты насыщения ионного сигнала ($\varepsilon \sim 10^6 \text{ В см}^{-1}$), были измерены зависимости амплитуды ионных сигналов от степени эллиптичности света, а также отношения амплитуд однозарядных ионов кальция, бария и магния при циркулярной и линейной поляризациях излучения.

На рис. 4.1-4.3 приведены экспериментально измеренные зависимости $N+(\psi)$ для трехфотонной ионизации атомов кальция, бария и четырехфотонной ионизации атома магния. Наблюдается слабая зависимость от поляризации излучения, причем линейный свет либо эффективнее циркулярного, либо оказывает такое же действие, что и циркулярный свет. Экспериментально измеренные значения отношений амплитуд ионных сигналов, эквивалентные отношениям вероятностей ионизации, а также величины, ожидаемые по соотношению (4.4), представлены в табл 4.1.

Таблица 4.1

Численные значения отношений сечений при циркулярной и линейной поляризациях излучения

Атом	$\omega, \text{ см}^{-1}$	K_0	$\mu \text{ экс}$	$\mu \text{ Кларц.}$
Ca	18790	3	0.55+0,15	2,5
Ba	18790	3	0,4+0,0,2	2,5
Mg	18790	4	1,1+0,3	4.3

Из табл 4.1 видно, что отношение вероятностей процессов трех- и четырехфотонной ионизации атомов кальция, бария и магния при циркулярной и линейной поляризациях излучения меньше или равны единице ($\mu \leq 1$).

4.4. Зависимости образования однозарядных ионов щелочных атомов от поляризации излучения

В настоящем параграфе описываются эксперименты по измерению зависимости сечения четырехфотонной ионизации атома калия от степени эллиптичности излучения лазера на основе иттрий-алюминиевого граната с примесью ионов неодима.

Экспериментальные исследования поляризационных эффектов в щелочных атомах были начаты в середине семидесятых годов [172, 173]. Опыты относились к двух- и трехфотонной ионизации атома цезия излучением рубинового лазера и его второй гармоники.

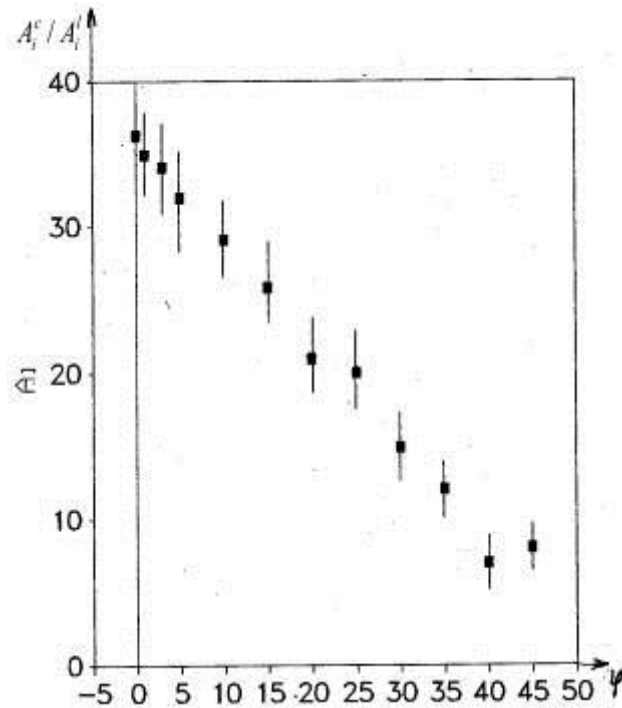


Рис.4.1. Зависимость образования однозарядных ионов Ва от поляризации лазерного излучения: $\psi = 45^\circ$ линейно-поляризованный свет, $\psi = 0^\circ$ циркулярно-поляризованный свет

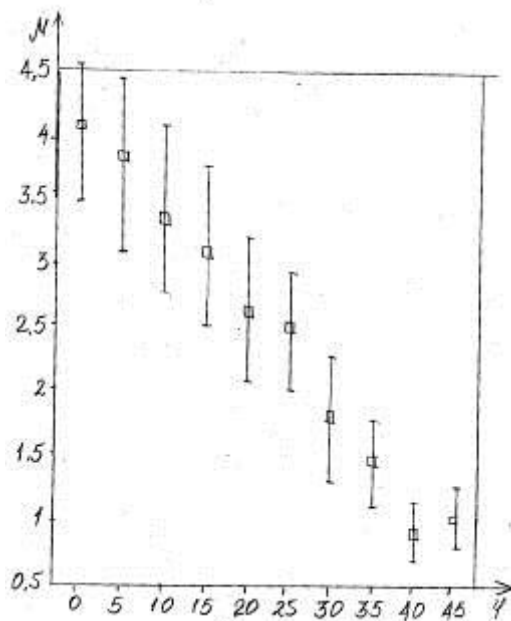


Рис.4.2. Зависимость образования однозарядных ионов Са от поляризации лазерного излучения

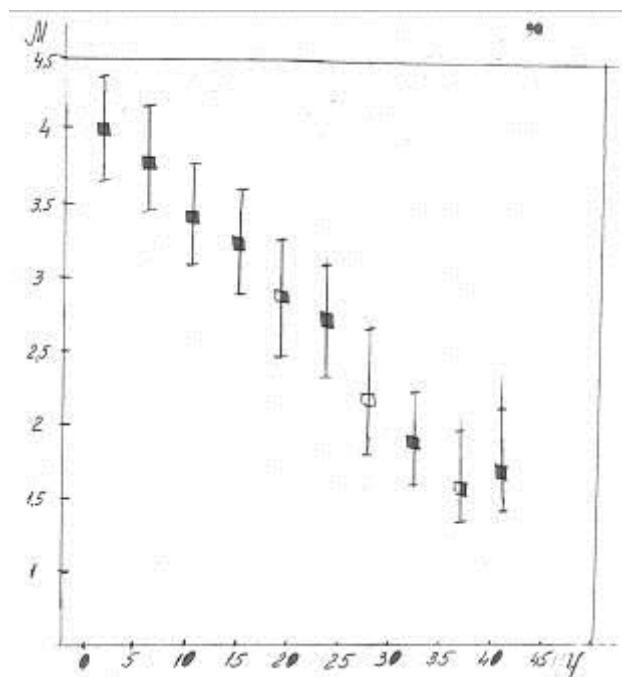


Рис.4.3. Зависимость образования однозарядных ионов Mg от поляризации лазерного излучения

Хотя эти исследования проводились на нескольких выделенных частотах, но и при этом дали достаточно ценные результаты. Главное, что эти эксперименты подтвердили правильность предположения о существенной разнице в ионизации между светом линейной и циркулярной поляризации. В последующем эксперименте [174] величина μ_{ko} измерялась для процессов с $K_0 = 2-5$ на частотах неодимового лазера и его второй гармоники при ионизации атомов калия и натрия.

В табл 4.2 приведены результаты этих экспериментов и данные для μ_{ko} по соотношению (4.3). Мы сочли целесообразным провести для случая четырехфотонной ионизации атома калия более информативный эксперимент по измерению зависимости сечения от степени эллиптичности излучения. Такая зависимость должна определяться матричным элементом $T_{L,L-1,\dots,2}$

Таблица 4.2

Отношение сечений ионизации при циркулярной и линейной поляризациях лазерного излучения

Атом	" ω , ЭВ	K o	μ экс	ссылка	μ теор
Цезий	3,56	2	1,28±15:	[174]	1 5
Калий	2,36	2	1,20+30:	[174]	1 5

Калий	2,36	2	1,20±30.	[174]	1 5
Цезий	1,78	3	2,24±5 :	[173]	2 5
Натрий	2,36	3	0,42±20:	[174]	2 5
Калий	1,18	4	1,67±30:	[174]	4 37

В случае, когда имеет место нерезонансный процесс ионизации и выполняется степенной закон $W \sim F_{\text{ко}}$, измеряемое отношение должно быть равно отношению сечений. С учетом этого эксперименты осуществлялись в следующей последовательности. Сначала измерялась функциональная зависимость амплитуды сигнала от энергии лазерного излучения. Выбиралось определенное значение энергии, при которой выполняются указанные выше условия. Для выбранного значения энергии излучения проводилось измерение ионных сигналов для различной степени эллиптичности лазерного излучения, включая предельные случаи линейно поляризованного и циркулярно поляризованного излучения. Для линейной и циркулярной поляризаций излучения измерения амплитуд ионных сигналов в каждой серии опытов проводились попеременно и многократно, что обеспечивало хорошую точность измерений. Рассмотрим теперь некоторые вопросы, связанные с постановкой эксперимента. Конструктивно лазер состоит из трех отдельных модулей: генератора и двух усилительных каскадов. В качестве рабочих модулей использовались излучатели серийного лазера марки "ЛТИПЧ". Параметры лазерного излучения были следующие - энергия в импульсе $\sim 0,05$ Дж, длительность импульса по полувысоте $\sim 10^{-8}$ с, абсолютная величина центральной частоты спектра излучения ~ 9395 см⁻¹, ширина спектра излучения по полувысоте не более $\sim 0,5$ см⁻¹. Увеличение интенсивности излучения осуществлялось фокусировкой света линзой с фокусным расстоянием $f=125$ мм.

Для получения от лазера излучения с линейной поляризацией в пучок света от лазера помещался поляризатор Глана-Фуко (в модификации Арчарда-Тейлора) [176-178]. Для всех используемых поляризаторов величина $I_{\text{зак}}/I_{\text{отк(контр)}}$ была не хуже 10^{-2} . Помещение такого поляризатора в световой пучок света от лазера должно обеспечивать получение линейно-поляризованного света с контрастом 10^{-2} .

Преобразование линейно-поляризованного излучения в циркулярно поляризованное осуществлялось фазовой пластинкой " $\lambda/4$ ", изготовленной из кристаллического кварца. Изменение оптической толщины фазовой пластинки осуществлялось путем изменения ее наклона по отношению к падающему свету

или изменением ее температуры. После установки фазовой пластинки в рабочее положение ее температура поддерживалась неизменной с точностью до $0,5^{\circ}\text{C}$ (использовался ультратермостат). Точность установления циркулярной поляризации определялась по результатам измерений энергии светового излучения, прошедшего через поляризатор при двух взаимно перпендикулярных его положениях. В этом случае предельная погрешность измерения, согласно паспортным данным измерительного прибора, не превышает 4 %. Наличие конечной спектральной ширины у лазерной линии, по расчетам, может вносить погрешность масштаба долей процента.

Надо отметить следующее обстоятельство: при неизменной интенсивности излучения амплитуда светового поля при линейной и циркулярной поляризации различна. В силу этого сопоставление данных эксперимента и теории должно проводиться для одинаковых значений интенсивности, как это имеет место в эксперименте. Непосредственный результат эксперимента был представлен в виде зависимости амплитуды сигнала образованных ионов от энергии лазерного излучения при линейной поляризации света. Диапазон интенсивностей подобран так, что можно достаточно четко выделить область вдали от насыщения. Численное значение величины K для прямолинейного участка составляет величину $4,18 \pm 0,36$, т.е. практически равно величине $K_0 = 4$. Аналогичный результат имеет место и при использовании циркулярной поляризации света. Таким образом, можно утверждать, что на частоте излучения равной 9395см^{-1} для линейной и циркулярной поляризации имеет место прямая четырехфотонная ионизация атома калия.

Зависимость амплитуды сигнала от параметра эллиптичности воздействующего излучения представлена на рис.4.4. Видно, что при изменении параметра эллиптичности от циркулярного ($\psi = 0^{\circ}$) к линейному ($\psi = 45^{\circ}$) амплитуда плавно уменьшается. Максимальное значение соответствует циркулярной поляризации и имеет величину

$$\mu_{\text{экс}} = A_i^0 / A_i^1 = 3,9 \pm 0,8.$$

Еще раз подчеркнем, что измеряемое отношение амплитуд ионных сигналов равно отношению сечений ионизации. Рассмотрим теперь отношение сечений. Качественно данные нашей работы согласуются с результатом, полученным в работе [174], в обоих случаях свет циркулярной поляризации

является для ионизации более эффективным, чем свет с линейной поляризацией.

Как показывают расчеты, в широком интервале частот матричный элемент T4321 доминирует, так что величина $\mu(\psi)$ имеет вид:

$$\mu_{ko}(\psi) = 1/8(35 - 30\sin^2 2\psi + 3\sin^4 2\psi) \quad (4.5)$$

Здесь $\psi = 0^\circ$ - соответствует циркулярной поляризации, а $\psi = +45^\circ$ - линейной.

Экспериментальная и теоретическая зависимости $\mu_4(\psi) = A_4^0 / A_4^1$ представлены на рис.4.5, из которого видно, что расчет хорошо описывает зависимость вероятности четырехфотонной ионизации от степени эллиптичности излучения. Измеренная величина $\mu_{\text{эксп}} = 3,9 \pm 0,8$ хорошо согласуется как со значением $\mu_4 = 4,37$, получаемым по формуле (4.3), так и со значением $\mu_4 = 4,3$, получаемым по расчету (4.5).

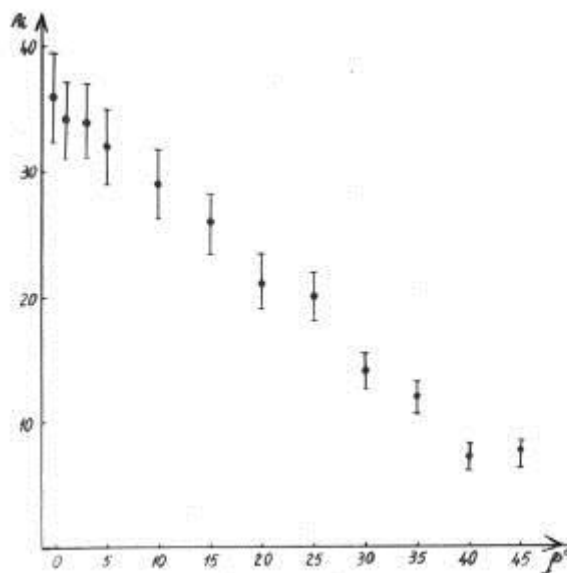


Рис.4.4. Зависимость амплитуды сигнала ионов калия от эллиптичности излучения, где $\rho = 45^\circ$ линейно поляризованный свет; $\rho = 0^\circ$ - циркулярно поляризованный свет (значения A_i в относительных единицах)

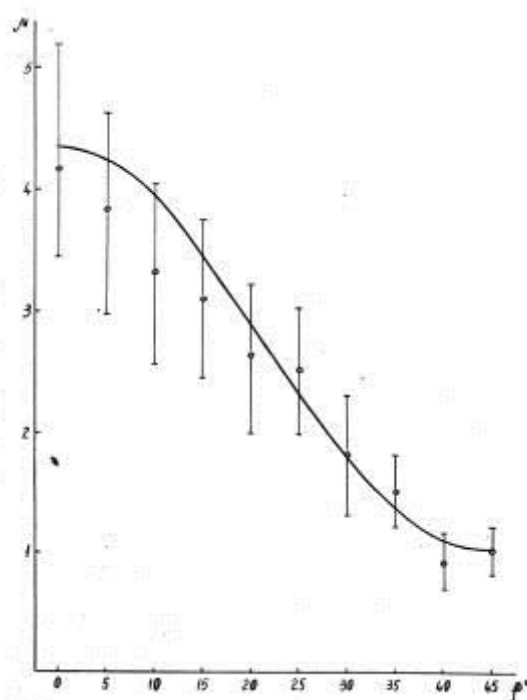


Рис..4.5. Зависимость величины $\mu_4(\psi)$ от степени эллиптичности: сплошная кривая - теоретический расчет, точками отмечены экспериментальные значения; кривые совмещены в точке $\psi = 45^\circ$.

Резюмируя, можно утверждать, что на данном примере четырехфотонной ионизации атома калия на длине волны 9395 см^{-1} обнаружено хорошее согласие наблюдаемой и рассчитанной зависимости многофотонного сечения от поляризации излучения. Этот вывод служит хорошим аргументом в пользу метода модельного потенциала, который был использован и в расчетах, результаты которых были приведены выше, и в работе [170].

Однако надо иметь в виду, что этот вывод требует проверки на других частотах излучения и на примере других атомов. Действительно, в большом числе других случаев, исследованных экспериментально, во-первых, измеренная величина μ существенно отличается как от оценки величины $\mu_{\text{экс}}$ по соотношению (4.3), так и от величины $\mu_{\text{ко}}$, следующей из расчетов методом модельного потенциала [85,168, 171].

4.5. Сопоставление полученных результатов и анализ поляризационных зависимостей

Как уже упоминалось ранее, при исследовании поляризационных зависимостей выхода однозарядных ионов бария на частоте $\omega = 18870 \text{ см}^{-1}$ [26],

кальция на частоте $\omega = 18916 \text{ см}^{-1}$ [105] и стронция на частоте $\omega = 18832 \text{ см}^{-1}$ [35] было обнаружено, что только в случае трехфотонной ионизации атомов стронция [20] отношение вероятностей ионизации при циркулярной и линейной поляризациях совпадает со значением, получаемым из соотношения (4.4), а именно $\mu = 2,5 + 0,4$.

Согласно дисперсионным характеристикам, приведенным в работах [15,20], на используемой нами частоте $\omega = 18790 \text{ см}^{-1}$ и частотах, указанных выше, при трехфотонной ионизации реализуются нерезонансные процессы. Если сопоставить результаты, полученные в данной работе с величинами μ из работы [15] ($\mu_{\text{экс}}(\text{Ba}) = 0,7 + 0,2$ и $\mu_{\text{экс}}(\text{Ca}) = (0,03 + 0,05)$), то видно их качественное соответствие. Для трехфотонной ионизации атомов кальция разница в значении величин отношений вероятностей существенна. Связано это с различием в вероятностях образования однозарядных ионов кальция на указанных частотах, которое прослеживается на дисперсионной кривой, приведенной в работе [15].

Сравним теперь полученные результаты с теоретическими расчетами, выполненными с использованием нестационарной теории возмущений в одноэлектронном приближении.

Согласно утверждению, сделанному в работе [49], при прямом процессе многофотонной ионизации щелочноземельных атомов должно выполняться соотношение (4.4). Но следует иметь в виду, что в этой работе принимались во внимание только дипольные переходы между термами одной мультиплетности. В то время как экспериментальные работы [15,28] показали резонансные максимумы, соответствующие переходам в спектре щелочноземельных атомов как в возбужденные триплетные, так и двухэлектронные и автоионизационные состояния. Причем амплитуды резонансов, наблюдаемых в этих работах, примерно одинаковы. Поэтому можно сказать, что утверждение, сделанное в работе [49] для щелочноземельных атомов, не учитывает всех реальных условий.

Полученные нами экспериментальные данные о поляризационных зависимостях прямых процессов многофотонной ионизации атомов находятся в противоречии с соотношением (4.4) и не носят систематический характер - наблюдаются величины μ как меньше, так и порядка единицы.

Представляет очевидный интерес сравнить результаты, полученные нами для щелочноземельных и щелочных атомов. Из сравнения результатов, представленных в табл 4.1 и 4.2 видно, что если для щелочных атомов циркулярный свет всегда эффективнее линейного, то по отношению к щелочноземельным атомам подробного утверждения сделать нельзя. Одной из возможных причин такого поведения могут быть корреляционные эффекты, обусловленные наличием двух электронов во внешней оболочке.

Для получения полного объема информации о влиянии поляризации на процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов необходимо и экспериментально, и теоретически выделять конкретные ситуации, т.е. изучать влияние каждого возбужденного состояния на поляризационные зависимости. Очевидно, только таким путем можно будет понять зависимость вероятности многофотонной ионизации щелочноземельных атомов от поляризации излучения.

4.6. Выводы

В данной главе представлены следующие результаты исследований:

- зависимость образования однозарядных ионов таких щелочноземельных атомов, как барий, кальций и магний от поляризации излучения при процессах трех- и четырехфотонной ионизации;
- зависимость образования однозарядных ионов атомов калия при четырехфотонной ионизации от степени эллиптичности лазерного излучения;
- анализ и сравнение полученных результатов с оценочными величинами и расчетами, выполненными в первом исчезающем порядке нестационарной теории возмущения.

Таким образом, полученные нами экспериментальные результаты, описанные в данной главе, позволяют утверждать, что факториальное соотношение (4.4) не описывает зависимости вероятности многофотонной ионизации щелочноземельных атомов от поляризации лазерного излучения. Одной из причин отклонения от одноэлектронного приближения нестационарной теории возмущений может быть перемешивание конфигураций [109].

Глава V. Интеркомбинационные переходы в щелочноземельных атомах

5.1. Экспериментальная установка, используемая для проведения экспериментов по резонансной многофотонной ионизации

Для проведения экспериментов по исследованию процессов трехфотонной резонансной ионизации щелочноземельных атомов была создана лазерная установка с перестройкой частоты. Два лазера на красителе накачивались соответственно третьей и второй гармоникой излучения лазера на иттрий-алюминиевом гранате. Конструктивно лазер на гранате состоял из трех модулей: задающего генератора, излучающего в основной поперечной моде, выделяемой диафрагмой, помещенной в резонатор, и двух каскадов усиления. В качестве рабочих модулей использовались излучатели серийного лазера ЛТИПЧ5 (генератор), ЛТИПЧ8 (два каскада усиления). Выходные параметры излучения лазера на гранате после двух каскадов усиления были следующие: энергия в импульсе $Q \sim 0,15$ Дж, длительность импульса на полувысоте $\tau \sim 15$ нс, что соответствует мощности $P \sim 10$ МВт. Преобразование излучения основной частоты во вторую и третью гармонику осуществлялось в нелинейных кристаллах KDP с углами синхронизма 4-Г (ооо-синхронизм) и 57° (еое-синхронизм). Перестройка в желто-зеленой области спектра (570-540 нм) на красителе родамин незамещенный производилась лазером ЛЖИ-504 с накачкой второй гармоникой ИАГ - лазера. Импульсная мощность излучения составляла 50 кВт, длительность импульса излучения на полувысоте 12 нс, спектральная ширина линии генерации 0,08 нм. Для перестройки в зелено-синей области спектра (540-4-20 нм) на красителях кумарин 7,30, 47, 120 использовался самодельный лазер, прототипом которого послужила схема, предложенная в работе [70]. В нашей схеме была взята реплика дифракционной решетки шириной 50 мм с 1800 шт/мм. Дифракционная эффективность этой решетки в диапазоне длин волн 440-520 нм близка к максимальной и составляла 40-45%. Сканирование длины волны осуществлялось поворотом зеркала вокруг вертикальной оси.

Атомарной мишенью в наших экспериментах служил эффузионный пучок атомов. Достоинством эффузионного пучка является возможность расчета интенсивности пучка по известной геометрии источника [72,73]. Образовавшиеся в области пересечения атомного и лазерного пучков ионы разделялись по массе и заряду во время пролетном масс-спектрометре (ВПМС) и детектировались вторично-электронным умножителем ВЭУ-2Б.

5.2. Особенности спектров атомов Ca, Ba и Sr

Для исследования спектра атома Ca в промежуточной области энергий $38500-47100 \text{ см}^{-1}$ использовались четыре разных красителя "Кумарин" с номерными индексами 7, 30, 47 и 120. Таким образом, перекрывался диапазон длин волн от 520 до 425 нм, что соответствует интервалу частот 8600 см^{-1} . Красители подбирались так, чтобы их спектральные области люминесценции перекрывались. Это позволило пройти указанный диапазон энергий без "окоп" и скорректировать результаты, полученные на крыльях люминесценции красителей.

Непосредственным результатом проведенного эксперимента явились зависимости ионного сигнала Ca^+ от длины волны лазерного излучения. На рис. 5.1 и 5.2 приведены полученные ионизационные спектры атома Ca при линейной поляризации лазерного излучения. По горизонтали отложена длина волны, приведенная к вакууму, по вертикали - логарифм амплитуды ионного сигнала. Ширины резонансов определялись приведенной шириной спектра лазерного излучения. Напряженность электрического поля, воздаваемого лазерным излучением, не превышала $3 \cdot 10^4 \text{ В см}^{-1}$. В таком поле возмущение атомного спектра в исследуемой области энергий пренебрежимо мало. Это позволяет для идентификации резонансов пользоваться известными значениями энергий невозмущенных уровней [87a].

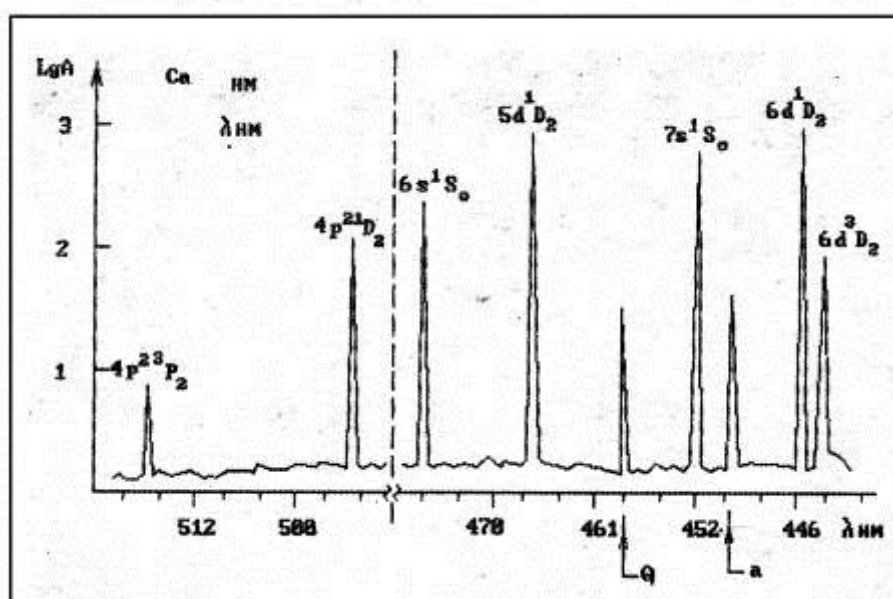


Рис.5.1. Участок спектра атома Ca, полученный методом многофотонной ионизационной спектроскопии. О, - однофотонный квадрупольный переход $4s^2\ ^1S_0 - 4s3d^2\ ^1D_2$, а - однофотонный переход $4s4p\ ^1P_1 - 4s8s\ ^1S_0$.

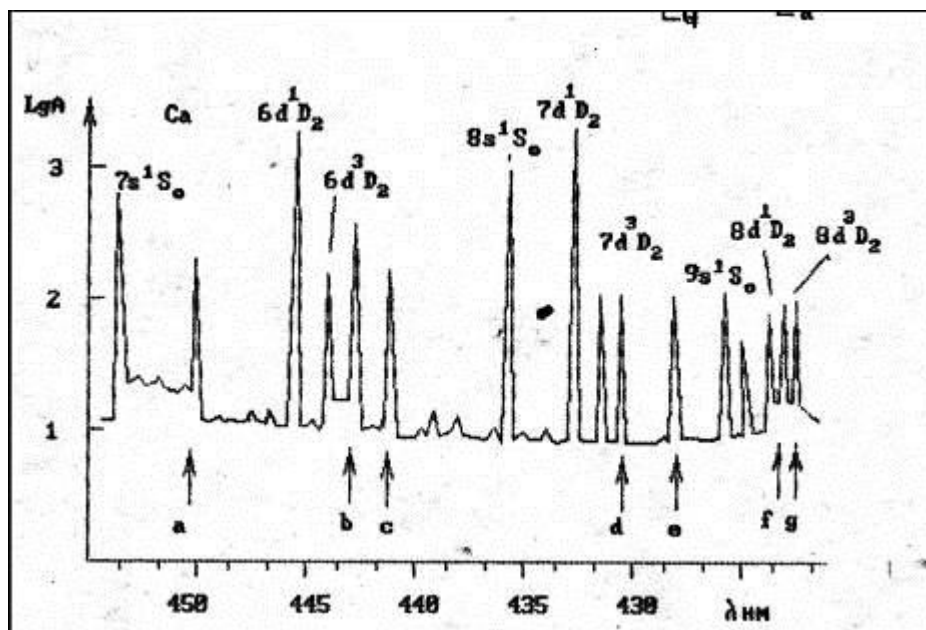


Рис.5.2. Продолжение ионизационного спектра атома Ca в сторону больших n . Буквами а, в, с, d, е обозначены резонансы, соответствующие однофотонным переходам $4s4p^1P_1^0 - 4s8s^1S_0$, $4s7d^1D_2$, $4s7d^3D_2$, $4s9s^1S_0$, $4s8d^1D_2$; f, g - неидентифицированные резонансы

Обозначения уровней, с которыми наблюдались двухфотонные резонансы, приведены на рис.. 5.1 и 5.2 в классификации L-S -связи. Буквами а, б, с, d, е обозначены однофотонные резонансы, соответствующие переходам из возбужденного состояния $4s4p^1P_1^0$ в состояние $4s8s^1S_0$ (а), - $4s7d^1D_2$ (б), $4s7d^3D_2$ (с), $4s9s^1S_0$ (d) и $4s8d^1D_2$ (е). Состояние - $4s4p^1P_1^0$ заселялось суперлюминесценцией красителя. Это позволяло наряду с двухфотонными резонансами наблюдать и однофотонные. На зависимости, изображенной на рис..5.2 нулевой уровень поднят, что, естественно, связано с возбуждением уровня $4s4p^1P_1^0$ суперлюминесценцией.

Измеренные нами энергии уровней совпадают со значениями энергий в таблицах [87а] за исключением двух случаев. Для состояния $4s7d^1D_0$ мы получили значение энергии $46199,8 \pm 0,5 \text{ см}^{-1}$, которое на 110 см^{-1} меньше значения из таблиц [87а], но совпадает в пределах экспериментальной ошибки с результатами работы [62]. Два резонанса на длинах волн 425,54 и 425,09 нм, обозначенных на рис..5.2 буквами і и g, не удалось соотнести ни с одним известным связанным состоянием [87а] или автоионизационным состоянием

с $J = 1$ [39]. Экспериментальных данных об автоионизационных состояниях с $J > 1$ автору неизвестно.

На длине волны $\lambda = 457,57$ нм нами зарегистрирован резонанс, который мы идентифицировали как однофотонный переход из основного состояния $4s^2\ ^1S_0$ в состояние $4s3d\ ^1D_2$. Указанный переход является квадрупольным и на рис. 5.1 резонанс, соответствующий этому переходу, обозначен буквой Q. Как видно, его амплитуда всего в 30 раз меньше амплитуды ближайших двухфотонных дипольных переходов. Амплитуда резонанса Q в циркулярно поляризованном излучении в 10 раз меньше, чем в линейно поляризованном излучении той же интенсивности.

Резонанс с триплетным состоянием $4s5d\ ^3D_2$ нами не наблюдался. Амплитуда резонанса с триплетным состоянием $4s6d\ ^3D$ всего на порядок меньше амплитуды резонанса с синглетным состоянием $4s6s\ ^1D$. И далее, с возрастанием n , относительная амплитуда резонансов с триплетными состояниями увеличивается.

Исследование промежуточной области энергий $36190\text{--}44800\text{ см}^{-1}$ спектра атома Sr проводилось с использованием красителей "родамин незамещенный" и "кумарины" 7, 30, 47. Плавной перестройкой перекрывался спектральный диапазон от 570 до 445 нм. Ширина линии генерации для "родамина незамещенного" составляла 0,08 нм, для "кумарины" - 0,03 нм. Полученные в эксперименте ионизационные спектры атома Sr показаны на рис. 5.3, 5.4, 5.5. С изменением длины волны наблюдалось резонансное увеличение ионного сигнала в ряде случаев более, чем на три порядка величины. Напряженность электрического поля, создаваемого сфокусированным лазерным излучением, не превышала $3 \cdot 10^4\text{ В см}^{-1}$. Это позволяло проводить идентификацию резонансов по таблицам энергий уровней [876], не учитывая возмущение уровней.

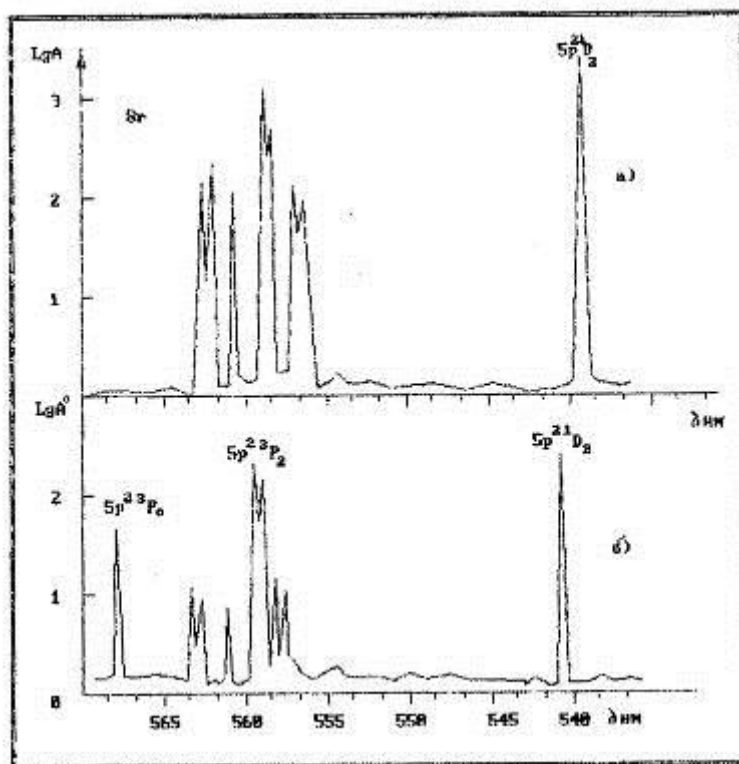


Рис.5.3. Участок ионизационного спектра атома Sr, полученный а) при циркулярной поляризации, б) при линейной поляризации излучения. Необозначенные резонансы неидентифицированы.

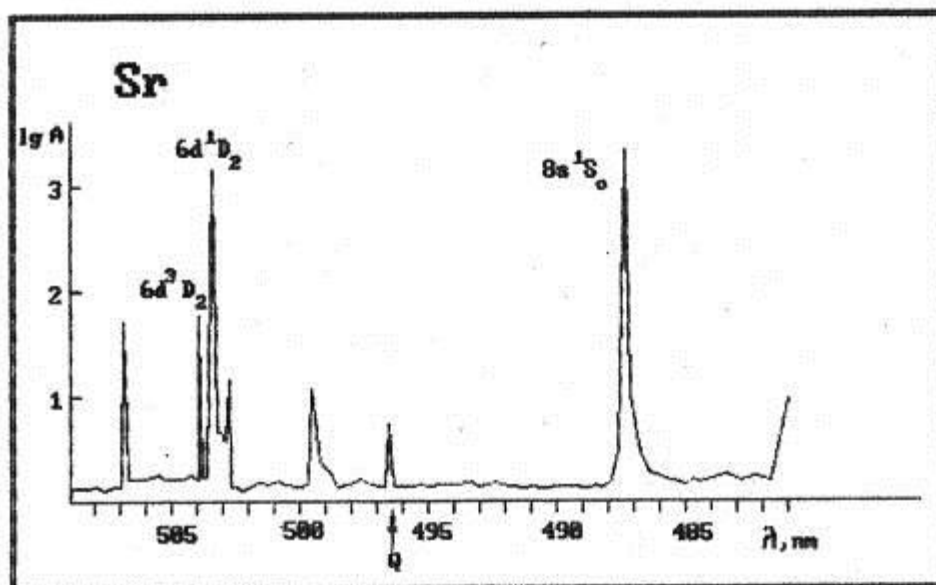


Рис.5.4. Участок ионизационного спектра атома Sr. Поляризация линейная.

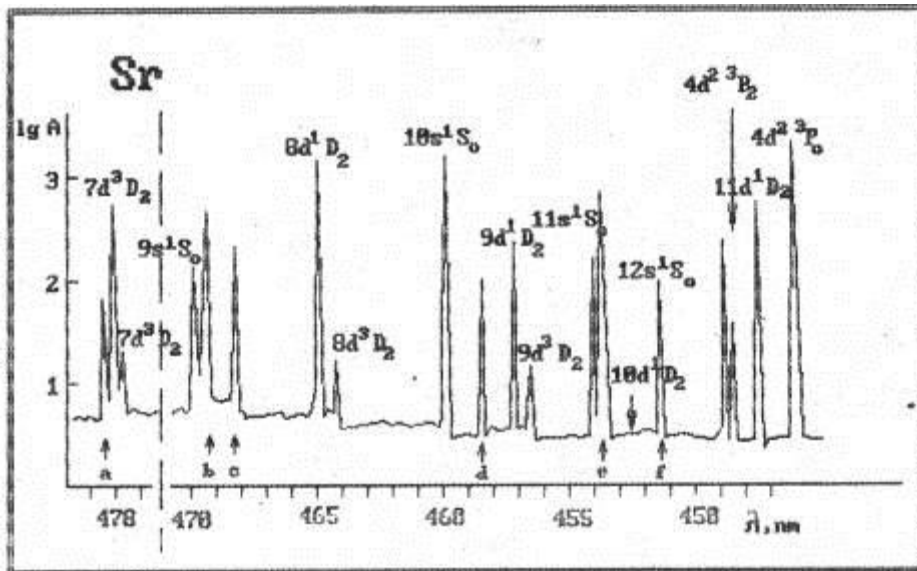


Рис.5.5. Продолжение ионизационного спектра атома Sr в сторону больших n . Поляризация излучения линейная. Буквами а.в.с.d.e.f обозначены резонансы, соответствующие однофотонным переходам $5s5p^1p_1^0 - 5s9s^1S_0, 5s8d^1D_2, 5s8d^3D_2, 5s10s^1S_0, 5s9d^1D, 5s9d^3D_2$

Резонансы, обозначенные спектральными символами $^{2s+1}L_j$, соответствуют двухфотонным переходам из основного состояния $5s^2^1S_0$ в указанные символами возбужденные состояния. Резонансы, обозначенные буквами а, б, с, d, е, f, обусловлены однофотонными переходами из возбужденного состояния $5s5p^1p_1^0$ в состояния $5s9s^1S_0, 5s8^1D_2, 5s8d^3D_2, 5s10s^1S_0, 5s9d^3D_2$, соответственно. Состояние $5s5p^1p_1^0$ возбуждалось люминесценцией красителя, при этом нулевая линия на спектрограмме поднималась. Ширины резонансов в основном определялись приведенной шириной спектра лазерного излучения, за исключением трех резонансов, явно асимметрично уширенных. Это резонансы с уровнем $5p^2^3P_0$ на рис..5.3 и с уровнями $8s^1S_0$ и неидентифицированным (499.63 им) на рис..5.4. Профиль уширения этих резонансов подобен профилю Фано и, по-видимому, может объясняться вкладом автоионизационных состояний, энергия которых близка к энергии трехфотонной ионизации через эти состояния [119]. Измеренные энергии большинства уровней совпадали с табличными значениями [876], но обнаружены и некоторые особенности. Энергия уровня $5s9d^1D_2$, измеренная нами, составляла $43755.5 \pm 0.5 \text{ см}^{-1}$, что отличается от табличного значения [876] на 25 см^{-1} , но совпадает с результатом работы [64]. Резонанс с уровнем $5s10d^1D_2$ нами не был наблюден. На

спектрограмме (рис..5.5) его местоположение обозначено стрелкой. Возможно, его отсутствие связано с интерференцией различных каналов ионизации, аналогично ситуации с уровнем $4s13d^1D_2$ в Ca [62]. В исследованном участке спектра Sr нами наблюдался ряд резонансов, которые не удалось идентифицировать. На спектрограмме (5.4) это резонансы на длинах волн 499.63 нм, 502.96 нм и 506.83 нм. Их амплитуды на два порядка меньше амплитуд резонансов с соседними синглетными состояниями $6d^1D_2$ и $8s^1S_0$, но на порядок выше нулевой линии, поэтому хорошо различимы. В областях длин волн от 555 до 565 нм вокруг резонанса с состоянием $5p^3P_0$ (рис..5.3) наблюдается большая группа неидентифицированных резонансов. Подобную группу резонансов в этой области длин волн видели и авторы работ [118,38]. На этом рисунке неидентифицированные резонансы обозначены буквами А,В,С,Д на длинах волн 563, 562, 559.8, и -559,2 нм соответственно. Мы же зарегистрировали на два резонанса больше. Резонанс А на длине волны 563 нм в нашем спектре расщепился на два, соответствующих длинам волн 562.95 и 562,84 нм. И появился еще один соседний к резонансу $5p^2 \ ^3P_2$, на длине волны 560,52 нм (рис..5.3) Для оставшихся резонансов, соответствующих резонансам В, С, Д из работы [118] нами получены более точные положения 561.90 нм, 559,95 нм, 559,33 нм. То, что нам удалось разрешить, дополнительно два резонанса, объясняется, по-видимому, различием лазерных интенсивностей. В нашем эксперименте плотность мощности области фокуса не превышала 1 МВт см^{-2} , в эксперименте [118] она была 25 ГВтсм^{-2} . При таких больших плотностях мощности уровни уширяются, поэтому соседние резонансы могут сливаться и регистрироваться как один. Все сказанное еще раз подтверждает, что в наших экспериментах возмущение уровней лазерным полем не существенно. Ни один из резонансов этой группы нам не удалось приписать к известным связанным [87б] или автоионизационным [39] состояниям, впрочем, также как и авторам работ [118, 38]. Такое плотное расположение узких резонансов само по себе интересно и требует специального исследования. В настоящее время можно только сказать, что они не исчезают в циркулярном поле - (рис..5.4), меняется только их относительная амплитуда. Резонанс на длине волны 562,84 нм в линейном поле (рис..5.4б) имеет самую маленькую амплитуду, в циркулярном поле наоборот - самую большую из всех неидентифицированных резонансов этой группы.

На длине волны $\lambda = 496,15$ нм нами зарегистрирован резонанс, соответствующий однофотонному квадрупольному переходу $5s^2 \ ^1S - 5s4d^1D_2$. На рис. 5.4 он обозначен буквой Q. Его амплитуда в 500раз меньше соседних резонансов, соответствующих двухфотонным дилольно-разрешенным переходам. В циркулярном поле этот резонанс не наблюдается, возможно, из-за малой амплитуды.

Двухфотонные и однофотонные резонансы с триплетными состояниями $5s6d^3D - 5s9d^2D$ хорошо различимы. Их относительная амплитуда меняется с изменением главного квантового числа (рис. 5.5).

Исследование спектра Ba проводилось с использованием только двух красителей "родамин незамещенный" и "кумарин 30" перекрывающих диапазон длин волн от 580 до 540 и от 520 до 480 нм. На рис. 5.6-5.8 показаны ионизационные спектры атома Ba, полученные в данном эксперименте при линейной поляризации излучения. Резонансы, обозначенные спектральными символами ^{2s+1}L , соответствуют двухфотонным переходам из основного состояния $6s^2 \ ^1S_0$ атома Ba в обозначенные возбужденные состояния. В спектре, полученном на красителе 2 кумарин 30" (рис. 5.7-5.8) одно - фотонные резонансы не наблюдались, так как в области люминесценции этого красителя не попадает длина волны, соответствующая переходу ($\lambda = 553,7$ нм). Надо сказать, что в Ba область промежуточных энергий лежит ниже, чем в Ca и Sr, поэтому для ее исследования было достаточно одного красителя "кумарин 30".

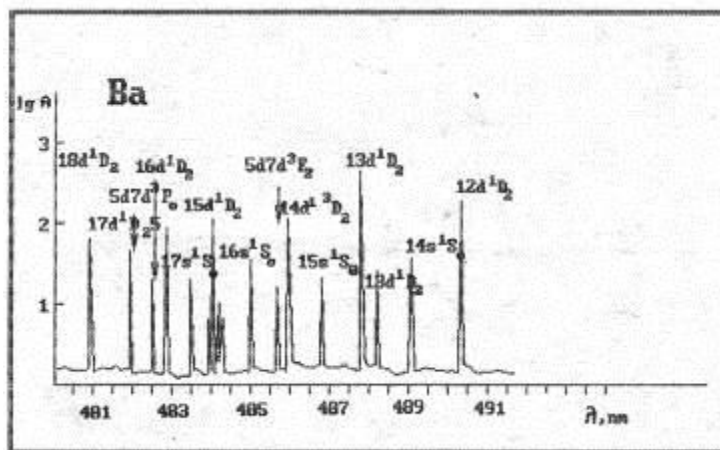


Рис.5.6. Участок ионизационного спектра атома Ba. Все резонансы асимметрично уширены. Необозначенные резонансы неидентифицированы

$6p_{1/2} 8s_{1/2}$ (565.2) и нечетное с $J=2$ [40]. Оставшиеся два резонанса на длинах волн 566.92 и 569.51 нм не удастся связать ни с одним из известных связанных [87] или автоионизационных [39,40] резонансов. Все резонансы на рис. 5.6 неоднородно уширены, причем в разные стороны. Характерную асимметрию может порождать интерференция между прямой фотоионизацией, в данном случае из возбужденного состояния, и ступенчатой через автоионизационное состояние [120]. Причину этой асимметрии можно выявить следующим образом. Знак амплитуды вероятности возбуждения автоионизационного состояния будет разный при энергии фотона ниже и выше резонанса с автоионизационным состоянием. В результате вклад интерференции оказывается положительным по одну сторону центра линии (точки резонанса) и отрицательным по другую сторону. Поэтому в этом крыле линии, где вклад интерференции положителен, суммарное поглощение окажется выше уровня окружающего непрерывного спектра, а где отрицателен, - ниже. Отношение сечения фотопоглощения σ при наличии автоионизационного (АИ) уровня к сечению фотопоглощения σ_0 , когда АИ уровень отсутствует, равно - [120]

$$\sigma / \sigma_0 = (q + \varepsilon)^2 / (1 + \varepsilon^2),$$

где q - параметр Фано, $\varepsilon = 2\Delta_A / \Gamma_A$, $\Delta_A = E_A - h\nu$ - расстройка от резонанса с АИ состоянием, Γ_A - ширина АИ состояния. Параметр Фано q равен

$$q = \sqrt{2/\pi} \frac{V_{nA} \Gamma_A}{V_{nE}}$$

V_{nA} - матричный элемент перехода из состояния n в АИ состояние,

V_{nE} - матричный элемент перехода из n в непрерывный спектр. Знак q зависит от знака матричных элементов V_{nE} , V_{nA} и показывает, что именно минимум или максимум поглощения имеет место на крыле линии. На рис. 5.6 профили резонансов с состояниями $6s7d^3D_2$ и $5d6d^3D_2$ асимметрично уширены в разные стороны так, что крылья профилей резонансов плавно переходят друг в друга. Это может быть понято на основании всего сказанного выше, если предположить, что энергии фотонов, переводящих состояния $6s7d^3D_2$ и $5d6d^3D_2$ в непрерывный спектр, лежит по разные стороны от энергии одного и того же АИ состояния. В этом случае вклад интерференции каналов прямой фотоионизации из этих состояний и ступенчатой через автоионизационное состояние будет иметь разный знак для первого и второго состояния и, следовательно, резонансы должны асимметрично уширяться в разные стороны.

В области промежуточных энергий (рис. 5.7, 5.8) ширины всех резонансов определялись приведенной шириной спектра лазерного излучения. Измеренная нами энергия уровня $6s10d^3D_2$ (39922.2 см^{-1}) на 28 см^{-1} отличалась от значения в таблицах [87], но совпадала в пределах экспериментальных ошибок со значением, приведенным в работе [67]. Надо отметить, что в таблицах [87] значений энергий уровней, лежащих выше $10d$ нет, и для идентификации резонансов мы пользовались результатами работ [67,69]. Измеренные нами энергии уровней с хорошей точностью совпадали со значениями энергий из работ [67,69], за исключением следующих четырех резонансов. Три из них выглядят как сателлиты к уровням: $6s15d^1D_2$ на длине волны 484.05 , к $6s15d^3D_2$ на длине волны 484.28 , к $4s11d^3D_2$ на длине волны 494.69 нм. И один, отдельно отстоящий, лежит на длине волны 491.91 нм. Перечисленные резонансы неидентифицированы, поскольку их положение не соответствует известным энергиям связанных [87,67,69] или автоионизационных [39,40] состояниях.

Как видно из спектрограмм на рис. 5.6-5.8, двухфотонные резонансы с триплетными состояниями в атоме Ва многочисленнее и имеют значительно большую амплитуду, чем в атомах Са и Sr. Если в спектрах Са и Sr были относительно небольшие участки, где появлялись резонансы с триплетными состояниями, то в Ва, наоборот, небольшие участки, где нет резонансов с триплетами. Например, вблизи уровня $6s12d^1D_2$ и выше уровня $6s16d^1D_2$ (рис. 5.8). Резонанс на длине волны 485.87 нм состоит из двух слившихся резонансов одинаковой амплитуды - резонанса на длине волны 485.85 нм, соответствующего состоянию $6s14d^3D_2$ (41166.46 см^{-1}) и резонанса на длине волны 485.89 нм, соответствующего состоянию $6s14d^1D_2$ (41162.4 см^{-1}). Состояния $14d^1D_2$ и $14d^3D_2$ расположены аномально близко, на расстоянии всего двух обратных сантиметров. Поэтому при первом сканировании спектра излучением с шириной линии 0.03 нм видно, что на этих длинах волн ширина соответствует $1,5 \text{ см}^{-1}$, мы не разрешили триплетное и синглетное состояния. Чтобы их различить, пришлось сузить ширину линии генерации лазера до $0,01$ нм ($0,5 \text{ см}^{-1}$), что существенно уменьшило энергию излучения и, естественно, амплитуду резонансов. Так как нам важны относительные амплитуды резонансов, то амплитуда резонанса с уровнем III приведена на рис. 5.8 при той энергии и спектральной ширине излучения, при которой измерялся весь спектр и поэтому состояния 1D_2 и 3D_2 не различимы.

5.3. Идентификация и анализ дисперсионных зависимостей атомов Ca, Ba и Sr

В экспериментах, результаты которых изложены выше, исследовался процесс трехфотонной ионизации щелочноземельных атомов. При изменении частоты лазерного излучения наблюдались промежуточные резонансы со связанными состояниями, проявляющиеся в резком увеличении амплитуды ионного сигнала. В этом случае процесс ионизации носил резонансный характер. Поскольку в дальнейшем мы собираемся исследовать вероятность возбуждения тех или иных состояний, то необходимо обсудить, в какой мере по такой интегральной характеристике, как выход ионов, можно получить информацию о населенности возбужденного состояния. Так, если возбуждение и ионизация происходят в разных полях, к тому же разнесенных во времени, то, очевидно, что число образовавшихся ионов пропорционально, в частности, вероятности возбуждения атомов в первом поле. В случае резонансной ионизации в одном поле это не настолько очевидно, так как ионизация может происходить за счет одновременного поглощения трех квантов излучения. Другими словами, это вопрос о соотношении многоквантовых и ступенчатых (или каскадных) переходов [127,128]. На рис..5.9а изображена схема трехфотонного перехода из основного состояния g в континуум 1 с промежуточным двухфотонным резонансом с состоянием r . В том случае, когда расстройка резонанса $\Delta = \omega_{rg} - 2\omega$ (где $\omega = \omega_{rg} = E_r - E_g$) значительно больше ширины уровня r , т.е. при $\Delta \gg \Gamma$, многоквантовый и каскадный процессы ионизации хорошо различимы и вероятность ионизации - есть сумма вероятностей этих двух процессов $W_n = W_m + W_k$. Строго говоря, при одинаковой конечной энергии электрона эти два процесса должны происходить на разных частотах излучения. И, наоборот, на одной частоте многоквантовый и каскадный процессы при $\Delta \ll \Gamma$ будут приводить к разным конечным энергиям электронов (рис..5.9а), которые на языке квазиэнергий представляют собой оптическое повторение квазиэнергетических уровней E_g и E_r во внешнем поле с частотой ω_d - [129]. В случае, когда расстройка сравнима с шириной резонансного уровня ($\Delta \leq \Gamma$), многоквантовый и каскадный процессы приводят к одной и той же конечной энергии электрона и следует складывать не вероятности переходов, а амплитуды

$$A_{gi} = A_{gr} A_{ri} + A'_{gi} ,$$

где $A_{gi} = V_{gi}^{(3)}$, $A_{gr} = V_{gr}^{(2)}$, $V_{ml}^{(k)}$ - составной матричный элемент K -го порядка. В этом случае вероятность перехода будет равна не сумме квадратов амплитуд, а квадрату суммы. Следовательно, появятся интерференционные члены, которые, собственно, и не позволяют разделить ионизацию на многоквантовую и каскадную, а требуют рассмотрения единого процесса перехода атома из основного состояния

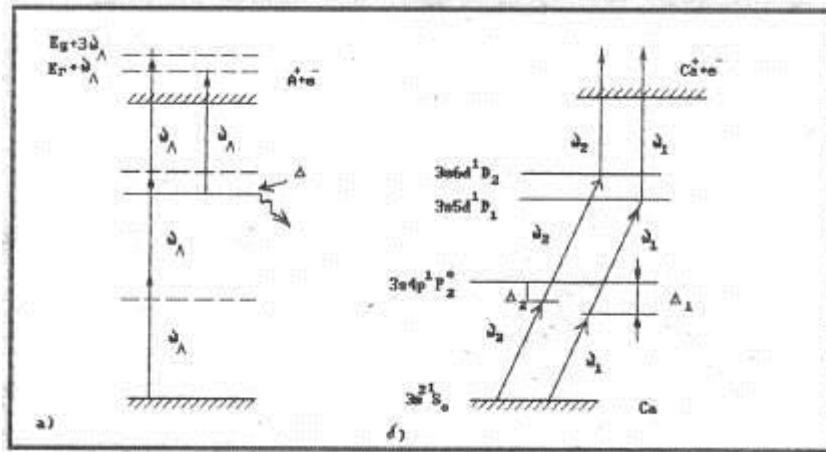


Рис..5.9.

- а) Схема трехфотонной ионизации атома Ca с промежуточным резонансом
 б) Схема трехфотонной ионизации атома Ca с промежуточным резонансом с уровнями $3s5d^1 D_2$ и $3s6d^1 D_2$ на частотах ω_1 и ω_2 соответственно

g в конечное I с поглощением трех квантов [127]. Однако и в этом случае можно попытаться ввести количественный критерий, который позволит выделить один из рассматриваемых процессов на подобие того, как это было сделано в работе [130], для резонансного комбинационного рассеяния, сравнивая времена жизни возбужденного состояния, обусловленные вынужденными и спонтанными процессами. Время жизни в возбужденном состоянии можно характеризовать тремя величинами: временем спонтанной релаксации τ_δ или естественной шириной уровня Γ_δ , временем вынужденного перехода в основное состояние τ_f или полевой шириной Γ_f и временем ионизации τ_i им ионизационной шириной Γ_i . Если ширина, обусловленная спонтанной релаксацией, больше полевой и ионизационной ширин $\Gamma_\delta > \Gamma_f, \Gamma_i$, то оправдано представление о возбуждении атома в реальное состояние, и в первом приближении можно говорить о каскадном процессе, состоящем в возбуждении уровня и последующей его ионизации. Это представление,

однако, справедливо только тогда, когда характерное время процесса ионизации τ много больше обратной ширины уровня: $\tau \gg \Gamma^{-1} = \tau_\delta$. В случае же $\tau \sim \Gamma_\delta^{-1}$ даже при выполнении условия $\Gamma_\delta \gg \Gamma_f, \Gamma_i$ разделение на многоквантовый и каскадный процессы невозможно и их надо рассматривать одновременно. При $\tau \ll \Gamma_\delta^{-1}$ многоквантовый процесс резонансной ионизации доминирует. Более явно это можно показать следующим образом. Вероятность каскадного процесса ионизации равна произведению вероятности возбуждения состояния $g - W_{gr}$ на вероятность ионизации из этого состояния W_{ri} (рис..5.1): $W_k = W_{gr} - W_{ri}$. Эти вероятности равны [89]:

$$w_{gr} = 2\pi \frac{\Gamma_\delta}{\Delta^2 + 1/4\Gamma_\delta^2} |v_{gr}^{(2)}|^2 \tau; w_{ri} = 2\pi |v_{ri}|^2 \tau, \quad (5.1)$$

Следовательно, полная вероятность каскадного перехода:

$$w_{\text{каскад.}} = 4\pi^2 \frac{|v_{gr}^{(2)}|^2 |v_{ri}|^2 \Gamma_\delta \tau^2}{\Delta^2 + 1/4\Gamma_\delta^2}, \quad (5.2)$$

(здесь и далее учитывается, что $\Gamma_\delta \gg \Gamma_i, \Gamma_f$)

Вероятность резонансной ионизации в слабом монохроматическом поле можно представить в виде [97]

$$w_m = 2\pi \frac{|v_{gr}^{(2)}|^2 |v_{ri}|^2 \Gamma_\delta \tau}{\Delta^2 + 1/4\Gamma_\delta^2}, \quad (5.3)$$

Отношение вероятностей каскадной и прямой ионизации в случае точного резонанса $\Delta=0$ равно:

$$w_{\text{каскад.}} / w_{\text{пр.}} = 2\pi \Gamma \tau, \quad (5.4)$$

Из (5.4) явно видно, что если характерное время ионизации много больше обратной ширины уровня, то есть $\Gamma_\delta \tau \gg 1$, то процесс резонансной ионизации носит каскадный характер, при обратном соотношении $\Gamma_\delta \tau \ll 1$ резонансный многофотонный процесс превалирует. В промежуточном случае $\Gamma_\delta \tau \sim 1$ невозможно выделить многоквантовый или каскадный процесс, так как будут существенны интерференционные члены в выражении для полной вероятности. В ситуации далекой от насыщения $W_{it_\text{л}} \ll 1$ характерное время процесса ионизации будет определяться длительностью лазерного импульса $\tau \sim t_\text{л}$.

Для произвольного соотношения ширин $\Gamma_\delta, \Gamma_f, \Gamma_i$ при больших $\tau \ll \Gamma^{-1}$ и $\tau \gg \Gamma^{-1}$ временах ($\Gamma = \max \{ \Gamma_\delta, \Gamma_f, \Gamma_i \}$) процесс резонансной ионизации подробно рассматривался в работах [131,132], из результатов которых следует,

что использование простых резонансных формул типа Брейта-Вигнера (5.2) с той или иной шириной резонанса для описания линейного (по времени) режима ионизации в общем случае невозможно. Каждая конкретная ситуация, реализуемая в эксперименте, требует отдельного рассмотрения.

Реализуемый в эксперименте процесс ионизации Са рассмотрим на примере двух резонансов с уровнями $4s5d^1D_2$ и $4s6d^1D_2$ на частотах $\omega_1 = 21459.5 \text{ см}^{-1}$ и $\omega_2 = 22494.9 \text{ см}^{-1}$. Для указанных уровней известны вероятности радиационного распада и силы осцилляторов переходов в нижние состояния [48] и поэтому возможны наиболее полные численные оценки. Естественные ширины этих уровней, определяемые спонтанной релаксацией равны: для $4s5d^1D_2 - \Gamma_\delta = 4 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$, для $4s6d^1D_2 - \Gamma_\delta = 8 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$. Нерезонансное изменение энергии возбужденных состояний в поле $\varepsilon = 3 \cdot 10^4 \text{ В см}^{-1}$, оцененное по асимптотической формуле [133] $\delta E = 1/4 \varepsilon^2 / \omega^2$, равно $\delta E_{\delta d} \approx 2,2 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$ и $\delta E_{Gd} \approx 1,3 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$. Поляризуемость основного состояния атома Са на частотах ω_1 и ω_2 примерно одинакова и равна $\alpha_0 = 195 \text{ а.е.}$ [88]. Отсюда изменение энергии основного состояния $\delta E_0 = -1/4 \alpha E^2 = -2 \cdot 10^{-10} \text{ а.е.} = 4 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$. Как видно, нерезонансное изменение энергии уровней за счет динамического эффекта Штарка намного меньше естественных ширин возбужденных состояний и поэтому ими можно пренебречь.

Полевая ширина уровней $5d$ и $6d$ будет определяться двухфотонной частотой Раби [129]: $\Gamma_{f_{dsd}} \sim \Omega^{(2)} = 1[2\sqrt{\Delta^2 + 4|v^{(2)}|^2}]^2$, т.е. также, как и нерезонансный сдвиг уровней, квадратично зависит от поля и в точном резонансе ($\Delta = E_d - 2\omega = 0$) равна $\Gamma_f = |v_{\delta d}^{(2)}|^2 = \frac{|D_{\delta p}| |D_{pd}|}{\Delta} \varepsilon^2$, где D - дипольный матричный элемент перехода, Δ_p - расстройка с промежуточным состоянием $4s4p^1P_1^0$. Матричные элементы переходов можно оценить по известным силам осцилляторов $f_{ik} = -\frac{2w_{ik}}{2j+1} | \langle 1|D|k \rangle |^2$, где w_{ik} - частота перехода $k \rightarrow 1$, J - полный момент верхнего уровня. Для перехода $4s^2 \ ^1S_0 - 4s4p^1P_1^0$, $f_{\delta p} = 1.75$, для $4s4p^1P_1^0 - 4s5d^1D_2$, $f_{pd} = 0,27$; а для $4s4p^1P_1^0 - 4s6d^1D_2$, $f_{pd} = 4,4 \cdot 10^{-2}$ [49]. Оценки дают следующие значения полевых ширин: для уровня $5d - \Gamma_f \approx 9 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$, для $6d - \Gamma_f \approx 8,4 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$. То, что полевые ширины для $5d$ и $6d$ уровней почти одинаковы, объясняется тем, что различие в силах осцилляторов $f_{pd1} > f_{pd2}$

компенсируется различием в расстройках $\Delta_{p1} > \Delta_{p2}$ с промежуточным уровнем $4s4p^1p_1^0$ на частотах w_1 и w_2 .

Ионизационная ширина уровней равна $\Gamma_i = 2\pi|v_{dE}^{(2)}|^2$. Для неводородоподобных атомов величина V_{dE} может быть рассчитана по полуэмпирическим методам квантового дефекта по формуле Берджеса-Ситона, приведенной в [5]. Полученные оценки дают следующие величины ширин: для уровня $5d - \Gamma_i = 8,3 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$, для $6d - \Gamma_i = 4,1 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$.

Таким образом, из выведенных значений ширин следует, что в условиях нашего эксперимента сдвиг уровней за счет динамического Штарк-эффекта и ионизационная ширина на порядок меньше полевой и естественной ширин, которые имеют один порядок величины. Если для уровня $5d - \Gamma_\delta \approx 3 \Gamma_f$, то уже для $6d - \Gamma_\delta \approx \Gamma_f$, а для уровней с большим значением Ω полевая ширина становится больше естественной ширины $\Gamma_f \gg \Gamma_\delta$. Это объясняется разной зависимостью от главного квантового числа $\Gamma_\delta \sim \Omega^{-3}$ [134], $\Gamma_f \sim \Omega^{-3[2]}$ [135]. Проведенный анализ показывает, что в нашем случае $\Gamma_f \geq \Gamma_\delta$, $2\pi\Gamma\tau \sim 1$ и, казалось бы, разделение на многоквантовый и каскадный процессы не обосновано. Однако при выводе критерия (5.4) не учитывалось немонохроматичность лазерного излучения. Лазеры на красителе, используемые в эксперименте, имеют спектральную ширину излучения $\Delta w \sim 1 \text{ см}^{-1}$, что намного больше всех рассчитанных выше ширин. Подробный теоретический анализ трехфотонной ионизации с двухфотонным промежуточным резонансом в немонохроматическом поле был проведен в работе [136]. В результате анализа авторы работы [136] приходят к выводу, что в пределе больших ширин и низких интенсивностей ($\Delta w \gg \Gamma$), связанно-связанный переход в резонансное состояние статистически не связан с переходом из возбужденного состояния в континуум. То есть процесс ионизации можно рассматривать как состоящий из двух ступеней - возбуждения и последующей ионизации. Другими словами, если характерное время взаимодействия больше времени когерентности лазерного излучения, то весь процесс будет не когерентным. Двухфотонное возбуждение будет все же происходить когерентно из-за малого времени жизни промежуточного виртуального состояния, а ионизационная ступень статистически не связана со ступенью возбуждения. Импульсный многомодовый лазер на красителе с шириной спектра $\Delta w \sim 1 \text{ см}^{-1}$ обладает временем когерентности $\tau_{\text{ког}} \sim (\Delta w)^{-1} \sim 33 \text{ пс}$, что мало по сравнению с дли-

тельностью импульса (10нс) и, следовательно, в нашем случае ($\Delta w \gg \Gamma_\delta, \Gamma_i, \Gamma_f, \delta E$), процесс резонансной ионизации будет заведомо не когерентным. Таким образом, для некогерентного излучения критерий (5.4) нужно переписать в виде $\Delta w t \gg 1$, при условии, что поле слабое (т.е. $\Delta w \gg \Gamma_i, \Gamma_f, \delta E$).

С учетом всего сказанного выше, нами были проведены численные оценки полной вероятности резонансной ионизации через уровень 5d - $W = 6,7 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ и через уровень 6d - $W = 7,9 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$. При плотности атомов $n_0 = 10^9 \text{ см}^{-3}$, объеме фокусировки 10^{-4} см^{-3} и соотношении амплитуды сигнала с детектора и числа образовавшихся ионов 1 мВ - 10 ионов, полученные значения вероятностей соответствуют ионным сигналам с амплитудами $A_{5d} \sim 700 \text{ мВ}$, $A_{6d} \sim 800 \text{ мВ}$, что находится в хорошем согласии с экспериментом.

По относительному выходу ионов к резонансу с синглетными и триплетными состояниями, при условии, что сила осциллятора перехода в синглетное состояние, известна, можно оценить силу осциллятора перехода в триплетное состояние. Действительно, резонансы с триплетными и синглетными состояниями, имеющими одинаковое главное квантовое число, происходят на близких частотах, значения эффективных главных квантовых чисел этих состояний мало отличаются и поэтому можно предположить, что ионизация соседних триплетных и синглетных состояний происходит с почти равной вероятностью. Следовательно, различие в амплитудах резонансов связано с различием в вероятностях возбуждения триплетных и синглетных состояний. Для состояния $4s6d^1D_2$ известна сила осциллятора перехода $4s4p^1P_1^0 - 4sd^1D_2$, $f_{pd}^\delta = 4,4 \cdot 10^{-2}$ [48]. По отношению амплитуд резонансов с триплетными и синглетными состояниями 6d мы оценили силу осциллятора интеркомбинационного перехода $4s4p^1P^0 - 4sd^3D_2$, $f_{pd}^\Gamma = 2,3 \cdot 10^{-3}$. К сожалению, для других резонансов в атоме Са и для всех зарегистрированных в атомах Sr; Ва нам не известны силы осцилляторов разрешенных переходов. Поэтому получить значения сил осцилляторов для других интеркомбинационных переходов без проведения абсолютизации параметров лазерного излучения, атомного пучка и детектора не возможно. Но, как будет показано ниже, ценную информацию можно получить и из относительных значений вероятности интеркомбинационных переходов. Например, проследив, как меняется эта вероятность вдоль n_0 серии триплетных состояний.

Было показано, что взаимодействие конфигураций приводит к сильному возмущению одноэлектронных состояний щелочноземельных атомов. Эти возмущения проявляются в нерегулярностях спектра серий различных одноэлектронных состояний, которые тем больше, чем сильнее взаимодействие конфигураций. Степень локализации таких отклонений от регулярности содержит в себе информацию о числе взаимодействующих уровней различных конфигураций. Мерой того, насколько сильно возмущено состояние, может служить величина квантового дефекта $\mu = n - n^*$ ($n^* = \sqrt{R_y / E_n}$, n^* - эффективное главное квантовое число). На рис.5.10 изображены зависимости величины триплетных (пунктирная линия) и синглетных (сплошная линия) уровней $n_0 \text{snd}$ серий атомов Ca, Sr и Ba от величины главного квантового числа n . Все три зависимости демонстрируют резкое изменение величины квантового дефекта с ростом n . Известно, что в одноэлектронном приближении, без учета взаимодействия конфигураций, величина квантового дефекта слабо зависит от n , монотонно уменьшаясь с ростом n [137]: $\mu = \mu_0 + \mu_1 / n^2 + \mu_2 / n^4 + \dots$. Скачки в величине квантового дефекта с изменением n могут быть вызваны только эффектом взаимодействия конфигураций. Зависимости, изображенные на рис.5.10, показывают, что на участках спектра атомов Ca, Sr и Ba, исследованных нами в эксперименте, одноэлектронные состояния $n_0 \text{snd } ^{1,3}D_2$ возмущены очень сильно и для их описания одноэлектронное приближение не применимо.

Зависимости μ (n) содержат в себе эмпирически полученную информацию о характере и силе взаимодействия конфигураций и в дальнейшем будут нами использованы для интерпретации экспериментальных результатов.

5.4. Интеркомбинационные переходы

Результаты экспериментального исследования промежуточной области спектра атома Ca позволяют получить информацию об относительной вероятности спинзапрещенных переходов и зависимости ее от главного квантового числа возбужденного состояния. Рассмотрим резонансы с триплетными состояниями, соответствующие двухфотонным интеркомбинационным переходам $4s^2 \ ^4S_0 - 4\text{snd}^3D_2$. Так как триплетные и синглетные состояния с одинаковым значением n имеют близкие значения энергий, то их возбуждение происходит практически при одинаковой

интенсивности лазерного излучения. Поэтому, сравнивая амплитуды резонансов с триплетными и соответствующими синглетными состояниями, мы можем проследить, как изменяется относительная вероятность интеркомбинационных переходов с изменением главного квантового числа. Например, резонанс с триплетным состоянием - $4s5d^3D_2$ нами не наблюдался, тогда как амплитуда резонанса с сильно их возмущающим $4s5d^1D_2$ на три порядка выше нерезонансного фона. Амплитуда резонанса с триплетным со $4s6d^3D_2$ всего на порядок меньше амплитуды резонанса с синглетным состоянием $4s6d^1D_2$. А при $n=8$ амплитуды резонансов с синглетными и триплетными состояниями равны. На рис..5.11 показана полученная из экспериментальных данных зависимость отношения амплитуд с триплетными A_T и синглетными A_S состояниями от главного квантового числа. Видно, что отношение A_T/A_S меняется от 0,05 до единицы при изменении n от 5 до 8. Сравним эту зависимость с зависимостью отношения квантового дефекта μ триплетного состояния к квантовому дефекту синглетного состояния от n . Высокая вероятность интеркомбинационных переходов имеет место на тех частотах, где изменение главного квантового числа синглетного состояния больше изменения триплетного. При увеличении возмущения конфигурации $4snd$, проявляющегося в резком изменении квантового дефекта, увеличивается и относительная амплитуда резонансов с триплетными состояниями. На рис.. 5.12 в дополнение к нашим результатам показаны результаты работы [62], в которой наблюдались резонансы с триплетными состояниями для $n = 13,14$. При $n = 14$ зависимости $\mu(n)$ для триплетных и синглетных состояний имеют почти одинаковое значение квантового дефекта $\mu_T(14) \approx \mu_S(14)$. Это означает, что при этих значениях n триплетные и синглетные состояния расположены аномально близко по энергии и поэтому происходит эффективное триплет-синглетное перемешивание. Если до пересечения синглетный уровень имел большую энергию, чем триплетный, то после пересечения большую энергию имеет триплетный уровень. Это объясняется расталкиванием двух уровней третьим, из другой конфигурации, лежащим между ними и сильно их возмущающим.

Для наглядности изображения влияния возмущения уровней других конфигураций на конфигурацию $4snd$ приведены зависимости квантового дефекта μ от волнового числа $\sigma = I_{4s} - Ry[n^*2]$ (I_{4s} -ионизационный предел $4snd$ серии). Эти зависимости имеют дисперсионноподобный вид и позволяют

локализовать по энергии возмущение, а затем идентифицировать его с реальным уровнем той или иной конфигурации.

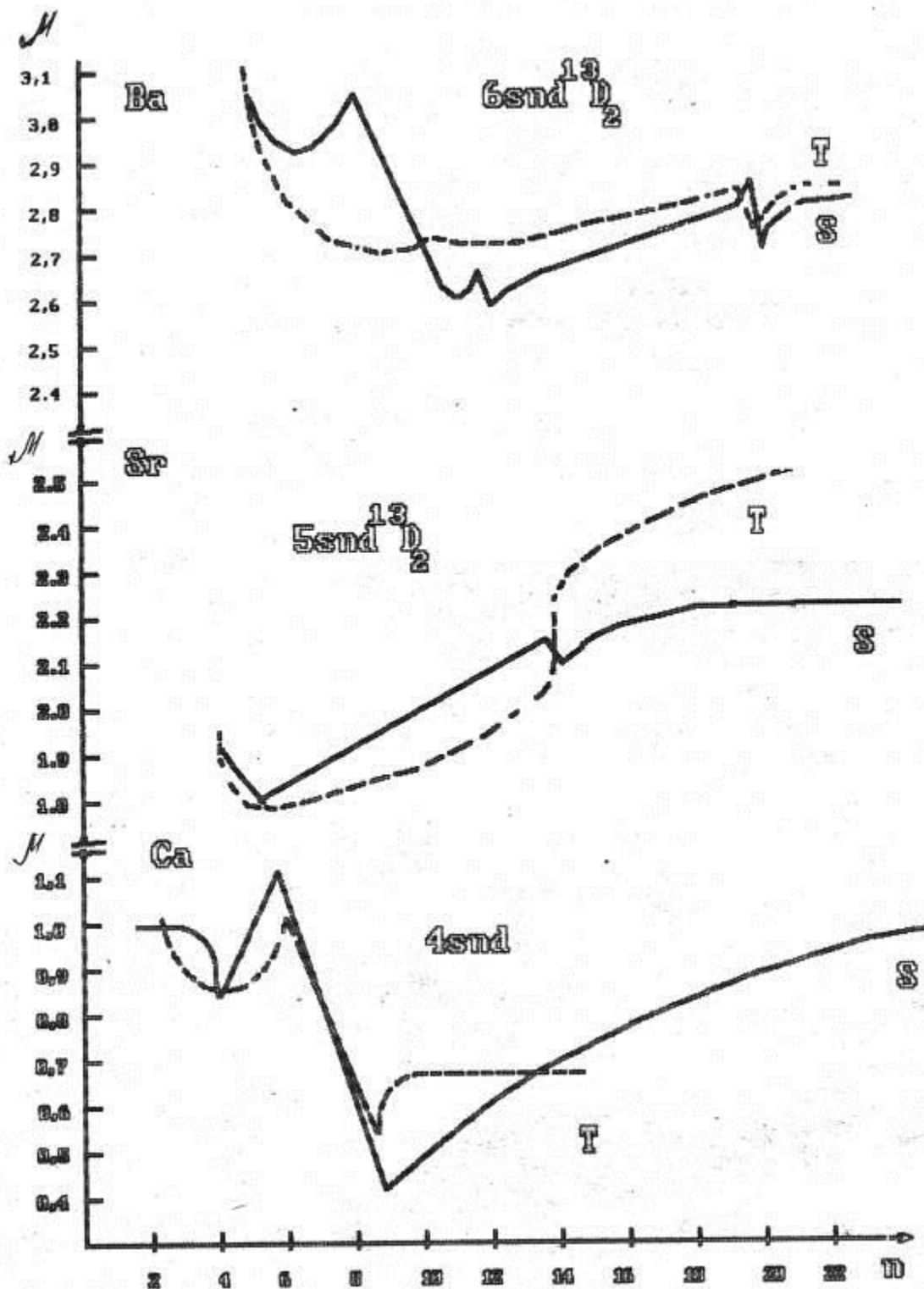


Рис.. 5.10. Зависимости величины квантового дефекта μ синглетных (сплошная линия) и триплетных (пунктирная линия) уровней $n_0 snd$ серий атомов Ca, Sr и Ba от величины главного квантового числа n .

Так, триплетные состояния серии $4snd$ сильно возмущены двухэлектронным состоянием $5d5s^3D_2$ при $n = 8, 9$ и одноэлектронным синглетным состоянием $4s14d^3D_2$ той же конфигурации при $n = 14, 15$. Синглетные состояния возмущены значительно сильнее и большим количеством уровней из других конфигураций. При $n = 4, 5$ возмущающим состоянием является $4p^{21}D_2$ при $n = 3, 9 - 3d5s S^1D_2$, а начиная с $n = 15$ все синглетные уровни возмущены состоянием $3d^{21}D_2$, являющимся автоионизационным [62].

В атоме Sr рассмотрим резонансы с триплетными состояниями, соответствующие двухфотонным интеркомбинационным переходам $5s^2 ^1S_0 - 5snd^3D_2$. Также как и с Ca амплитуды этих резонансов сильно меняются в зависимости от значения главного квантового числа возбужденных состояний. На рис..5.13а показана зависимость относительной амплитуды A_T / A_S резонансов с триплетными состояниями от n . Величина A_T / A_S максимальна при $n = 5$ и затем быстро уменьшается до нуля с увеличением n до 10. Как раз в этой области по n происходит излом зависимости $\mu(n)$ для серии уровней $5snd^1D_2$. Следующее "появление" интенсивных резонансов с триплетными состояниями наблюдается при $n = 14-18$, как показано на рис..5.7а, на котором в дополнение к нашим результатам приведены результаты работы [64]. Значениям $n = 14-15$ соответствует второй излом на зависимости $\mu(n)$. При сопоставлении зависимостей на рис..5.13а и рис..5.13б видна явная корреляция между ними. Появление интенсивных интеркомбинационных переходов совпадает по n с резким изменением в величине квантового дефекта. Поскольку резкое изменение величины квантового дефекта состояния вызвано возмущающим действием постороннего уровня из другой конфигурации, следовательно, появление интеркомбинационных переходов обусловлено эффектом взаимодействия конфигураций.

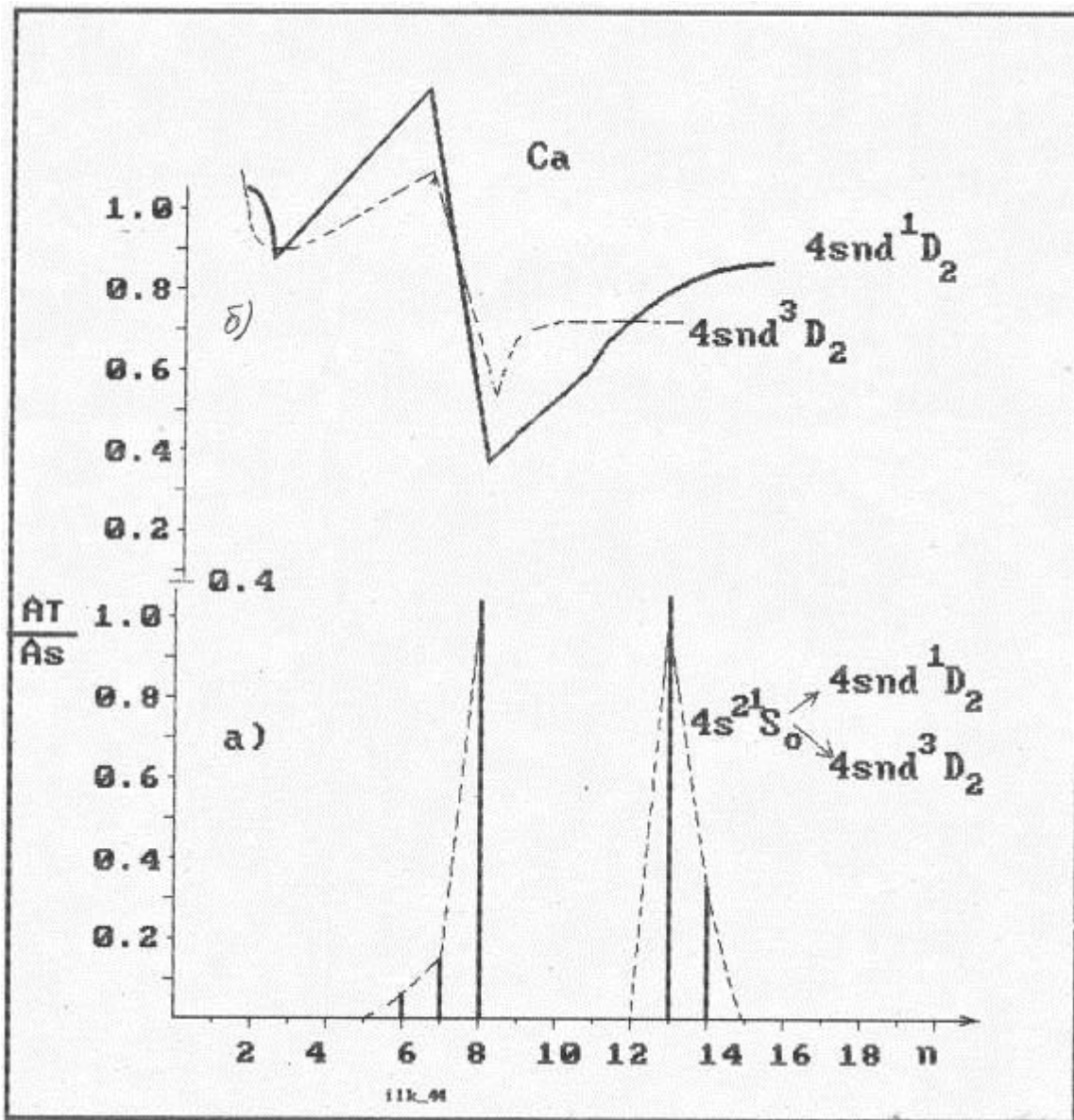


Рис..5.11. Атом Ca. а) Зависимости отношения амплитуд резонансов с триплетными (A_T) и синглетными (A_S) состояниями от главного квантового числа n .

б) Зависимость величины относительного квантового дефекта μ от n .

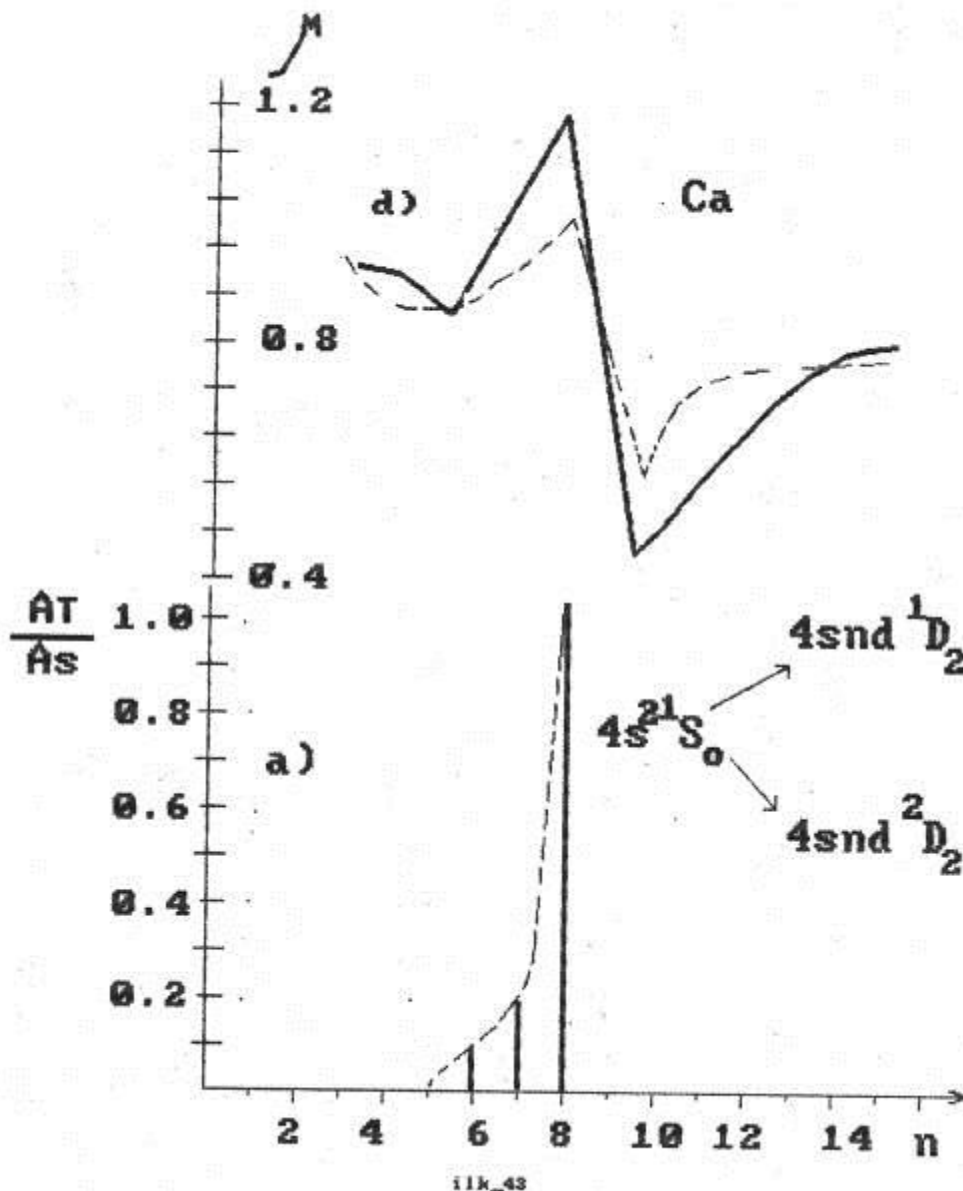


Рис..5.12 Атом Ca. а) Зависимость отношения амплитуд резонансов A_T / A_5 от n .
 Для $n = 5-8$ данные нашей работы, для $n = 12-14$ работы [32]

б) Зависимость величины относительного квантового дефекта от n

Действительно, интенсивность интеркомбинационных переходов максимальна для значений n , при которых возмущение наиболее сильно, т.е. в той области энергий, где одноэлектронные состояния близко расположены к возмущающему уровню, и быстро уменьшается при удалении от него. Как это явно видно из рис..5.13, одноэлектронные состояния $5snd$ возмущены двухэлектронными состояниями - $5p^2 1D_2$ при $n = 5-6$ и $4d6s^1D_2$), $4d6s^3D_2$ при $n = 14-15$. Картины возмущения в Ca и Sr похожи. И в том и в другом атоме

существенно возмущают спектр n_0snd состояний две конфигурации $n_0 p^2$ и $(n_0 - 1)d(n_0 + 1)s$.

В отличие от Ca и Sr в атоме Ba мы наблюдали значительно больше резонансов с триплетными состояниями. Зависимость относительной амплитуды резонансов с триплетными состояниями от главного квантового числа приведена на рис. 5.14а. Эта зависимость не монотонная с двумя резкими максимумами при $n = 7$ и $n = 14$ и одним пологим при $n = 9-10$. Значения n , при которых наблюдаются максимумы в величине A_T / A_δ , соответствуют изломам на зависимости квантового дефекта от n . Данные наших экспериментов совместны с данными из работы [71] для $n = 20-28$. Как видно из этого рисунка, корреляция между зависимостями относительной амплитуды от n и величины относительного квантового n сохраняется и для больших значений n . На участке изменения n от 16 до 20 зависимости $\mu(n)$ для триплетных и синглетных серий почти параллельны друг другу и оси абсцисс, т.е. величины квантовых дефектов очень слабо меняются с изменением n . Это свидетельствует об отсутствии возмущения в этой области по n . При этих значениях n отсутствуют и резонансы с триплетными состояниями, что лишний раз доказывает связь между появлением интенсивных интеркомбинационных переходов и возмущением, вызванным эффектом взаимодействия конфигураций. В этой области энергий, где возмущения или вовсе отсутствуют, малы и вероятности интеркомбинационных переходов.

В атоме Ba намного больше, чем в Ca и Sr уровней из двухэлектронных конфигураций, возмущающих спектр одноэлектронных $bsnd$ состояний. Конкретизировать возмущающие уровни позволяет зависимость $\mu(\sigma)$. Серия

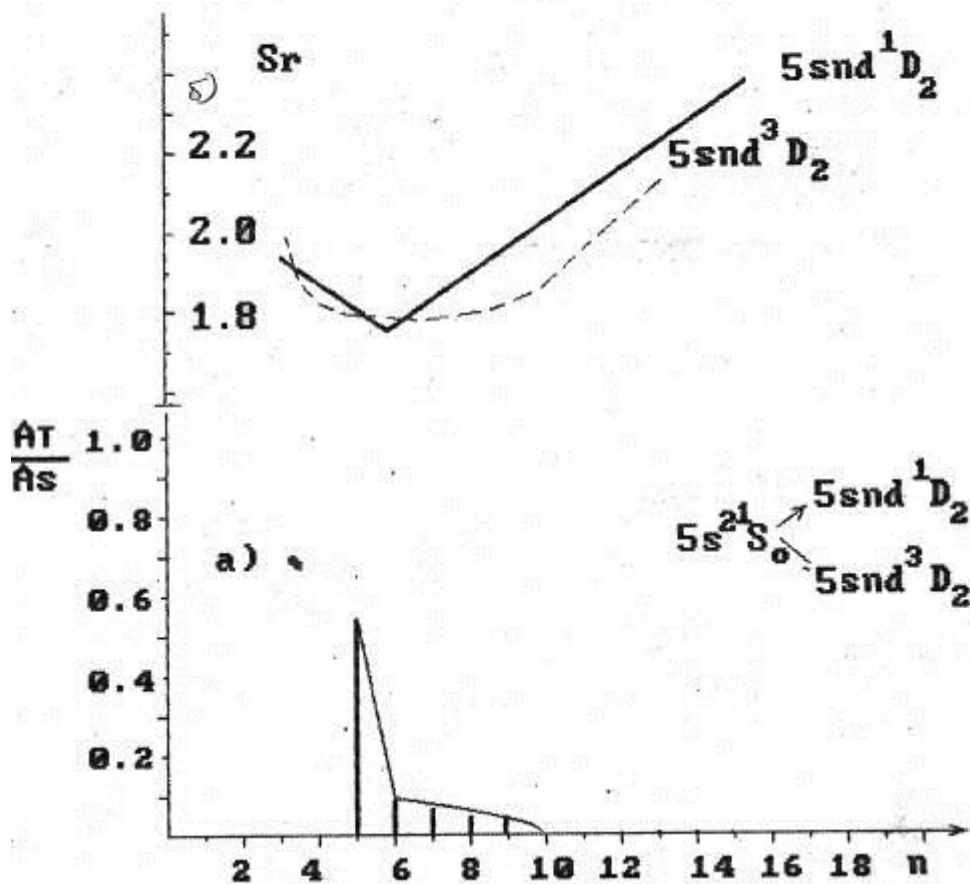


Рис..5.13. Атом Sr. А) Зависимость относительной амплитуды A_T / A_S резонансов с триплетными состояниями от n .
 б) Зависимость $\mu(n)$ для серии $5snd$ уровней $1D_2$ и 3D_2

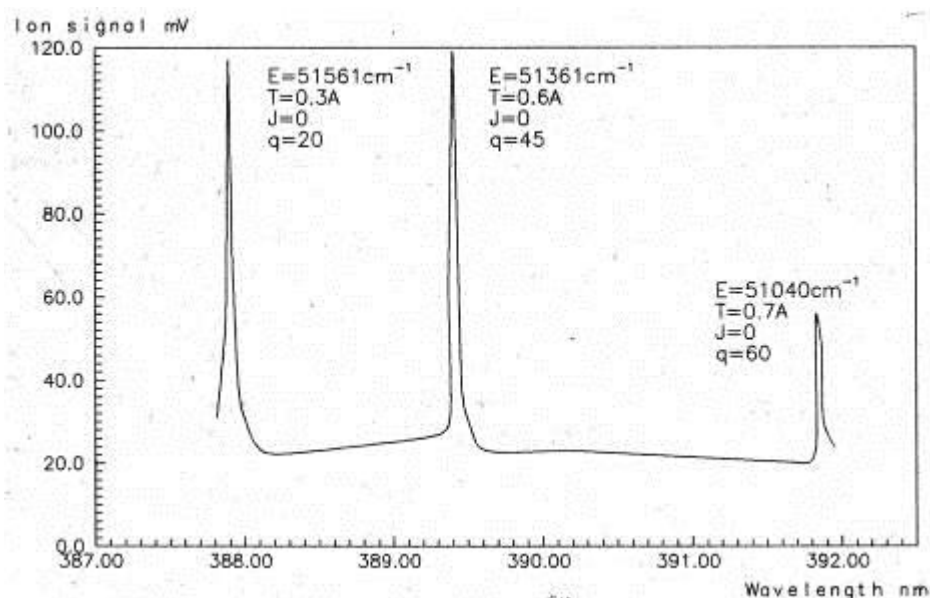
триплетных состояний $6snd^3D_2$ возмущена всего лишь двумя состояниями: при $n = 9-10$ уровнем $5d8s^3D_2$ и при $n = 24-26$ уровнем $5d7d^3D_2$. Серия синглетных состояний возмущена значительно сильнее и большим числом двухэлектронных состояний. При $n = 8 - 9$ состояниями $5d6d^1D_2$ и $6p^{21}D_2$ и при $n = 10-11$ состоянием $5d8s^1D_2$, при $n = 24-26$ состоянием $5d7d^1D_2$. В области энергий, в которых расположены все перечисленные возмущающие состояния, наблюдаются интенсивные интеркомбинационные переходы.

5.5. Влияние перемешивания конфигураций электронных состояний на процесс многофотонной ионизации

Двухэлектронные конфигурации щелочноземельных атомов лучше описываются jj - связи. В таких конфигурациях спин-орбитальное взаимодействие велико и поэтому для них нет запрета на переходы с изменением спина. В результате электростатического взаимодействия между конфигурациями происходит перемешивание волновых функций одноэлектронных и двухэлектронных состояний. Небольшой примеси двухэлектронного состояния в триплетное одноэлектронное достаточно для существенного увеличения вероятности интеркомбинационного перехода из синглетного состояния в это возмущенное триплетное. Примеры увеличения вероятности интеркомбинационных переходов за счет указанного механизма наблюдались нами в экспериментах.

Эффект взаимодействия конфигураций может оказывать влияние на триплет-синглетное перемешивание, вызванное собственным спин-орбитальным взаимодействием одноэлектронной конфигурации.

Действительно, взаимодействие одноэлектронной конфигурации энергетического положения уровней, иногда настолько сильно сближает триплетные и синглетные состояния, что небольшого спин-орбитального взаимодействия внутри одноэлектронной конфигурации достаточно для значительного триплет-синглетного перемешивания. Примером такого эффекта может служить наблюдение интенсивного интеркомбинационного перехода $6s^2\ ^1S_0 - 6s14d^3D_2$ в атоме Ва (рис..5.14). Энергия синглетного уровня $6s14d^1D$ за счет взаимодействия с уровнем из двухэлектронной конфигурации $5d7d^3F_2$ изменена настолько, что энергетическое расстояние между синглетным и триплетным уровнем становится аномально малым (2 см^{-1}) и сравнимым с величиной тонкого расщепления самого триплета. Это приводит к сильному перемешиванию указанных одноэлектронных состояний.



(Рис..5.14).

5.6. Трехфотонная резонансная ионизация атома Mg на длине волны 337,14 нм

Как следует из обзора литературы, в атоме Mg спинорбитальное взаимодействие намного слабее, чем в Ca и Sr, Ba. Вероятность интеркомбинационного перехода возмущенного состояния на пять порядков меньше вероятности перехода. Поэтому, можно было ожидать, что спин-запрещенные не будут играть существенной роли в процессах нелинейной ионизации атома Mg. Однако, как показали проведенные эксперименты - [121,122], интеркомбинационный двухфотонный резонанс между основным синглетным $3s^2\ ^1S_0$ и возбужденным триплетным $3s7d^3\ ^3D$ состояниями оказывает значительное влияние на вероятность четырехфотонной ионизации атома Mg.

В эксперименте для ионизации пучка атомов Mg, использовалось излучение азотного лазера ЛГИ -505, работающего с частотой повторения импульсов 1 кГц. При фокусировке излучения этого лазера короткофокусной линзой с $f = 30$ мм достигалась плотность мощности $12\ \text{МВт}\ \text{см}^{-1}$, что соответствует напряженности поля $\sim 2 \cdot 10^5\ \text{В}\ \text{см}^{-1}$. Частота излучения азотного лазера равна $\omega = 29658,73\ \text{см}^{-1}$. Энергия двух квантов этой частоты всего на $0,01\ \text{см}^{-1}$ больше энергии уровня $3s7d^3\ ^3D_2$ атома Mg. Таким образом, ионизация атома Mg излучением с частотой $\omega = 29658,73\ \text{см}^{-1}$ носит квазирезонансный характер (рис..5.15). В проводимом эксперименте измерялась зависимость ионного сигнала от интенсивности лазерного излучения. Интенсивность

излучения изменялась с помощью откалиброванных нейтральных светофильтров. На рис. 5.15 эта зависимость изображена в дважды логарифмическом масштабе. Как известно, в случае нерезонансной многофотонной ионизации зависимость ионного сигнала N_t от интенсивности I в дважды логарифмическом масштабе имеет вид прямой линии, наклон которой $K = \lg N_t / \lg I$ равен числу фотонов, необходимых для ионизации $K_0 = \langle E / \hbar\omega \rangle$. Наличие промежуточного резонанса приводит к тому, что величина K уже не характеризует степень фотонности процесса ионизации и может быть как больше, так и меньше значения K [123]. На рис. 5.15 экспериментально полученная зависимость $\lg N(\lg I)$ имеет сложный вид. При относительно низких интенсивностях это прямая с наклоном $K = K_0 = \langle E_0 / \hbar\omega \rangle = 3$, с увеличением интенсивности наклон зависимости сначала возрастает до $K \sim 5$, а потом уменьшается до $K \sim 1,5$ и снова увеличивается до $K \sim 2,6$. Такой изгиб зависимости $-\lg N(\lg I)$ с восстановлением первоначального наклона характерен для прохождения резонанса за счет динамического Штарк-эффекта с изменением интенсивности излучения [124]. Действительно, если штарковский сдвиг уровня в лазерном поле происходит в направлении уменьшающей расстройку частоты излучения с энергией уровня, то при увеличении поля этот сдвиг может скомпенсировать расстройку, приводя к резонансу и, тем самым, повышая вероятность ионизации. Так как в этом случае с ростом интенсивности излучения возрастает вероятность ионизации, то будет увеличиваться и наклон зависимости $\lg N(\lg I)$. Дальнейшее повышение интенсивности приведет к расстройке резонанса, следовательно, к уменьшению наклона зависимости $\lg N(\lg I)$. В нашем случае Штарк-сдвиги основного $3s^2\ ^2S_0$ и возбужденного $3s7d^3\ ^3D_2$ состояний имеют разные знаки, в результате чего с увеличением поля происходит подстройка в резонанс. Для оценок в качестве величины дипольной поляризуемости основного состояния мы взяли значение, вычисленное в работе [88] $\alpha_{\text{осн}} = 2 \cdot 10^{-12} \text{ см}^{-1} (\text{В/см})^{-2}$ на частоте $\omega = 29658 \text{ см}^{-1}$. Отсюда, сдвиг основного состояния в максимальном поле $\epsilon = 2 \cdot 10^5 \text{ Всм}^{-1}$ равен $\Delta E_{\text{осн}} = -1/4 \alpha \epsilon^2 = -0,02 \text{ см}^{-1}$. В качестве изменения энергии возбужденного состояния можно взять значение колебательной энергии электрона в поле волны, так как энергия связи электрона с состоянием $3s7d^3\ ^3D_2$ в 12 раз меньше энергии фотона лазерного излучения, $\Delta E_{\text{возб}} = e^2 \epsilon^2 / 4m\omega^2 \approx 0,005 \text{ см}^{-1}$. Таким образом, суммарное изменение расстояния между основным и возбужденным состояниями равно $\Delta E = 0,025 \text{ см}^{-1}$. Эта величина в 2,5 раз больше

первоначальной расстройки резонанса в слабом поле $\Delta \approx 0,01\text{см}^{-1}$. Проведенные оценки показывают, что величина сдвигов уровней в поле достаточны для того чтобы с увеличением напряженности поля от $2 \cdot 10^4$ до $2 \cdot 10^5 \text{Всм}^{-1}$ выполнялись последовательно условия резонансной и нерезонансной ионизации [125]. Все сказанное полностью объясняет вид зависимости изображенной на рис..5.15.

Отметим, что подобные зависимости наблюдались и в эксперименте [126], в котором в резонанс подстраивался уровень, переход в который разрешен по спиновому состоянию. В нашем эксперименте переход $3s^2 \ ^1S_0 - 3s7d^3D_2$ происходит с переворотом спина. В обоих случаях подстройка в резонанс за счет динамического – Штарк - эффекта приводит к значительному увеличению вероятности ионизации. Из этого можно сделать вывод, что интеркомбинационный переход $3s^2 \ ^1S_0 - 3s7d^3D_2$ в атоме Mg имеет относительно большую вероятность и играет существенную роль в процессе трехфотонной ионизации на частоте $\omega = 29658,73 \text{см}^{-1}$.

Таким образом, исследуя частотные зависимости атомов Ca, Ba и Sr, мы пришли к следующим результатам:

- получены дисперсионные зависимости для процессов многофотонной ионизации атомов щелочноземельных атомов в таком широком - спектральном диапазоне;
- исследован процесс многофотонной ионизации с участием запрещенных интеркомбинационных переходов;

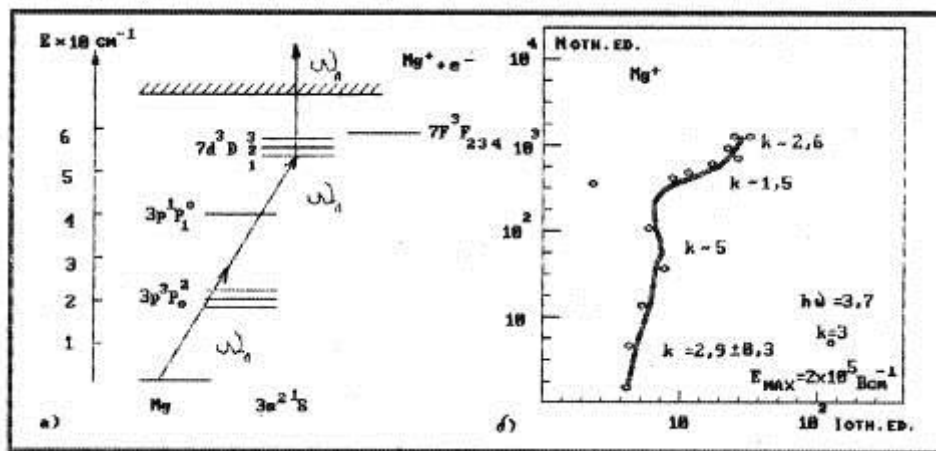


Рис.5.15. Функциональные зависимости выхода однозарядных ионов магния ($\omega = 29658,7 \text{см}^{-1}$) от энергии лазерного излучения

5.7. Выводы

- обнаружены и идентифицированы резонансы, обусловленные синглет-синглет и синглет - триплет переходами;
- рассчитано взаимное влияние электронных конфигураций, используя метод квантового дефекта;
- выявлена однозначная связь между изменением квантового дефекта от главного квантового числа и отношением амплитуд резонансов переходов синглет- синглет и синглет-триплет;
- высокая вероятность интеркомбинационных переходов имеет место только на тех частотах, на которых изменение квантового дефекта синглетного состояния больше изменения квантового дефекта триплетного состояния;
- амплитуда перехода синглет-триплет больше амплитуды перехода синглет-синглет при выполнении условия $d(\mu_T [\mu_s])dn < 0$.

На основании всего вышеприведенного можно утверждать, что при многофотонной ионизации щелочноземельных атомов наблюдение anomalously высоких вероятностей резонансов, вызванных переходами через запрещенные дипольными правилами отбора, триплетные состояния обусловлены перемешиванием электронных конфигураций.

Глава VI. Процесс многофотонной ионизации с участием квадрупольных переходов

В данной главе приведены результаты экспериментального исследования процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов при наличии промежуточных запрещенных квадруполь резонансов с использованием разных схем оптических переходов получения новой спектроскопической информации о вероятностях запрещенных квадрупольных переходов.

6.1. Особенности методики эксперимента

В качестве источника оптического излучения использовались два лазера на красителях с синхронной накачкой твердотельным импульсным лазером. Разделение пучков лазерного излучения основной частоты и второй гармоники осуществлялось с помощью дихроичного зеркала.

Для измерения длины волны лазерного излучения использовался дифракционный спектрофотометр ДФС-24 с рабочим диапазоном измеряемых длин волн 400-800 нм. Измерение длин волн генерации основных гармоник

красителей проводилось непосредственно, длины волн второй и суммарной гармоник красителей Родамин 6Ж и 6 аминофеноленон измерялись по длине волны основной гармоники с последующим пересчетом в длины волн второй и суммарной гармоник по формулам:

$$\lambda_{ii} = \lambda_{осн} / 2 \quad , \quad (6.1)$$

для пересчета во вторую гармонику и

$$\lambda_{\delta um}(HM) = \frac{1}{1/1064 + 1/\lambda_{осн}} \quad , \quad (6.2)$$

для пересчета в суммарную гармонику.

Точность измерения длины волны и ширины спектра лазерного излучения составляет 0,1 А. Ширина спектра лазерного излучения основной гармоники (на λ - 600 нм) составлена 1.2 А, на длине волны 460 нм \sim 0,8 А, что составляет в данной области длин волн \sim 3 см⁻¹.

Перед началом эксперимента проводилась привязка измерительной шкалы спектрофотометра по реперной длине волны He-Ne лазера ($\lambda=632,82$ нм). Измеренная длина волны в воздухе пересчитывалась на вакуумную длину волны по формуле:

$$\Lambda_{vac} = \lambda_{air} + \Delta\lambda \quad , \quad (6.3)$$

поправка $\Delta\lambda$ для разных длин волн бралась из справочных данных [47]. Для измерения средней мощности лазерного излучения в экспериментах использовался германиевый фотодиод ФД-7Г, чувствительный в ближнем УФ - диапазоне и серийный измеритель мощности лазерного излучения ИМ0-2Н. В рабочей области спектра была снята экспериментальная зависимость амплитуды сигнала с фотодиода от средней мощности лазерного излучения, измеряемой ИМ0-2Н. В последующих экспериментах при измерении средней мощности лазерного излучения использовался только линейный участок калибровочной кривой. В случае насыщения сигнала с фотодиода при большой мощности излучения для его ослабления применялись нейтральные светофильтры НС с измеренным коэффициентом ослабления, имеющие пологую характеристику в ближнем УФ-спектральном диапазоне. Для учета спектральной зависимости чувствительности фотодиода в УФ- диапазоне использовались паспортные значения спектральной характеристики германиевого фотодиода.

Длительность импульсов лазерного излучения, а также временной сдвиг между лазерными импульсами разных ступеней возбуждения при

многоступенчатом возбуждении АИС измерялись с помощью коаксиального фотоэлемента ФК-19 и быстродействующего осциллографа С1-75. Измеренная длительность импульса по полувысоте составляла на основной гармонике 20-25 нс и уменьшалась до ~ 12 нс во второй гармонике.

В экспериментах использовалось излучение разных длин волн от видимого $\lambda=660$ нм до ближнего УФ $\lambda=280$ нм. Показатель преломления кварца n , из которого сделана линза, фокусирующая лазерное излучение в атомный пучок, отличается для этих длин волн. Оценка величины хроматической аберрации, т.е. изменения фокусного расстояния f линзы в зависимости от длины волны фокусируемого излучения, проводилась по формуле

$$\frac{1}{f} = (n-1) \left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} \right), \quad (6.4)$$

где $R_{1,2}$ - радиусы кривизны поверхностей линзы. Максимальный сдвиг фокуса (до 2,5 мм) происходил при переходе от УФ-излучения к видимому ~ 660 нм. Компенсация сдвига фокуса производилась подбором и установкой дополнительной длиннофокусной кварцевой линзы в пучок лазерного излучения.

В наших экспериментах точность определения энергии и ширины резонанса определялась шириной лазерной линии $\Delta \approx 4 \cdot k^{1/2} \text{ см}^{-1}$, где k - степень многофотонности процесса. Практически во всех экспериментах реализовывался однофотонный случай возбуждения и ионизации, поэтому эффективная ширина линии генерации лазера составлена $\cong 4 \pm 0.5 \text{ см}^{-1}$. В качестве значения мощности излучения использовалось усредненное по ~ 100 импульсам значение. Среднее значение нестабильности энергии в лазерном импульсе от выстрела к выстрелу составляло $< 20\%$.

В качестве источника нейтральных атомов в экспериментах использовался эффузионный двухкамерный источник (печь с омическим нагревом). Исследуемые атомы вводятся в область взаимодействия в виде пара. Давление пара должно быть достаточно малым, чтобы средняя длина свободного пробега частиц внутри источника превышала диаметр выходного отверстия или была близка к нему.

Оценка плотности нейтральных атомов в области взаимодействия с лазерным излучением производилась следующим образом. Концентрация насыщенного пара рабочего вещества в источнике с регулируемой

температурой T_n связана с концентрацией атомов n_a на расстоянии R от выходного отверстия диафрагмы следующим соотношением:

$$n_n > n_a \frac{\pi R^2}{K} \quad , \quad (6.5)$$

Основные компоненты спектра остаточного газа в вакуумной камере при вакууме 10^{-6} - 10^{-7} Торр соответствуют массовым числам 18, 28. Контроль состава остаточного газа осуществлялся с помощью масс-анализатора МХ-7304, подключенного к вакуумной камере. Доля остальных газов, особенно органических соединений мала.

Однако при загрузке и первом прогреве тиглей с кальцием и стронцием, хранившимися в керосине, масс-спектр начинает определяться тяжелыми органическими соединениями вплоть до ~ 300 массы и их производными. При первой загрузке Ca и Sr производилась тепловая обработка источника, которая заключалась в следующем. Температура испарителя плавно увеличивалась, не допуская ухудшения вакуума хуже $5 \cdot 10^{-6}$ Торр. Если скорость откачки оказывалась недостаточной, то ток нагрева уменьшался до улучшения вакуума. Температура таким образом поднималась в условиях хорошего вакуума, до температуры испарения окислов данного элемента (для кальция 1 К). При этой температуре происходит, по- видимому, разрыв окислов, т.к. температура разрыва пленки соответствует большому давлению насыщенных паров (для Ca > 1 Торр). Происходит выплескивание вещества, что регистрируется по внезапному появлению в масс-спектре интенсивного пика данного элемента и параллельно подтверждается резким улучшением вакуума. После появления потока нейтральных атомов мы уменьшаем температуру испарителя до рабочей, соответствующей плотности атомного пучка 10^9 см^{-3} . Процедура нагрева источника до рабочей температуры занимает 20-30 минут, после чего устанавливается стационарный поток атомов исследуемого элемента из источника. При каждом последующем включении атомного источника перед началом эксперимента проводился контрольный замер плотности потока нейтральных атомов из источника. Для этого измерялась амплитуда сигнала фотоионизации от лазера, настроенного в резонанс с однофотонным легко возбуждаемым переходом (например, в Ca это переход $4s^2 \rightarrow 4s5s^1S_0$) при постоянной средней мощности лазерного излучения. Обычно причиной уменьшения плотности потока нейтралей могло быть загрязнение выходной диафрагмы атомного источника. В этом случае диафрагма прогревалась от-

дельным нагревателем до температуры испарения окислов данного элемента, после чего процедура проверки повторялась.

Высокая точность стабилизации температуры нагревателя (± 1 К), а также контрольные замеры плотности потока нейтралей по величине фотоионизационного сигнала подтверждают, что плотность потока нейтральных атомов из источника на протяжении всех экспериментов была постоянна и соответствовала $\approx 10^9$ ат/см³. При такой плотности атомный поток является эффузионным и можно пренебречь взаимодействием атомов в пучке.

Время-пролетный масс-спектрометр линейной схемы описан в известной работе [140]. Модификации этого прибора при разной геометрии и разных вытягивающих электрических полях показали, что данная схема - оптимальна. Существенным недостатком линейной схемы ВПМС является низкое разрешение. Одним из способов увеличения разрешения является использование ионного зеркала для коррекции хроматического эффекта (масс-рефлектрона). Дополнительно увеличить разрешение масс-рефлектрона позволяет поперечная и продольная фокусировка в масс-рефлектроне с помощью неоднородных электрических полей, обладающих вращательной симметрией [140].

Другим способом увеличения разрешения простой линейной схемы [140] является использование зависящих от времени полей [141]. В нашей установке применение импульсной фокусировки ионного пакета позволило решить сразу две проблемы:

- отсутствие постоянного электрического поля во время взаимодействия лазерного излучения с атомами позволило исключить все эффекты влияния постоянного поля на процесс многофотонной ионизации;

- повышение разрешения время-пролетного масс-спектрометра до ~ 100 позволило разрешать изотопную структуру использованных атомов и избежать влияния на экспериментальные результаты посторонних примесей, имевшихся в вакуумной камере.

Как хорошо известно, дипольные переходы должны хорошо описываться стандартными методами. Совпадение полученных результатов по дипольным переходам позволит удостовериться в корректности проведенных экспериментов и позволит иметь базу, от которой можно отталкиваться при исследовании непонятных явлений.

6.2. Исследование переходов в атомах Sr в области длин волн 287-297 нм

На рис. 6.1 показана дисперсионная кривая зависимости амплитуды ионного сигнала от частоты лазерного излучения для атома стронция в области длин волн 287-297 нм. На кривой видны характерные пики резонансного увеличения ионного сигнала. Рассмотрим процессы, происходящие в данном конкретном эксперименте.

В этом эксперименте использовался перестраиваемый лазер на красителе RhodAIn 6G с последующим удвоением частоты. Полученное ультрафиолетовое излучение перестраивалось в указанном диапазоне и использовалось в эксперименте.

Энергия одного кванта излучения составляла ~ 4.2 eV, потенциал ионизации атома Sr - 5.69 eV – следовательно, в эксперименте реализовывался случай двухфотонной ионизации с однофотонным промежуточным резонансом. Полученная таким образом схема эксперимента являлась наиболее простым и понятным случаем процесса многофотонной ионизации. Сопоставляя энергии кванта лазерного излучения резонансных максимумов с известными табличными значениями [87,87a,87б], можно убедиться в хорошем совпадении экспериментально полученных значений с переходами из основного состояния $5s^2\ ^1S_0$ в возбужденные состояния:

- дипольный переход в состояние $5s6p\ ^4P_1^0$;

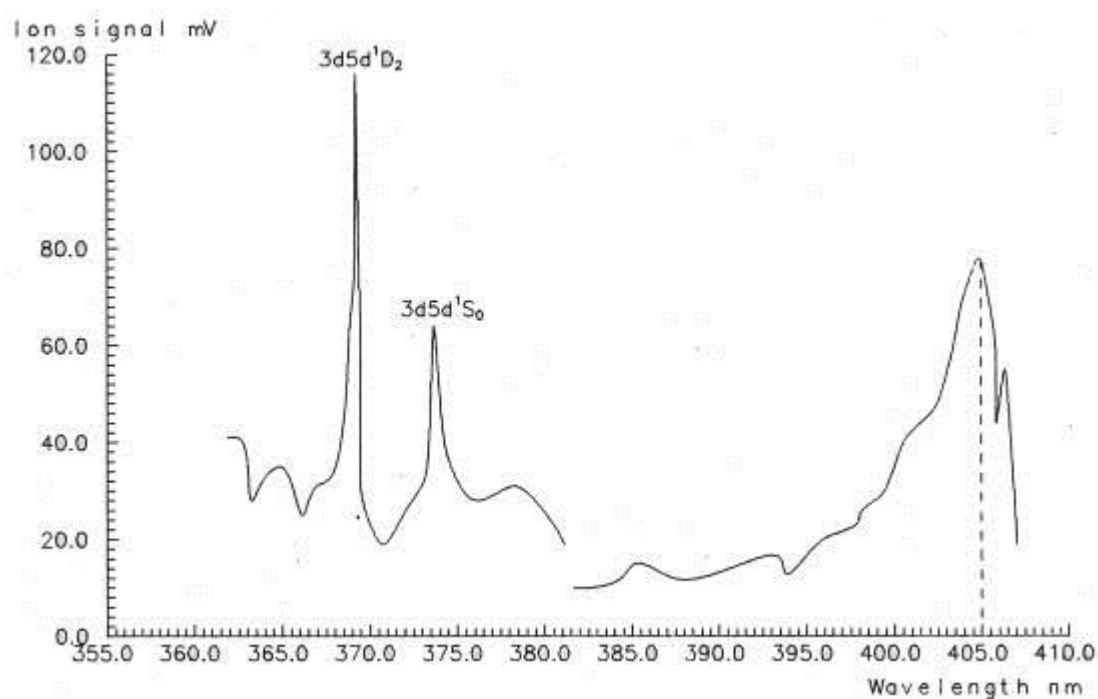


Рис. 6.1. Однофотонные резонансы при двухфотонной ионизации:

- интеркомбинационный переход в состояние $5s6p\ ^3P_1^0$;

- квадрупольный переход в состояние $5s5d^1D_2$.

Оценим вероятности ионизации из возбужденных состояний с помощью формул Берсона [97,98] и полуэмпирического метода Берджеса и Ситона [5]

Сечения	Переход	Берсона	Берджес-С.
σ_i	$5s6p^1P^o$	$6 \cdot 10^{-19} \text{ см}^2$	$7 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$
σ_i	$5s6p^3P;$	$6 \cdot 10^{-19} \text{ см}^2$	$4 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$
σ_i	$5s5d^1D_2$	$5 \cdot 10^{-19} \text{ см}^2$	$2 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$

Интенсивность лазерного излучения в фокусе линзы составляла 10^6 Вт/см² и тогда можно оценить ионизационные ширины для процесса ионизации из возбужденного состояния. Они составляют:

Если учесть реальную ширину лазерной линии генерации, составлявшую ~ 4 см⁻¹, то можно увидеть, что ионизационные ширины очень малы по сравнению с лазерной шириной.

Ионизационная ширина	переход	Берсон	Берджес-Ситон
Γ_i	$5s6p^1p_1^0$	$4 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$	$5 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$
Γ_i	$5s6p^3P_1^0$	$4 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$	$2 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$
Γ_i	$5s5d^1D_2$	$3 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$	$1 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$

Далее необходимо учесть первую ступень процесса - однофотонное возбуждение. Для этого оценивались значения частот Раби, а в качестве матричного элемента перехода использовалось значение, рассчитанное с помощью метода Бейтца и Дамгаард численным счетом на компьютере. Полученные значения полевых ширин вместе с экспериментальным значением ширины, приведены в следующих данных:

состояние	Γ_f	эксперим.
$5s6p^3P_1^0$	8 см^{-1}	8 см^{-1}
$5s6p^3P_1^0$	5 см^{-1}	6 см^{-1}
$5s5d^1D_2$	$3 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$	5 см^{-1}

Из этих показателей видна хорошая корреляция рассчитанных и экспериментальных результатов, за исключением последней строки, где ширина резонанса определяется шириной лазерной линии.

В случае интеркомбинационного перехода реализуется такой же случай, поскольку перемешивание определяется частотой Раби, которая в этом случае также была больше лазерной ширины. В обоих случаях для дипольного и интеркомбинационного переходов полные вероятности ионизации близки к экспериментально полученным значениям, что говорит о достаточном качестве проведенного эксперимента и о достоверности результатов. Однако расчет полной вероятности ионизации для последнего случая (квадрупольный переход) дает значение на 3 порядка меньше экспериментального значения.

6.3. Исследование переходов в атомах Sr в области длин волн 485-505 нм

На рис.. 6.2 показана дисперсионная кривая зависимости амплитуды ионного сигнала от частоты лазерного излучения для атома стронция в области длин волн 485-505 нм. На кривой видны характерные пики резонансного увеличения ионного сигнала. Рассмотрим процессы, происходящие в данном конкретном эксперименте.

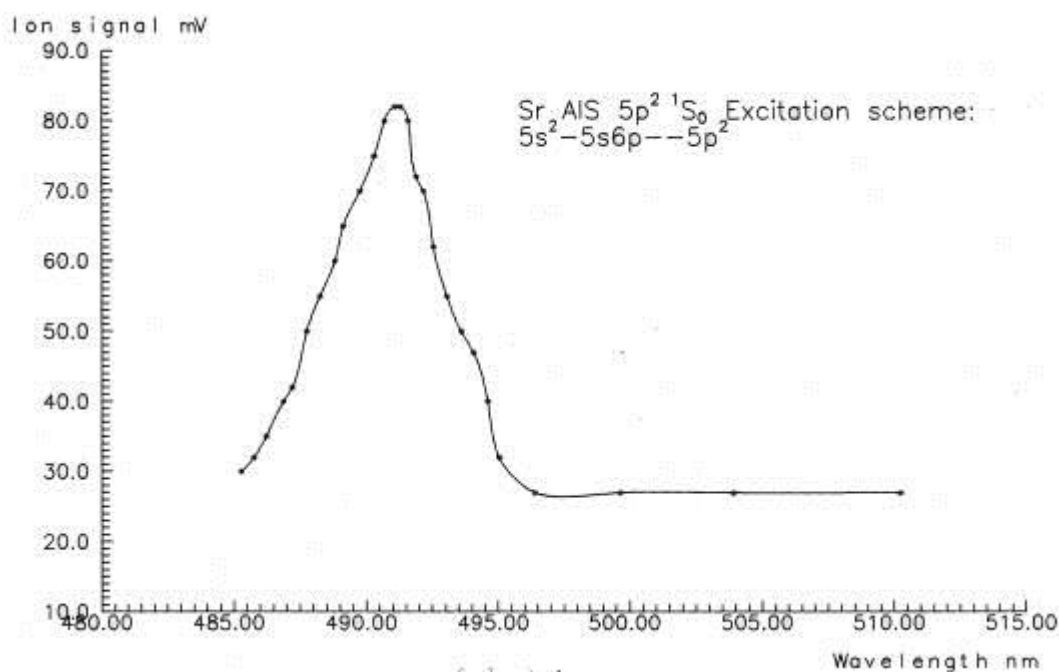


Рис..6.2. Дисперсионная кривая зависимости амплитуды ионного сигнала атома стронция от длины лазерного излучения. В рамке – резонанс, соответствующий однофотонному квадрупольному переходу.

В этом эксперименте использовался один перестраиваемый лазер на красителе Coumarin 30, изучение которого было применено в эксперименте.

Энергия одного кванта лазерного излучения составляла ~ 2.4 eV, что при потенциале ионизации в 5.69 eV дает возможность наблюдать процесс трехфотонной ионизации с однофотонным или двухфотонными резонансами. Этот процесс уже является более сложным по сравнению с предыдущим процессом. На дисперсионной кривой видны одновременно резонансные пики, соответствующие как двухфотонному возбуждению дискретных уровней связанного спектра с последующей однофотонной ионизацией, так и процессу однофотонного возбуждения с последующей двухфотонной ионизацией.

Все экспериментально измеренные ширины резонансов лежат в пределах лазерной ширины и каких-либо отличий заметить не удалось. Полные вероятности ионизации для двухфотонных дипольно разрешенных переходов, оцененные стандартными методами, дают значения и согласуются с экспериментальными данными. Однако такие же оценки, сделанные для квадрупольного перехода, дали значение полной вероятности на 2 порядка меньше экспериментального значения.

6.4. Исследование спектра Ca методом двухцветной многофотонной резонансной ионизационной спектроскопии

Первое наблюдение квадрупольного перехода в кальций было проведено достаточно давно [43] в стандартной одноцветной методике. В этом эксперименте исследовался спектр атома Ca в области длин волн 450-470 нм с использованием лазера на красителе Coumarin 47. На дисперсионной кривой, полученной в этом эксперименте (рис. 6.3), виден пик, соответствующий однофотонному квадрупольному переходу в состояние $4s3d^4D_2$ с последующей двухфотонной ионизацией на фоне пиков, соответствующих двухфотонному дипольному переходу в определенное состояние с последующей однофотонной ионизацией. Стандартные оценки показали, что полная вероятность процесса ионизации с промежуточным квадрупольным резонансом примерно на 4 порядка меньше полученной в эксперименте. Для объяснения этого явления был привлечен тот факт, что второй квант излучения оказывается попадает с небольшой расстройкой ~ 100 см⁻¹ в двухэлектронное состояние $3d4p^1P_1^0$. Однако и этого факта оказалось недостаточно для объяснения столь большого значения вероятности такого процесса.

Для исследования этого явления нами была разработана специальная методика для проведения следующих экспериментов.

6.5. Обсуждение и анализ полученных результатов

В этом эксперименте, ставшим очередным шагом вперед по сравнению с традиционной одноцветной методикой, использовались два лазерных излучения одновременно. Таким образом удалось реализовать гораздо более простой для интерпретации процесс, поскольку все основные шаги этого процесса уже независимо проверялись, рестраиваемый лазер на красителе Coumarin 47 обеспечивал, первую ступень процесса - квадрупольный переход одного из валентных -электронов в состояние $4s3d^1D_2$. Интенсивность лазерного излучения выбиралась таким образом, чтобы процесс ионизации из возбужденного состояния был по возможности минимальным для включения этого конкурирующего процесса из дальнейшего рассмотрения.

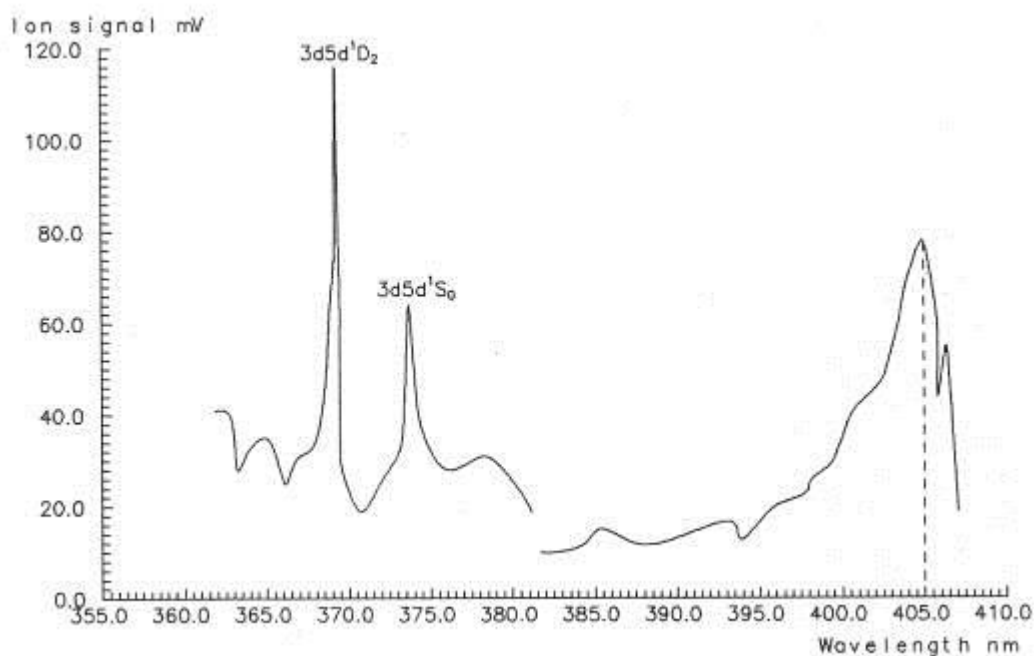


Рис..6.3. Дисперсионная кривая зависимости амплитуды ионного сигнала атома кальция от длины лазерного излучения. В рамке – резонанс, соответствующий однофотонному квадрупольному переходу

На следующем этапе использовалось второе лазерное излучение, представляющее из себя ближнее ультрафиолетовое излучение, полученное сложением частот лазера на красителе б-аминофеноленон и излучения Nd:YAG лазера в нелинейном кристалле, которое осуществляло следующий резонанс, на этот раз уже хорошо известный дипольный, между состояниями $4s3d^1D_2$ и $4s7f^1F_3^0$ (правый резонанс) и - $4s3d^1D_2$ и $4s8f^1F_3^0$ (левый резонанс). При этом

интенсивность второго излучения подбиралась таким образом, чтобы прямой процесс трехфотонной ионизации из основного состояния Ca был минимальным. При выполнении этого условия, а также пространственно – временного совпадения пучков, ионный сигнал соответствует именно той схеме переходов, которую только что разобрали. Независимый контроль в резонансах осуществлялся очевидным методом - перекрыванием отдельных пучков с контролем получившегося эффекта. В случаях двух показанных резонансов перекрывание любого из пучков приводило к полному исчезновению сигнала, т.е ионный сигнал от каждого отдельно взятого пучка не превышал 10 мВ, тогда как при совместном воздействии амплитуда ионного сигнала превышала 100 мВ. Простым суммированием ионного сигнала это объяснить невозможно. Далее, рассматривая энергетический спектр атома Ca, видно очень точное совпадение значения энергии кванта лазерного излучения второй ступени с энергией соответствующего перехода (точность совпадения $\sim 1 \text{ см}^{-1}$). И еще одно немаловажное замечание: правила отбора запрещают двухфотонный переход в конечное состояние из основного на квантах излучения разных лазеров по четности. Поскольку основное состояние Ca четное, то двухфотонным переходом можно попасть только в четное состояние (при каждом дипольном переходе четность должна меняться на обратную).

Резюмируя, можно утверждать, что в данном эксперименте наблюдался процесс многоступенчатой ионизации с промежуточным квадрупольным резонансом.

Оценки для вероятностей фотоионизации делались с помощью формул Крамерса и формул Берсона. При этом были получены следующие значения для Γ_i [138,139].

При интенсивности лазерного излучения второй ступени $\sim 10^8 \text{ Вт/см}^2$ полная вероятность ионизации остается значительно меньше и следовательно, насыщения по выходу в континуум не наблюдается. Рассмотрим теперь процесс перехода из состояния $4s3d^1D_2$ в состояние $4snf$. При указанной интенсивности частота Раби для этого перехода становится значительной и составляет:

Состояние	Γ_i (Берсон)	Γ_i (Крамере)
$4s7f^1F_3^0$	10^{-3} см^{-1}	10^{-5} см^{-1}
$4s8f^1F_3^0$	10^{-4} см^{-1}	10^{-7} см^{-1}

$\sim 8 \text{ см}^{-1}$ для перехода $4s3d^1D_2 \rightarrow 4s7f^1F_3^0$ и

$\sim 1 \text{ см}^{-1}$ для перехода $4s3d^1D_2 \rightarrow 4s8f^1F_3^0$.

Матричные элементы переходов рассчитаны на компьютере методом Бейтса и Дамгаард.

Экспериментально полученное значение ширины резонанса немного отличается для перехода $4s3d^1D_2 \rightarrow 4s8f^1F_3^0$, поскольку ширина линии генерации лазера больше Рабиевской и экспериментальное значение ширины определяется лазерной шириной. Для перехода $4s3d^1D_2 \rightarrow 4s7f^1F_3^0$ экспериментально измеренное значение ширины больше лазерной и составляет $\sim 6 \text{ см}^{-1}$.

Полная вероятность ионизации из состояния $4s3d^1D_2$ составляет величину порядка $\sim 10^{-1}$, что не на много превышает экспериментальное значение полной вероятности ионизации из основного состояния. В работе возможно использовать для описания дипольных переходов, а это не вызывает сомнений, то вероятность заселения состояния $4s3d^1D_2$ близка к единице ($\sim 0,1 \div 0,5$), что вызывает несомненное удивление, поскольку, как показывают расчеты, вероятность должна быть по крайней мере на 2 порядка меньше.

Последняя серия экспериментов посвящена двухцветному эксперименту по спектроскопии состояний с однофотонным квадрупольным резонансом. Схема эксперимента повторяет предыдущую за исключением того, что на второй ступени возбуждения использовалось основное излучение лазера на красителе 6-аминофеноленон, перестраиваемое в диапазоне 600+650 нм. При этом реализовывалась схема процесса:

- однофотонный квадрупольный переход под воздействием излучения лазера на красителе Coumarin 47;
- двухфотонная ионизация из возбужденного состояния $4s3d^1D_2$ с однофотонным промежуточным резонансом под воздействием излучения лазера на красителе 6-аминофеноленон.

Основные технические параметры эксперимента соответствуют предыдущему случаю, за исключением интенсивности лазерного излучения – здесь она существенно видны и достигла $\sim 10^{10} \text{ Вт/см}^2$.

Полученная дисперсионная кривая приведена на рис.. 6.4. На кривой хорошо видны три резонансных пика. Разберем подробнее помеченный как

$3d4p^3D_2^0$, является двухэлектродным связанным триплетным состоянием. Экспериментально измеренная ширина этого резонанса очень велика – 25 см^{-4} , что существенно превышает ширину лазерной линии $\sim 4 \text{ см}^{-1}$. Такое большое значение ширины может говорить о насыщении на каком-либо этапе этого процесса, но самыми вероятными являются:

- ионизация из состояния $3d4p^3D_2^0$,
- перемешивание на переходе $4s3d^1D_2 \rightarrow 3d4p^3D_2^0$.

Стандартные оценки дают следующие значения для этих величин:

$\Gamma_i \approx 10 \text{ см}^{-1}$ для расчетов по формуле Берсона,

$\Gamma_i \approx 0.1 \text{ см}^{-1}$ для $f\nu$ по формуле Крамерса.

Частота Раби для перехода $4s3d^1D_2 \rightarrow 3d4p^3D_2^0$ в таком поле составляет $\sim 50 \text{ см}^{-1}$ и близка к экспериментальному значению.

Полное значение вероятности ионизации атома из с $4s3d^1D_2$ получается близким к 1 и тогда полная вероятность ионизации из основного состояния определяется в основном вероятностью квадрупольного возбуждения состояния $4s3d^1D_2$. Вероятность возбуждения оказывается равной $\sim 10^{-1}$ и согласуется с данными, полученными в других экспериментах, проведенных по этой методике и описанных ранее.

Таким образом, можно сделать вывод, что вероятность возбуждения дискретного состояния $4s3d^1D_2$ атома Са посредством квадрупольного однофотонного перехода на 2+3 порядка выше, чем получается из расчетов! Четкого описания этому эффекту пока нет и не обходимо проводить дополнительные исследования для определения наличия этого эффекта в других атомах, состояниях и в других схемах экспериментов.

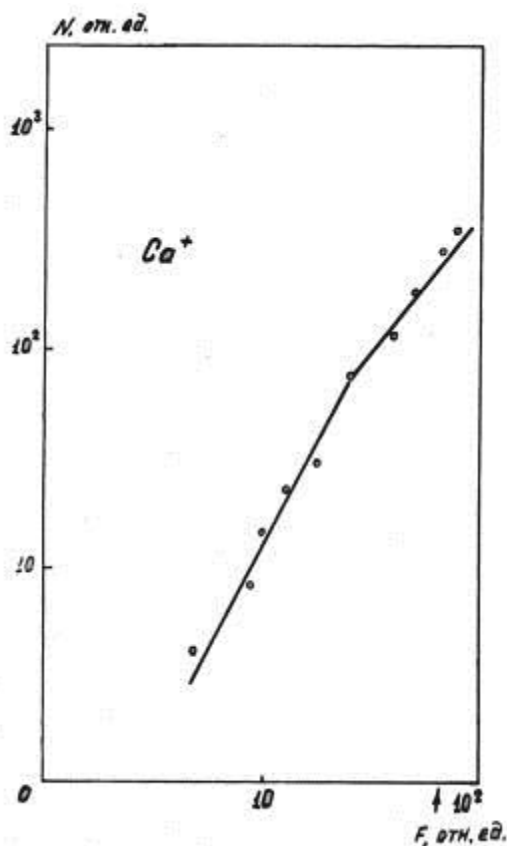


Рис..6.4. Дисперсионная кривая зависимости амплитуд ионного сигнала атома кальция от длины лазерного излучения. В рамке – резонанс, соответствующий однофотонному квадрупольному переходу

Особое место в обсуждении необходимо уделить обсуждению самого большого резонансного пика, полученного в этом эксперименте. Проведение идентификации этого резонанса с энергетическим спектром атома показало, что энергия второго кванта лазерного излучения с хорошей точностью попадает в переход $4s3d^1D_2 \rightarrow 4s4d^1D_2$. Этот переход является также квадрупольным, поскольку идет без изменения четности. Полная вероятность ионизации атома, оцененная из эксперимента, в этом случае составляла ~ 0.5 , т.е. была близка к насыщению. Однако настолько высокая вероятность не должна быть, поскольку это противоречит уже определенной вероятности возбуждения состояния $4s3d^1D_2$. Детальный анализ ситуации показал, что процесс можно рассматривать по двум схемам:

- 1 - квадрупольный переход $4s^2\ ^4S_0 \rightarrow 4s3d^1D_2$;
- квадрупольный переход $4s3d^1D_2 \rightarrow 4s4d^1D_2$;
- однофотонная ионизация из состояния $4s4d^1D_2$.

2 - двухфотонный дипольно разрешенный переход $4s^{21}S \rightarrow 4s4d^1D_2$ с энергией, равной сумме энергий квантов первого и второго лазеров;

- однофотонная ионизация из состояния $4s4d^1D_2$.

Таким образом, проведенные дополнительные исследования показали, что здесь реализуется именно второй случай.

6.6. Выводы

Основные результаты, полученные в данной главе состоят в следующем:

- методами ступенчатого и многофотонного резонансного возбуждения получены спектры:

а) атома Sr в области длин лазерного излучения 480-505 нм и 280-300 нм

б) атома Ca в области длин волн лазерного излучения 600-650 нм и 380-400 нм

- впервые зарегистрирован резонанс, соответствующий квадрупольному переходу $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5s5d^1D_2$ при двухфотонной ионизации атома Sr:

- измерены вероятности ионизации в схеме ступенчатого возбуждения с участием квадрупольных переходов, измерены вероятности дипольных переходов. Сделан вывод о границах применимости одноэлектронного приближения при расчетах параметров переходов в атомах с двумя валентными электронами.

Таким образом, можно сделать заключение, что использованная методика позволяет получать новые данные о слабых переходах. Вследствие высокой вероятности квадрупольных переходов в щелочноземельных атомах, при анализе спектров поглощения необходимо учитывать возможность появления линий поглощения, соответствующих квадрупольным переходам. Стандартные одноэлектронные методы для оценок вероятности, хорошо описывающие дипольные переходы, не дают правильных значений для вероятности квадрупольных переходов. В этих случаях необходимо учитывать такие факторы, как межэлектронные корреляции, перемешивание конфигураций и т.д.

ГЛАВА VII. Процесс многофотонной ионизации, обусловленный переходами через автоионизационные состояния (АИС)

7.1. Многофотонная ионизационная спектроскопия АИС щелочноземельных атомов

Атом Са исследовался нами методом резонансной многофотонной ионизационной спектроскопии при небольших интенсивностях лазерного излучения [142]. На рис. 7.1 изображена дисперсионная кривая процесса двухфотонного возбуждения АИС в атоме Са. В длинноволновом краю дисперсионной кривой широкий максимум на $\lambda \sim 405$ нм соответствует переходу от процесса 3^x - фотонной (область на дисперсионной кривой справа от максимума) к процессу 2^x - фотонной ионизации (область слева от максимума). Энергия возбуждения максимума $E = 49314 \pm 47$ см⁻¹ соответствует первому (4S) потенциалу ионизации Са. При удалении от границы ионизации ионный сигнал уменьшается, что соответствует снижению сечения ионизации. Плавной перестройкой длины волны генерации лазера с использованием двух красителей Родамин 6Ж и 6-аминофеноленон был перекрыт спектральный диапазон в 6000 см⁻¹ над первым потенциалом ионизации Са, но было обнаружено только два резонанса. С помощью поляризационных измерений было определено, что один из резонансов имеет полный момент $J=0$, а другой $J=2$. Сравнение результатов измерения ширин и положения резонансов с теоретическими расчетами, выполненных методом наложения конфигураций в приближении замороженного остова [158] для АИС в этом энергетическом диапазоне позволяет идентифицировать эти состояния как $3d5d \ ^1D_2$ и $3d5d \ ^1S_2$ (табл.7.1).

Расчеты указывают на существование в данном энергетическом диапазоне АИС $3d4d \ ^1D_2$ и $3d4d \ ^1S_0$, но экспериментально они не наблюдались, возможно, вследствие большой ширины и малой вероятности двухфотонного возбуждения из основного состояния.

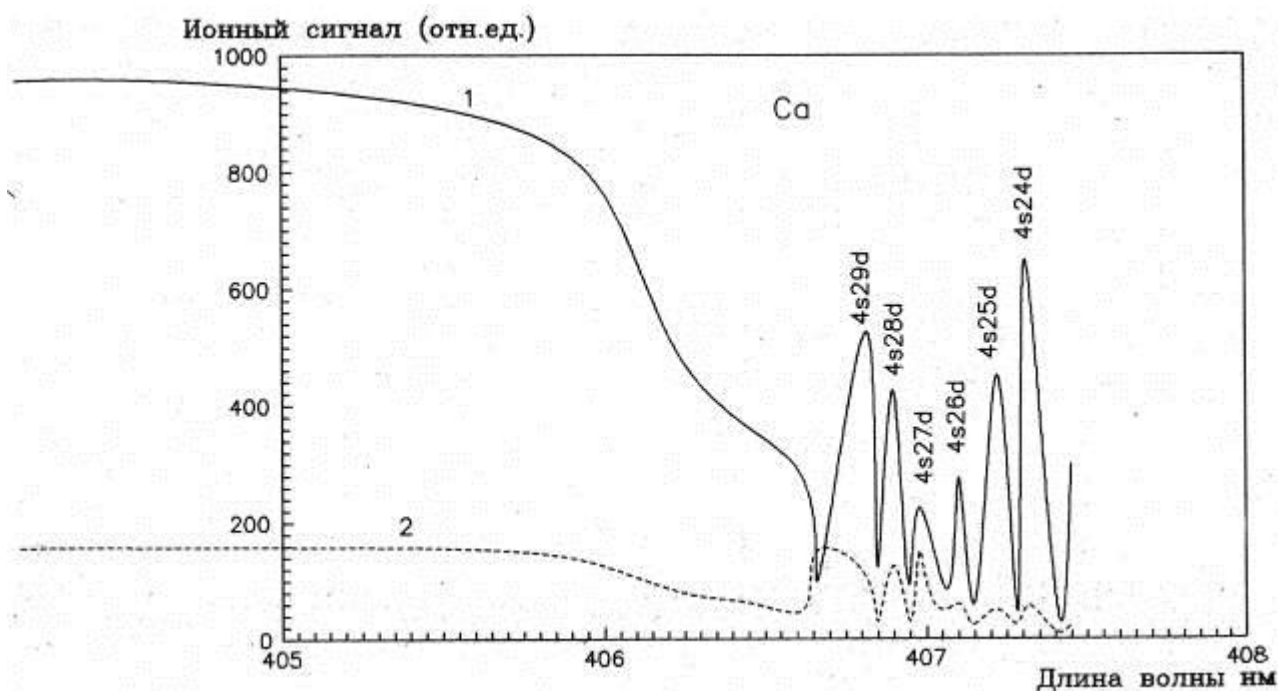


Рис.7.1. Дисперсионная кривая процесса двухфотонного состояния (АИС) в атоме Ca

Таблица 7.1.

Энергии и ширины АИС в Ca

	Энергия возбуждения (см ⁻¹)	Ширина (см ⁻¹)
3d5d ¹ D ₂	54169 ± 15	90 ± 7
3d5d ¹ S ₀	53514 ± 9	116 ± 3
3d4d ³ P ₂	54304 ± 12	32 ± 5

В приближении LS-связи четным термам ¹S и ¹D автоионизация разрешена, поскольку существует континуум с теми же J.L и той же четности, в которой эти термы могут эффективно распадаться. Большой скорости их автоионизации свидетельствуют большие величины АИ ширины резонансов 3d5d J=0,2.

Резонанс с уровнем 3d5d¹D₂ имеет в два раза большую амплитуду, чем резонанс 3d5d¹S₀, а автоионизационная ширина ¹D₂ всего в 1,3 раза меньше чем ширина ¹S₀. Поскольку вероятность возбуждения АИ уровня в случае точного резонанса обратно пропорциональна его ширине:

$$W = \frac{2\Gamma_f^2}{\pi\Gamma_i} - \frac{1}{\Gamma_a}, \quad (7.1)$$

то разницы в ширинах недостаточно для объяснения наблюдаемой разницы в амплитудах резонансов. Поэтому в данном случае при - двухфотонном

возбуждении матричный элемент перехода $s \rightarrow p \rightarrow d$ доминирует над переходом $s \rightarrow p \rightarrow s$ соответственно увеличивая амплитуду резонанса 1D_2 .

В области $\sim 55000 \text{ см}^{-1}$ обнаружено АИС $3d4d^3P_2$ шириной $\Gamma \sim 32 \text{ см}^{-1}$.

Профиль АИ резонанса имеет характерную асимметричную форму Фано с провалом в поглощении на крыле резонанса. Область низколежащих ($\sim 5000 \text{ см}^{-1}$ над первым потенциалом ионизации $\text{Sr } I_{5s[2]} = 45932 \text{ см}^{-1}$) АИС стронция исследовалась нами с использованием излучения перестраиваемого в диапазоне 362-407 нм, что позволило перекрыть диапазон в $\sim 6000 \text{ см}^{-1}$. При таких энергиях фотонов происходил процесс двухфотонного возбуждения АИС. В указанном энергетическом диапазоне было обнаружено 3 АИ резонанса (табл. 7.2), исследование амплитуд резонансов в линейном и циркулярно поляризованных излучениях лазера позволило идентифицировать их как принадлежащие АИС с полным моментом $J=2$ [159].

Таблица 7.2.

Ширины АИС (см^{-1}) в Sr при
разных напряженностях поля (В/см)

АИС	$\varepsilon \sim 3 \cdot 10^8 \text{ V/cm}$	$1.5 \cdot 10^6$	$1.5 \cdot 10^6$ (теор [4])	ε_{\min} [7]	$e=0$ (теор [4])
$4d_{3[2]}4f_{5[2]}$	24	50	36	2.6	14
$4d_{s[2]}4f_{s[2]}$	31	75	61	0.8	18
$5p5d^3D_3$	14	15	-	1.2	8
$4d4f^1F_3$	14	16	-	0.6	10

В LS-классификации указанные резонансы идентифицируются как $4d5d^3P_2$ ($E = 51561 \text{ см}^{-1}$ $\Gamma = 6 \text{ см}^{-1}$), $4d5d^1D_2$ ($E = 51361 \text{ см}^{-1}$ $\Gamma = 7 \text{ см}^{-1}$) и $4d5d^3F_2$ ($E = 51040 \text{ см}^{-1}$ $\Gamma = 6 \text{ см}^{-1}$). Измеренные нами энергии возбуждения АИС конфигурации $4d5d$ с хорошей точностью ($\sim 5 \text{ см}^{-1}$) совпадают с результатами измерений положений резонансов в работе Newsom et al. [150]. Измеренная нами, амплитуда резонансов с термами 3P_2 и 1D_2 примерно одинакова и раза в два больше амплитуды резонанса с термом 3F_2 . Малая ширина резонансов, по-видимому, может служить косвенным свидетельством того, что в данном случае наблюдаются невозмущенные резонансы. Действительно, ближайшее

известное (расстройка $\sim 270 \text{ см}^{-1}$) состояние $4d6p \ ^1P_1^0$ с энергией возбуждения [150] $E=50770 \text{ см}^{-1}$ и шириной $\Gamma=415 \text{ см}^{-1}$, которое частично может перекрываться с уровнем 3F_2 . имеет противоположную четность и в условиях нашего эксперимента (отсутствие постоянного электрического поля) не может влиять на уровень 3F_2 . Уширение и возмущение состояния 3F_2 возможно только в присутствии постоянного электрического поля, которое в этом случае может перемешивать его (в дипольном приближении) с широким состоянием $4d6p$ противоположной четности. Наблюдаемые АИ резонансы двухфотонные, поэтому на форму линий могут оказывать влияние атомные уровни, энергии которых близки к энергии первого кванта. В нашем случае ближайший уровень $5s5p \ ^1P_1^0$ ($E=21698,48 \text{ см}^{-1}$) Его отстройка от энергии фотона весьма велика и составляет $|\nu-\nu_i| \sim 3800 \text{ см}^{-1}$, что позволяет считать его влияние пренебрежимо малым. Поэтому есть основание утверждать, что в результате эксперимента была зарегистрирована невозмущенная форма АИ резонансов с конфигурацией $4d5d$.

Взаимное расположение терма 3F_2 ниже, а терма 3P_2 выше терма 1D_2 по энергетической шкале аналогично взаимному расположению уровней конфигурации $4d6p$ в Sr. В конфигурации $4d5d$ терм 1D_2 может автоионизоваться в LS-связи в отличие от термов 3P_2 и 3F_2 и поэтому ширина автоионизации $4d5d \ ^1D_2$ должна быть значительно больше. Однако экспериментально измеренная нами АИ ширина $4d5d \ ^1D_2$ всего на 1 см^{-1} больше АИ ширин $4d5d \ ^3P_2, ^3F_2$.

Мы не наблюдали, также как и авторы работы [150], $4d5d \ J=0$ уровней. Отсутствие на дисперсионной кривой $4d5d \ J=0$ состояний, вероятно, свидетельствует о том, что серия $J=0$ шире и слабее чем узкие явно выраженные состояния серии $J=2$.

7.2 .Трехфотонное возбуждение АИС в Sr

В области генерации основной гармонике красителя Родамин 6Ж наблюдалась серия двухфотонных резонансов со связанными состояниями [159]. В длинноволновом краю спектрограммы (Рис.7.2) видны пики большей и меньшей амплитуды, соответствующие синглету и триплету конфигурации $5s5d \ ^1D_2$, а также слабый максимум, соответствующий резонансу с триплетным состоянием $5p^2 \ ^3P_0$, пропадающий в циркулярном поле. В коротковолновой

части спектра зарегистрирована группа тесно расположенных резонансов, один из которых на длине волны 560,6 нм соответствует двухфотонному резонансу с известным [87], связанным состоянием $5p^2 \ ^3P_2$. Остальные четыре резонанса соответствуют трехфотонному возбуждению АИС, т.к. их не удается отождествить с двухфотонным возбуждением известных связанных состояний. В соответствии с правилами отбора по J исследование формы и амплитуды резонансов при линейной и циркулярной поляризациях лазерного излучения позволило идентифицировать эти резонансы как АИС с полными моментами $J=3$. Эти резонансы наблюдались ранее экспериментально [28,146,160], причем два резонанса в коротковолновой части спектра на длинах волн 559,2 и 559,7 нм в ионном спектре регистрировались как раздельно [146] так и как один широкий асимметричный резонанс [28]. Идентификация АИС проводилась методом ХФ с наложением конфигураций [144,147]. Резонанс на длине волны 559,7 нм однозначно идентифицирован независимыми авторами [144,147] как принадлежащий состоянию $4d_{5/2} 4f_{5/2}$. В отношении резонансов на длинах волн 559,2 и 562,9 нм результаты идентификации сходны в том, что приписывают их одной конфигурации $4d4f$.

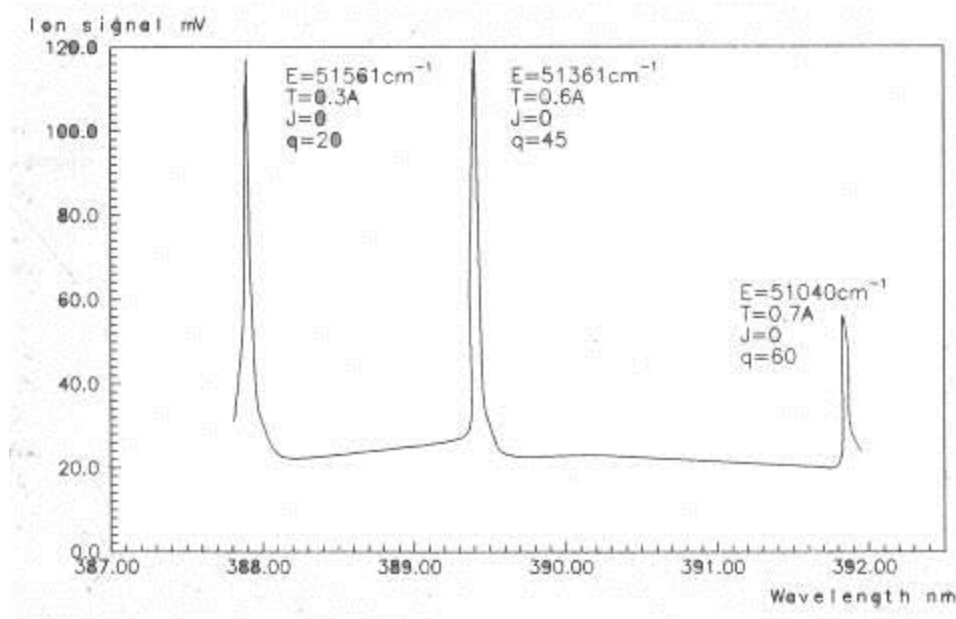


Рис. 7.2 Дисперсионная кривая процесса двухступенчатого возбуждения АИС в атоме Са

Вследствие низкой напряженности лазерного поля $e \sim 3 \cdot 10^5 \text{ В/см}$ мы пренебрегаем случаем, когда эти АИС могут служить промежуточными состояниями при поглощении дополнительного фотона, приводящими, в отличие от автоионизации, к образованию иона в возбужденном состоянии.

Правила отбора разрешают возбуждение АИС с $J=1$ при поглощении трех фотонов. Однако мы не зарегистрировали АИС конфигураций $4d4f$ $J=1$ и $5p5d$ $J=1$, лежащих в данном энергетическом диапазоне. Очевидно, это связано с тем, что при трехфотонном возбуждении резонансы с $J=1$ шире и слабее чем резонансы с $J=3$. Расчет методом ХФ с наложением конфигураций и учет данных электронной спектроскопии [147] по угловому распределению вылетевших фотоэлектронов позволяет идентифицировать резонансы на длинах волн 559,2 и 559,7 нм как принадлежащие в классификации LS-связи конфигурации $4d4f$ 3B_3 , в приближении jI-связи резонансы отождествляются с состояниями $4d(D_{3/2})4f(\frac{5}{2})_3$ и $4d(D_{5/2})4f(\frac{5}{2})_3$ соответственно [144,147].

Резонанс на длине волны 562,8 нм идентифицируется как состояние $4d(D_{5/2})4f(\frac{7}{2})_3$, что в LS-связи обозначается как состояние $4d4f$ 1F_3 . Пик на длине волны 561,7 нм расчет идентифицирует с состоянием $5p5d$ 3D_3 , хотя это триплетное состояние имеет значительную примесь синглета $4d6p$, лежащим в данном энергетическом диапазоне. Из двух уровней конфигурации $4d4f$ 3D_3 резонанс с состоянием $4d_{3/2} 4f_{5/2}$ имеет меньшую амплитуду, чем более широкий асимметричный $4d_{5/2} 4f_{5/2}$ и практически не выделяется на фоне его крыла, лишь несколько искажая его форму. Этим, по-видимому, объясняется то, что этот резонанс не наблюдался в ионном спектре в эксперименте Feldman & Welge [28].

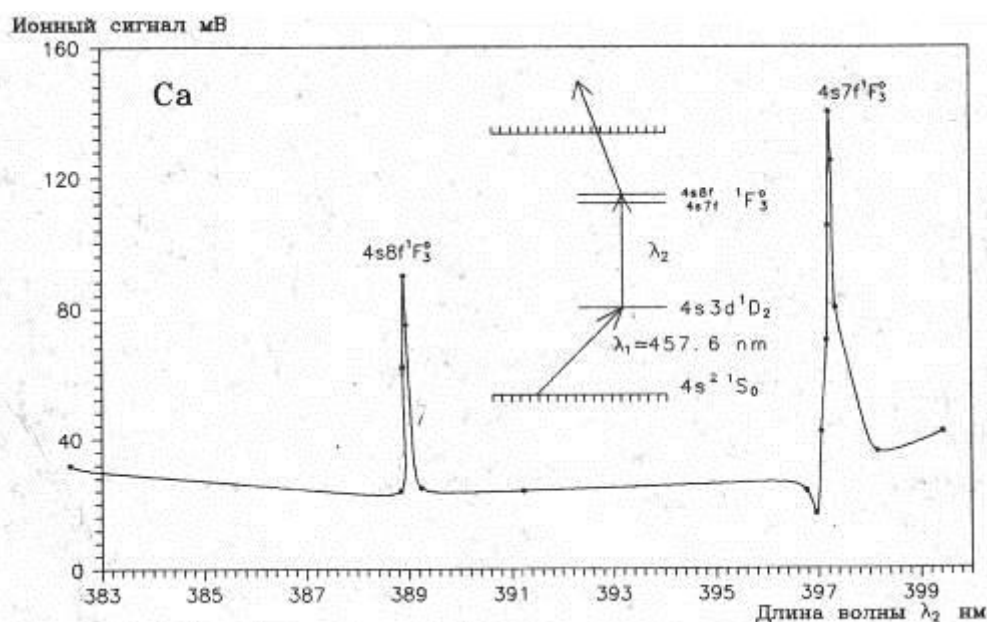


Рис..7.3. Дисперсионная кривая процесса двухступенчатого возбуждения АИС в атоме Ca

Для исследования зависимости величины уширения АИС конфигурации $4d4f$ $J=3$ от величины напряженности лазерного поля нами были проведены эксперименты по измерению формы и ширины АИ резонансов при разных интенсивностях лазерного излучения. Полученные спектрограммы при линейной и циркулярной поляризациях лазерного излучения приведены на рис. 7.4 и 7.5. Результаты измерений ширин АИС при разных напряженностях лазерного поля ε сведены в таблице 7.2 вместе с результатами теоретических расчетов [144].

Хотя полученные нами экспериментальные значения ширин АИС конфигурации $4d4f$ 3D_3 при напряженности поля $\varepsilon \sim 1.5 \cdot 10^6$ В/см в целом согласуются с результатами расчетов ширин АИС в модели уширения, обусловленного однофотонными переходами Раби между уровнями дискретного и автоионизационного спектров, но свидетельствуют о более быстром росте ширины, чем предсказывают расчеты. В четвертой и пятой колонках таблицы сопоставляются данные по измерению ширин при минимальной напряженности поля, необходимой для двухступенчатого возбуждения АИС [145], и рассчитанные по методу ХФ с наложением конфигураций значения ширин автоионизации без учета влияния поля [144]. Видно, что рассчитанные значения ширин примерно на порядок больше

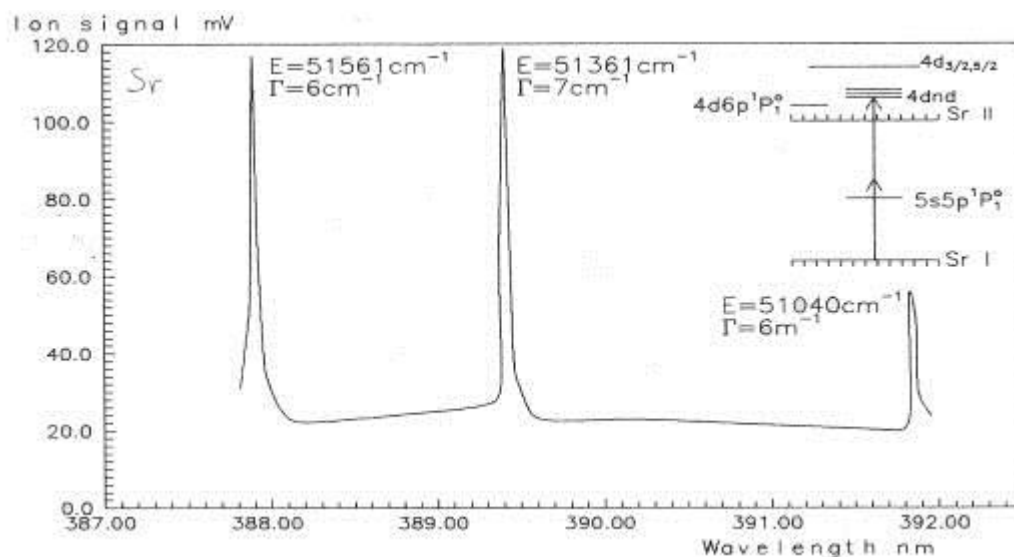


Рис.7.4. Спектрограммы при линейной и циркулярной поляризациях лазерного излучения, полученные для атома Sr.

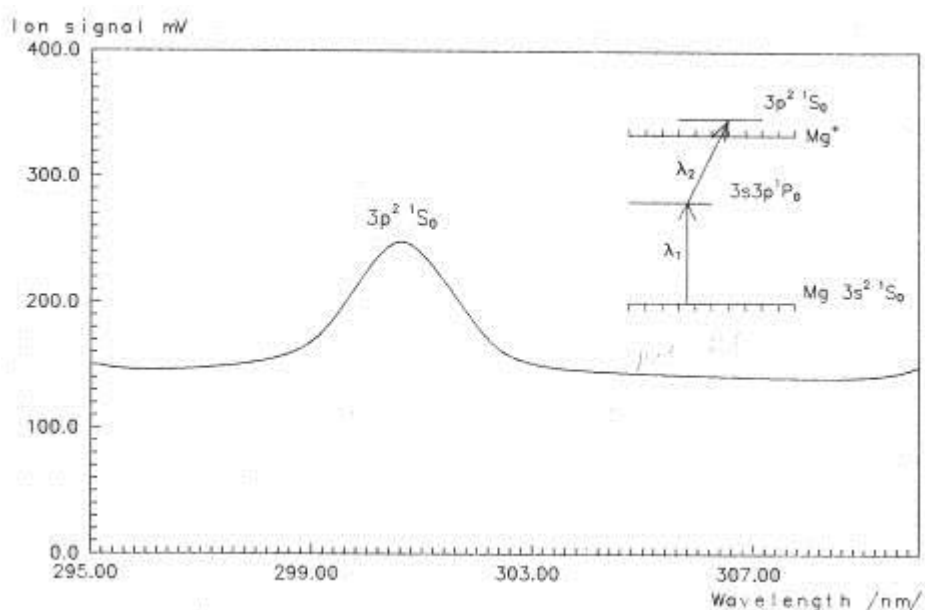


Рис.7.5. Двухступенчатое возбуждение уровней $3p^2 \ ^1S_0$ в магнии

экспериментально измеренных. При минимальной напряженности поля наименьшую ширину $\sim 0.8 \text{ см}^{-1}$ в конфигурации $4d4f^3B_3$ имеет состояние $4d_{5/2} 4f_{5/2}$, которое в то же время максимально уширяется до $\sim 75 \text{ см}^{-1}$ при напряженности поля с $\sim 1.5 \cdot 10^6 \text{ В/см}$. Кроме того, что АИС $4d_{5/2} 4f_{5/2}$ имеет максимальную скорость роста ширины из четырех исследованных состояний, на спектрограмме хорошо видно что профиль данного АИ резонанса имеет наибольшую степень асимметрии, что свидетельствует о сильном взаимодействии АИС с континуумом [142]. Профиль резонанса исследовался нами на соответствие профилю Фано. Полученное значение параметра q , при котором экспериментальный профиль совпал с расчетным равно ~ 6 . Сильная интерференция каналов возбуждения в АИС $4d_{5/2} 4f_{5/2}$ и прямой ионизации в континуум свидетельствует о том, что распад АИС приводит к тому же состоянию иона, что и при прямой ионизации. Т.к. АИС имеет относительно небольшую энергию возбуждения $E=53572 \text{ см}^{-1}$ то, вероятнее всего, распад АИС приводит к образованию иона в основном состоянии. В приближении LS-связи уровень может автоионизоваться, если существует континуум с той же энергией возбуждения и этот континуум формируется в пределе данной серии уровней, т.е. обладает теми же J.L.S и той же четностью, что и данное АИС. Четные термы $^{1,3}S$, $^{1,3}D$ и $^{1,3}G$ могут автоионизовываться в LS-связи, а четным термам $^{1,3}P$ и $^{1,3}F$ в приближении LS-связи автоионизация запрещена, поэтому их АИ ширина должна быть меньше. Действительно, уровни, принадлежащие

одной конфигурации $4d4f$ и обозначаемые в LS-связи как $4d4f\ ^3D_3$ и $4d4f\ ^4F$ имеют существенно различные ширины автоионизации. Четным уровням $4d4f\ ^3D_3$ в LS-связи разрешен распад в D-континуум и они, соответственно, имеют значительно большие ширины (см. таблицу 7.2), чем четный уровень $4d4f\ ^1F_3$ той же конфигурации, которому запрещена автоионизация в приближении LS-связи.

Таким образом, в результате проведенных экспериментов по многофотонному возбуждению АИС были получены новые результаты по спектроскопии низколежащих АИС атомов Ca и Sr. экспериментально обнаружены и идентифицированы резонансы в спектре атома Ca при прямом двухфотонном возбуждении и каскадном возбуждении через промежуточный резонанс. При этом было обнаружено, что при прямом двухфотонном возбуждении матричный элемент перехода $s \rightarrow d$ доминирует над $s \rightarrow s$.

Экспериментально измерены ширины и параметры Фано двухфотонных АИ резонансов в атоме Sr, для которых ранее были измерены только энергии возбуждения. При низкой напряженности поля $\sim 5 \cdot 10^4$ В/см в условиях, когда полевое уширение несущественно, измерена верхняя граница ($< 6\text{ см}^{-1}$) для АИ ширин зарегистрированных резонансов. Обнаружение столь узких невозмущенных АИ резонансов в низколежащей области спектра всего на 5000 см^{-1} выше первого потенциала ионизации атома, что является новым экспериментальным результатом в щелочноземельных атомах.

В области энергий $\sim 53000\text{ см}^{-1}$ было исследовано полевое уширение трехфотонных резонансов в диапазоне полей 10^5 - 10^6 В/см в атоме Sr. Обнаружено резкое уширение АИ резонансов $4d4f\ ^3D_3$ с ростом поля в качественном согласии с результатами экспериментов [146,160]. Максимальная зарегистрированная величина уширения $4d4f\ ^3D_3$ находится в согласии с расчетами, выполненными в модели уширения [144], обусловленной однофотонными переходами Раби между уровнями дискретного и автоионизационного спектров.

7.3. Многоступенчатое возбуждение АИС

В классической однофотонной спектроскопии по спектрам поглощения атомов можно исследовать только такие состояния атомов, которые комбинируют с основным состоянием атома, т.е. имеют четность, противоположную четности основного состояния и полный момент, удо-

влетворяющий правилам отбора для однофотонного перехода [2]. Это существенно ограничивает возможности исследования АИС. Применение метода многофотонного возбуждения позволяет исследовать состояния с $J=0,2$ и разной четности, недоступные в классической однофотонной спектроскопии. Однако, вероятность многофотонного процесса существенно ограничивает возможности исследования АИС. Применение метода многофотонного возбуждения позволяет исследовать состояния с $J=0,2$ и разной четности, недоступные в классической однофотонной спектроскопии. Однако вероятность многофотонного процесса существенно меньше вероятности однофотонного, что при малой величине сечения возбуждения широких АИС приводит к малой амплитуде ионизационного сигнала. Метод многоступенчатой ионизации атомов, когда на каждой ступени возбуждаются реальные промежуточные состояния, имеет преимущества перед классической и многофотонной спектроскопией. Выбор разных промежуточных возбуждающих переходов делает возможным исследование состояний разной четности и с разным полным моментом. Однофотонный процесс возбуждения промежуточных состояний не требует значительной лазерной интенсивности [157]. Действительно, сравнение амплитуд резонансов с АИС $Zr^2 \ ^1S_0$ в прямом и ступенчатом процессах возбуждения в эксперименте [153] показывает, что амплитуда АИС в ступенчатом процессе на четыре порядка больше амплитуды резонанса в прямом, когда он еле виден на фоне шума от прямой ионизации. Кроме того, использование разных комбинаций поляризации излучения позволяет проводить идентификацию полных моментов АИС [148]. К недостаткам метода двухступенчатой ионизации, кроме технических трудностей совмещения пучков излучений от разных лазеров, можно отнести жесткие требования к интенсивности лазера ионизирующей ступени. Действительно, при фотоионизации из возбужденного состояния, когда эффективные сечения уменьшаются по мере снижения энергии связи электрона, сечение ионизации из состояния n^* резко зависит от эффективного главного квантового числа n^* (формула Крамерса)

$$\alpha_n^{(1)} = 3,6 \cdot 10^{-1} (w_n[w])^3 n^{*-5} r_0^2, \quad (7.2)$$

Соответствующие напряженности поля лазерного излучения очень велики ($> 10^6 \text{ В/см}$) [157]. Одним из способов решения этой проблемы является

возбуждение автоионизационных состояний. АИС создают резонансную структуру при фотоионизации атомов, тем самым резко увеличивая сечение ионизации. В щелочноземельных атомах Ba, -Sr экспериментально обнаружены узкие АИС с шириной меньше 10 см^{-1} , в атоме Gd обнаружен АИ резонанс имеющий ширину $\Gamma \sim 0,07 \text{ см}^{-1}$ [155]. При соответствующем сечении ионизации $\sim 10^{-15} \text{ см}^2$ значение интенсивности ионизирующего лазера снижается до 300 Вт/см^2 [157]. В любых двухступенчатых экспериментах, использующих излучение двух разных лазеров, основную техническую трудность представляют пространственное перекрывание и временная синхронизация импульсов излучения от разных лазеров [162]. Проблема синхронизации выстрелов лазеров была решена путем использования единого блока накачки обоих лазеров. Этот способ имеет также то преимущество, что отсутствуют флуктуации времени задержки между импульсами при флуктуациях лазерных импульсов блока накачки от выстрела к выстрелу [162]. Подбор времени задержки между лазерными импульсами производился изменением длины оптического хода лучей. Временная задержка необходима для задания временной последовательности действия импульсов, однако время задержки не должно быть больше времени радиационного распада промежуточного уровня $msnp \ ^1P_1^0$, время жизни которого $\sim 2 \text{ нс}$. Поэтому в наших экспериментах временная задержка была минимальной и лазерные импульсы следовали друг за другом. Другим известным способом [159] проверки двухступенчатого характера возбуждения АИС было измерение величины ионизационного сигнала при блокировке излучения одной из ступеней возбуждения, при этом сигнал уменьшался на два порядка.

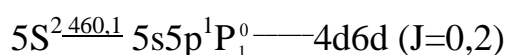
Для продольного совмещения фокусов УФ и излучения $\lambda \sim 460 \text{ нм}$ (Кумарин 47) использовалась дополнительная кварцевая линза, положение которой подбиралось экспериментальным путем по величине сигнала. Для поперечного совмещения фокусов излучение лазера второй ступени возбуждения медленно смещалось в поперечном направлении относительно пучка первого лазера, при этом измерялась амплитуда фотоионизационного сигнала. Максимальная амплитуда сигнала соответствовала положению наибольшего перекрывания поперечных сечений пучков.

В щелочноземельных атомах Mg и Sr была выбрана следующая схема возбуждения АИС: $ms^2 \rightarrow msrnp \rightarrow mp^2 \ ^1S_0$. Данный способ возбуждения поз-

воляет при небольшой напряженности поля получать эффективное возбуждение АИС за счет легко возбуждаемых однофотонных одноэлектронных переходов каждой ступени.

Область энергий возбуждения $\sim 55000 \text{ см}^{-1}$ нейтрального стронция исследовалась нами методом двухступенчатой каскадной селективной фотоионизации. Использование излучения двух лазеров на красителях Кумарин 47 (диапазон перестройки 443-480 нм), 6-аминофеноленон (диапазон перестройки излучения второй гармоники 275-300 нм) и Родамин 6Ж (300-330 нм). Излучения лазеров обеих ступеней возбуждения были синхронизованы во времени.

Излучение лазера первой ступени возбуждения на красителе Кумарин 47 фиксированной длины волны $\lambda=460,1 \text{ нм}$ было настроено в резонанс и возбуждало переход $5S^2 5s5p^1 p_1^0$. После настройки в резонанс интенсивность излучения лазера первой ступени возбуждения была подавлена до уровня сигнала от прямой фотоионизации в континуум $\sim 5 \text{ мВ}$. Вторую ступень возбуждения составляло перестраиваемое излучение второй гармоники 6-аминофеноленона, который возбуждал спектр АИС конфигурации 4d6d по схеме $5s5p^1 p_1^0 \rightarrow 4d6d$. При перекрытии излучения одной из ступеней возбуждения ионизационный сигнал при действии только одной ступени возбуждения составлял 5-10 мВ, при суммарном действии обоих излучений более сотни милливольт. При отстройке лазера первой ступени возбуждения от резонанса с уровнем $5s5p$ на величину его ширины фотоионизационный сигнал также уменьшался на порядок. Таким образом, в нашем эксперименте осуществлялся процесс двухступенчатого селективного возбуждения АИС атома Sr в области энергий $\sim 55000 \text{ см}^{-1}$ по схеме:



Излучения лазеров обеих ступеней возбуждения линейно поляризованы, плоскости поляризаций могли вращаться друг относительно друга с помощью поворота сдвоенных ромбов Френеля, установленных в пучок второй гармоники. Правила отбора по полному моменту для возбуждаемых АИС при двухступенчатом селективном фотовозбуждении вытекают из условия отличия от нуля $3j$ -символов Вигнера [5,148].

1) второй лазер поляризован линейно в том же направлении, что и первый. Возбуждается спектр АИС с $J=0,2$ ($\pi\pi$ -спектр)

2) второй лазер поляризован перпендикулярно первому. Возбуждается спектр АИС с $J=1,2$ ($\pi\sigma$ -спектр).

На рис. 7.6 приведена экспериментальная дисперсионная кривая спектра возбуждения АИС атома стронция. Идентификация АИС по полному моменту J проводилась путем сравнения $\pi\pi$ и $\pi\sigma$ - спектров и применения правил отбора [148]. На верхней дисперсионной кривой (рис. 6.6) $J=0,2$ в низкоэнергетичной области спектра расположен широкий ($\Gamma=222 \text{ см}^{-1}$) симметричный максимум с энергией возбуждения $E=54491 \text{ см}^{-1}$, принадлежащий низколежащему АИС конфигурации $5p^2 \ ^1S_0$. Остальные пять АИС принадлежат конфигурации $4d6d$. Три асимметричных резонанса, соответствующих состояниям с $J=2$: $4d6d \ ^3F_2$ ($E=54890 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma=17 \text{ см}^{-1}$), $4d6d \ ^1D_2$ ($E=55084,4 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma=20 \text{ см}^{-1}$) и $4d6d \ ^3P_5$ ($E=55234 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma=15 \text{ см}^{-1}$) принадлежат к одной серии с состояниями $4d5d \ J=2$. Резонанс с АИС $4d6d \ ^3F_2$ ранее наблюдался Newsom et al [150]. Измеренная нами энергия возбуждения АИС с высокой точностью ($\sim 1 \text{ см}^{-1}$) совпадает с данными работы [150] ($E=54891,3 \text{ см}^{-1}$). Оставшиеся два симметричных узких резонанса с состояниями $4d6d \ ^3P_0$ ($E=54997,5 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma=6 \text{ см}^{-1}$) и $4d6d \ ^1S_0$ ($E=55430 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma=6 \text{ см}^{-1}$) не возбуждаются и отсутствуют в $\pi\sigma$ - спектре. Измеренные ширины АИ резонансов с $J=0$ определяются шириной спектра излучения второй гармоники использованного нами в эксперименте лазера. Результаты наших измерений с хорошей точностью ($\pm 2 \text{ см}^{-1}$) совпали с результатами измерений [149] при двухступенчатом селективном фотовозбуждении через промежуточное состояние $5s7p$:

АИС	Энергия см^{-1}	
$4d6d \ ^3P_0$	54997,5	54999,9 [149]
$4d6d \ ^1S_0$	55430	55428 [149]

Нами не наблюдались следующие члены данных серий $4d7d \ ^3P_0$ и $4d7d \ ^1S_0$ из-за низкой вероятности их однофотонного возбуждения из $5s5p \ ^1P_1^0$. Эти состояния имеют достаточную для регистрации вероятность

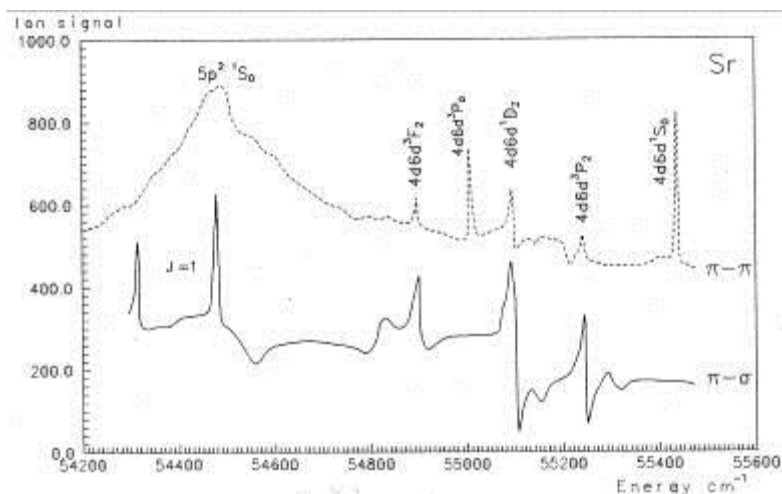


Рис.7.6. Дисперсионная кривая процесса двухступенчатого возбуждения состояния $5p^2$ через промежуточное состояние $5s6p^1P_1^0$.

возбуждения при использовании в качестве промежуточного состояния $4d5p^1P_1$ [149].

На нижней дисперсионной кривой $\pi\sigma$ -спектра (возбуждаются АИС с $J=1,2$) три асимметричных максимума соответствуют АИС конфигурации $4d6d$ $J=2$, в низкоэнергетичной части кривой видны два более симметричных узких АИ резонанса. Энергия возбуждения одного из них очень близка к энергии возбуждения широкого $5p^2$ 1S_0 , отсутствующего, в $\pi\sigma$ -спектре. Нам не удалось приписать указанные АИ резонансы ни к одной из известных конфигураций. Известно лишь то, что указанные четные состояния обладают полным моментом $J=1$. Нам удалось измерить параметры АИС: резонанс с меньшей амплитудой возбуждения имеет энергию возбуждения $E=54308$ cm^{-1} и ширину $\Gamma=9$ cm^{-1} . Второй симметричный резонанс большой амплитуды имеет энергию возбуждения $E=54473$ cm^{-1} и ширину $\Gamma=10$ cm^{-1} . У нас оставались некоторые сомнения относительно идентификации по J резонанса с энергией $E=54473$ cm^{-1} , т.к. вследствие почти одинаковых энергий возбуждения с широким $5p^2$ он мог быть незаметен на верхнем $\pi\pi$ -спектре на его фоне, т.е. иметь полный момент $J=2$. Для окончательного выяснения данного вопроса мы провели эксперимент по прямому двухфотонному возбуждению указанного АИС из основного состояния $5S^2$ атома Sr излучением суммарной гармоники Родамина 6Ж (напряженность поля 10^5 В/см, диапазон перестройки 362-380 нм), однако вследствие низкой вероятности двухфотонного возбуждения из основного состояния указанные АИ резонансы с $J=1$ зарегистрированы не были, что

подтверждает нашу идентификацию по J. Невозможность однофотонного возбуждения четных АИС с J=1 из четного основного состояния и низкая вероятность двухфотонного возбуждения объясняет скудость экспериментальных данных по указанным АИС. Низкая степень асимметрии профиля и малая скорость автоионизации зарегистрированных АИС указывают на малую величину взаимодействия с континуумом. Возможно, указанные состояния принадлежат четным термам $^{1,3}P$ или $^{1,3}F$.

В приближении LS-связи четные термы $4d6d\ ^1S_0$ и $4d6d\ ^1D_2$ должны иметь большую скорость автоионизации, а термам 3F_2 и $^3P_{0,2}$ автоионизация запрещена. Однако измеренная нами экспериментально АИ ширина указанных состояний, в особенности 1S_0 , свидетельствует об обратном.

При прямом двухфотонном возбуждении из основного состояния наблюдается значительная амплитуда резонансов с состояниями $4d5d\ J=2$, АИС $4d5d\ J=0$ не наблюдается вообще.

При каскадном возбуждении через промежуточное состояние $5s5p\ J=1$ в линейно поляризованном поле регистрируются узкие резонансы с состояниями $4d6d\ J=0$ большей амплитуды, чем широкие асимметричные $4d6d\ J=2$. Так как интенсивность излучения обеих ступеней мала ($I < 10^4\ \text{В[см]}$) при каскадном возбуждении $4d6d$, то применима формула Фано для поглощения в окрестности АИ резонанса. Подставив в нее определение параметра Фано q, получим в случае точного резонанса $E=E_a$

$$\sigma / \sigma_0 = \frac{\Gamma_f^2}{\frac{\pi}{2} \Gamma_a \Gamma_i} = \frac{2\Gamma_f^2}{\pi \Gamma_i} \frac{1}{\Gamma_a}$$

Т.е. вероятность возбуждения АИ состояния обратно пропорциональна ширине состояния.

Сравним амплитуды и ширины АИ резонансов одной конфигурации (Рис. 7.1): триплетов $4d6d\ ^3P_0$ и 3P_2 ; и синглетов $4d6d\ ^1D_2$ и 1S_0 .

$4d6d\ ^3P_0$	$4d6d\ ^3P_2$
A=260 mV	A=90 mV
$\Gamma < 6\ \text{см}^{-1}$	$\Gamma=10\ \text{см}^{-1}$

Таким образом, если считать что вероятность возбуждения уровней одной конфигурации $4d6d$ одинакова, то отношение величин амплитуд резонансов A для уровней с разными угловыми частями должно быть равно обратному

отношению их ширин. Отсюда находим истинную ширину уровня $4d6d^3P_0$ $\Gamma=4$ см^{-1} .

Аналогично сравнивая состояния $4d6d^1D_2$ и 1S_0 , находим, что истинная ширина уровня $4d6d^1S_0$ должна быть $\Gamma=3$ см^{-1} .

7.4. Двухступенчатое возбуждение уровней $np^2\ ^1S_0$, в магнии и стронции

Магний, в отличие от других щелочноземельных атомов, имеет очень бедный спектр низколежащих автоионизационных состояний. Исследование его спектра нами проводилось с использованием различных комбинаций излучений основной, второй и суммарной гармоник генерации красителей Родамин 6Ж и 6-аминофеноленон в ступенчатых экспериментах, а также при прямом двухфотонном возбуждении в одноцветных экспериментах. В результате проведенных исследований нам удалось перекрыть диапазон в 10000 см^{-1} над первым потенциалом ионизации магния $I_{3s}=61669,14$ см^{-1} и было обнаружено только одно АИС. Обнаруженное АИС отсутствовало на дисперсионной кривой, полученной при скрещенных линейно поляризованных излучениях лазеров первой и второй ступени возбуждения, что позволило сделать вывод о том, что наблюдаемое АИС имеет полный момент $J=0$. Имеющиеся литературные данные [153,165,166] позволили идентифицировать его как состояние $3p^2\ ^1S_0$, низший член серии $3pnp\ ^1S_0$, сходящейся к потенциалу ионизации $3P\ \text{Mg}^+$. Ранее данное АИС наблюдалось двумя экспериментальными группами [152] (регистрировались фотоэлектроны) и [153]. В эксперименте [153] использовался ионный ВПМС, что позволило селективно детектировать ионы ^{24}Mg и улучшить отношение сигнал/шум при регистрации ионизационного сигнала. В нашем эксперименте использовался ВПМС с фокусировкой ионного пакета импульсным вытягивающим полем, что позволило исследовать акт ионизации в отсутствие постоянного электрического поля и увеличить чувствительность системы регистрации.

Применялась следующая схема каскадного возбуждения спектра АИС атома магния: излучение второй гармоники лазера на красителе Родамин 6Ж фиксированной длины волны $\lambda=285,23$ нм было настроено в резонанс с переходом из основного состояния магния $3s^2\text{—}3z3p\ ^1P^0$. Вторую ступень возбуждения из промежуточного состояния $3s3p$ составляло излучение второй гармоники лазера на красителе 6-аминофеноленон, перестраиваемое в диапазоне 300-330 нм. Таким образом, вторая ступень лазерной системы

возбуждала переход $3s3p^1P_1^0 \rightarrow 3p^2^1S_0$. Оба перехода являются однофотонными хорошо разрешенными переходами, для возбуждения которых не требуется значительной лазерной интенсивности. Для задания последовательности лазерных импульсов во времени использовалась задержка оптической разностью хода лучей относительно друг друга. Поскольку радиационное время жизни уровня $3s3p$ мало (~ 3 нс) оптическая задержка была подобрана таким образом, что лазерный импульс второй ступени возбуждения во времени следовал за первым лазерным импульсом без задержки, но не перекрываясь с ним.

Полученная дисперсионная кривая зависимости величины ионного сигнала от длины волны лазерного излучения изображена на рис.7.7 вместе со схемой процесса возбуждения. АИС имеет на кривой форму широкого симметричного максимума.

Нами были измерены положение и ширина уровня, результаты измерений сведены в табл 7.3 вместе с данными других авторов для сравнения. Наши результаты (колонка η) согласуются с результатами измерения других экспериментальных групп (f и g) и значительно отличаются от теоретических значений. Вычисленные значения энергии возбуждения отличаются от экспериментально измеренных как в большую, так и в меньшую сторону, все вычисленные ширины в целом на $1/3$ больше экспериментально измеренных значений.

Расхождение между вычисленным положением состояния и экспериментально измеренным, по-видимому, объясняется большей, чем была использована при вычислениях энергией межоболочечных корреляций. Вычисления спектра АИС в приближении замороженного остова показали, что существует сильное взаимодействие между конфигурациями $3s^2^1S$ и $3p^2^1S$, которое увеличивает квантовый дефект первого и уменьшает у последнего [165]. Четное АИС $3p^2^1S_0$ легко автоионизуется в континуум $3se1$ той же симметрии и на дисперсионной кривой выглядит как широкий симметричный пик.

Энергия и ширина АИС $3p^2 \ ^1S_0$ атома магния

N Ref.	Энергия cm^{-1}	Ширина cm^{-1}
1	68847.7	331.4
2	68847.7	364.3
3	68145.4	
4	68738	382
5	66982	417
6	68268±11	279±8
7	68277±11	276±11
8	68288±9	292±8

1: R.Moccia P.Spizzo J.Phys.B.1987,V.20,p.1423-31

2: R.Moccia P.Spizzo Photons and continuum states
of atoms and molecules 1987,V.16,p.47-54

3: Rassi et al J.Phys.B.1977,V.10,p.2913-21

4: Mendoza J.Phys.B.1981,V.14,397-409

5: Zatsarinnyi et al Opt.Spectrosc.1984,V.56,p.358-61

6: Bonanno et al Phys.Rev.A.1986,V.34,p.2082-5

7: Bradley et al Phys.Rev.A.1976,V.13,p.1416-21

8: Настоящая работа

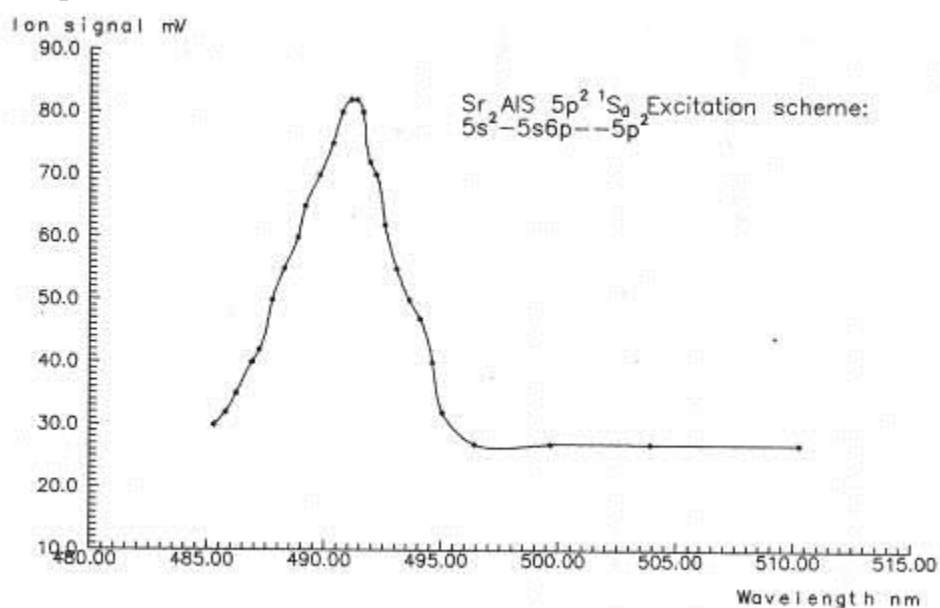


Рис.7.7. Дисперсионная кривая процесса двухступенчатого возбуждения в атоме Sr.

Профиль АИ резонанса исследовался нами на соответствие профилю Фано по формуле:

$$I(e) = I_b + (q + e^2) / (1 + e^2) \quad , \quad (7.4)$$

где $e = 2(E - E_0) / \Gamma$, E_0 энергия резонанса, а Γ его АИ ширина. I_b - фон от прямой ионизации в $3s\epsilon d$ континуум. Подбором параметра q теоретическая кривая подгонялась под форму экспериментальной дисперсионной кривой. Хорошее совпадение форм кривых было получено для значения параметра $q=15$. Вычисления сечения фотоионизации из $1P^o$ состояния предсказывают, что $1S$ резонанс имеет симметричную форму и, соответственно, большую величину параметра q . Действительно, на нашей дисперсионной кривой процесса двухступенчатого возбуждения АИС $3p^2$ через $3s3p$ резонанс имеет Форму широкого симметричного максимума (рис.7.7). В случае прямого (рис.7.8) двухфотонного возбуждения слабая асимметрия профиля резонанса объясняется экспериментальной неточностью измерения амплитуды ионного сигнала из-за его малой величины.

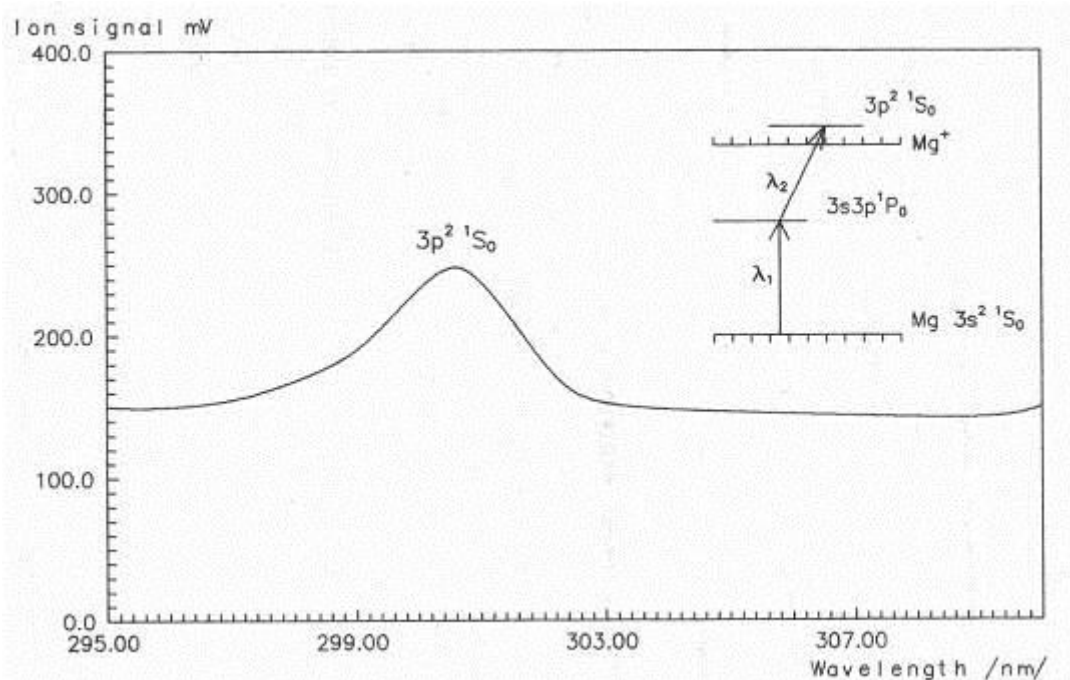


Рис.7.8. Дисперсионная кривая зависимости величины ионного сигнала от длины волны лазерного излучения

Действительно, анализ формулы (7.4) показывает, что максимум резонанса имеет место при энергии $E = E_0 + \Gamma / 2q$ [149]. Подставляя экспериментально измеренные нами значения энергии и ширины резонанса из

таблицы и параметр Фано $q=15$ получаем, что значение энергии возбуждения резонанса $E_0 = 68278 \text{ см}^{-1}$, это значение совпадает с данными [152] и лежит в пределах неточности наших результатов.

Исследование спектра АИС атома Sr проводилось также при каскадном способе возбуждения [164]. Стронций имеет значительно более богатый, по сравнению с более легкими щелочноземельными атомами Mg и Ca, спектр низколежащих АИС. В исследованном энергетическом диапазоне (до 12000 см^{-1} над первым потенциалом ионизации $\text{Sr I} = 45932 \text{ см}^{-1}$) было обнаружено 22 АИС с полными моментами $J=0,1,2,3$, принадлежащих различным АИ сериям. Восемь из них с $J=1$ нам идентифицировать не удалось ввиду отсутствия литературных данных.

АИС $5p^2 \ ^1S$ является первым, самым низколежащим членом АИ серии $5pnp \ ^1S_0$, сходящейся к потенциалу ионизации $5P_{3/2} \text{ Sr}^+$ ($I_{5p}=704448 \text{ см}^{-1}$). Процесс двухступенчатого возбуждения осуществлялся по следующей схеме: излучение лазера на красителе Кумарин 47 фиксированной длины волны $\lambda=460,1 \text{ нм}$ было настроено в резонанс с переходом из основного состояния атома стронция $5s^2 \text{—} 5s5p \ ^1P_1^0$. Вторую ступень возбуждения составляло излучение второй гармоники лазера на красителе 6-аминофеноленон, перестраиваемое в диапазоне 300-330 нм. Длина волны излучения второй ступени возбуждения сканировалась в окрестности перехода $5s5p \ ^1P_1^0 \text{—} 5p^2 \ ^1S_0$. Таким образом, в эксперименте использовалась методика возбуждения ICE, при которой все возбуждаемые на каждой ступени переходы являются хорошо разрешенными однофотонными одноэлектронными переходами. На каждой ступени возбуждения переход совершает один электрон, второй электрон участия в процессе не принимает. Для эффективного возбуждения таких переходов не требуется значительной интенсивности лазерного излучения, что позволяет наблюдать невозмущенный спектр АИС. Дисперсионная кривая зависимости амплитуды фотоионизационного сигнала при сканировании длины волны лазера второй ступени возбуждения приведена на рис. 7.6 По оси абсцисс отложена энергия возбуждения в см^{-1} , по оси ординат амплитуда фотоионизационного сигнала в мВ. Широкий симметричный максимум на верхней дисперсионной кривой ($\pi\pi$ -спектр, плоскость поляризации лазера второй ступени возбуждения параллельна плоскости линейной поляризации первого лазера) соответствует АИС $5p^2 \ ^1S_0$. Результаты наших измерений -

энергии и ширины состояния $E=54491\pm 20 \text{ см}^{-1}$ и $\Gamma=222 \text{ см}^{-1}$ совпадают с данными работы [149]. При взаимно перпендикулярных плоскостях поляризаций лазеров (нижняя дисперсионная кривая, яс-спектр) АИС $5p^2$ с $J=0$ не возбуждается и отсутствует на дисперсионной кривой.

На рис. 7.9 приведена полученная нами дисперсионная кривая процесса двухступенчатого возбуждения состояния $5p^2$ через промежуточное состояние $5s6pP_1^0$. В этом эксперименте излучение второй гармоники лазера на красителе Родамин 6Ж первой ступени возбуждения резонансно возбуждало переход $5s^2 \rightarrow 5s6p^1P_1^0$. Излучение второго лазера на красителе Кумарин 30 возбуждало переход $5s6p \rightarrow 5p^2$. Профиль АИ резонанса и его параметры совпадают с результатами измерений при ступенчатом возбуждении через промежуточное состояние $5s5p$.

Уровень $5p^2 \ ^1S_0$ оказывает сильное возмущающее воздействие на АИС серии $4dnd$, уширяя их. Взаимное влияние АИ серий $5pnp^1S_0$ и $4dnd$ проявляется во взаимном подавлении поглощения в этих сериях в диапазоне энергий выше уровня $5p^2$ (т.е. выше порога поглощения серии $5pnp$ $J=0$). Таким образом, проведенное исследование в атомах Mg и Sr показало, что резонанс с низшим членом mp^2 серии $mpnp^1S_0$ имеет форму широкого симметричного максимума. Уровень эффективно фотовозбуждается из нечетного состояния $msmp^1P_1^0$. В атоме Sr АИ уровень сильно возмущает спектр АИС серий $4dnd$ в данном энергетическом диапазоне.

Измеренные энергии и ширины конфигурации $mp^2 \ ^1S_0$ обоих элементов хорошо согласуются с данными других групп [149]. Зарегистрированный профиль АИ резонанса $3p^2 \ ^1S_0$ атома магния имеет слабую степень асимметрии, согласующуюся с оценочным значением параметра Фано $q \sim 26$.

Однако АИС $5p^2 \ ^1S_0$ Sr имеет симметричный профиль $q \gg 1$ резонанса, что не согласуется с большой величиной его АИ ширины ($\Gamma = 222 \text{ см}^{-1}$). Действительно, низколежащие АИС имеют близкие радиальные части волновых функций внутреннего и внешнего электронов и это обуславливает большую величину межэлектронного взаимодействия и большую степень асимметрии профилей резонансов этих состояний в отличие от высоколежащих Ридберговских АИС, где сильное различие параметров орбит внутреннего и внешнего электронов приводит к узким симметричным АИ резонансам. Поэтому регистрация широкого симметричного профиля АИС $mp^2 \ ^1S_0$ в магнии

и стронция является интересным экспериментальным фактом, требующим своего объяснения.

В области генерации красителя Кумарин-120 нами было обнаружено три двухфотонных АИ резонанса с энергиями возбуждения всего на -1000 см^{-1} больше первого потенциала ионизации стронция.

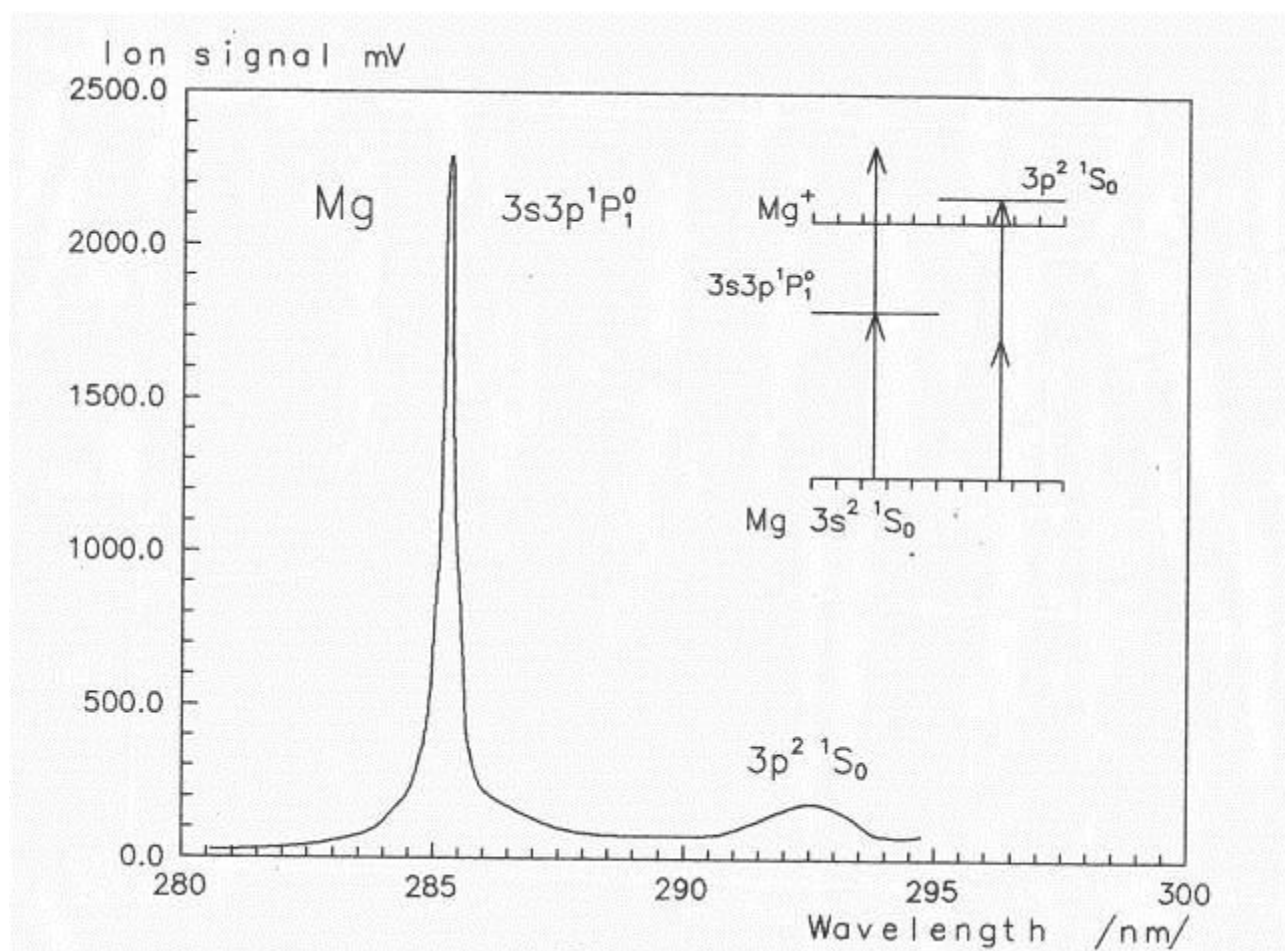


Рис. 7.9. Дисперсионная кривая процесса двухступенчатого возбуждения стронция $5p^2$ через промежуточное состояние $5s6p^1p_1^0$ атома магния

Резонансы наблюдались как при линейной, так и при циркулярной поляризации лазерного излучения, что позволило идентифицировать их, как обладающие полным моментом $J=2$. Один из них с энергией возбуждения $E=46385 \text{ см}^{-1}$ наблюдался ранее [151] и был идентифицирован как $4d^{21}D_2$. Оставшиеся два АИ резонанса с параметрами $E=46901 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma=18 \text{ см}^{-1}$ и $E=46053 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma=20 \text{ см}^{-1}$ ранее не наблюдались.

В экспериментах по ступенчатому возбуждению спектра АИС по схеме: $5s^2 \rightarrow 5s5p \rightarrow \text{АИС}$ был перекрыт спектральный диапазон $54000\text{--}58000 \text{ см}^{-1}$ и было зарегистрировано 6 неидентифицированных АИ резонансов.

Поляризационные измерения позволили определить, что резонансы соответствуют АИС с полным моментом $J=1$. На дисперсионной кривой (рис. 4.4) видны три из них, возбуждавшиеся в диапазоне генерации второй гармоники красителя Родамин 6Ж. Результаты измерений параметров указанных четных неидентифицированных АИ резонансов с полным моментом $J=1$ сведены в табл 7.4.

Таким образом, применение метода каскадного возбуждения через промежуточное нечетное состояние $msmp^1P_1^0$ позволило получить высокую вероятность возбуждения АИС при низкой напряженности поля $< 10^4$ В[см. Зарегистрированные АИ резонансы с состояниями $4d6d$ $J=2$ шире и имеют большую степень асимметрии, чем резонансы с $J=0$. Впервые экспериментально измерены параметры уровней $4d6d$ $J=2$ в атоме стронция.

Таблица 7.4.

Энергии и ширины, четных АИС с $J=1$ в атоме Sr		
№	Энергия E (см^{-1})	Ширина Γ (см^{-1})
1	54140	-
2	54315	9
3	54479	10
4	55800	6
5	57314	16
6	57646	12

Обнаружен новый автоионизационный резонанс в атоме стронция с энергией возбуждения $E=54491 \pm 20$ см^{-1} и шириной $\Gamma=222$ см^{-1} . Измеренные параметры уровня с хорошей точностью согласуются с данными независимого эксперимента [149] и интерпретируются как уровень $5p^2$ 1S_0 [143]. Полученная экспериментальная информация является принципиально новой, поскольку раньше данная классификация давалась связанному состоянию в дискретном спектре.

7.5. Экспериментальное исследование ширин АИС

В табл 7.1 приведены полученные нами экспериментальные данные по измерению энергий и ширин АИС серий $4dnd$ ($n=4-7$) $J=0,2$, сходящихся к потенциалам ионизации $4d_{3/2,5/2}$ Sr^+ . Цифры в квадратных скобках рядом с

некоторыми АИС указывают ссылки на экспериментальные работы, из которых взяты значения энергии и ширины данного состояния. В последней колонке таблицы приведены значения эффективного квантового числа для каждого зарегистрированного АИС, вычисленного нами из критерия регулярности серии [120]. Критерий регулярности АИ серии состоит в том, что расстояние между каждым резонансом и пределом данной серии должно подчиняться правилу:

$$I_{4d} - E = R / \nu^2 \quad , (7.5)$$

где $R=13,6$ эВ - это постоянная Ридберга, ν - эффективное квантовое число, I_{4d} - предел серии АИ резонансов. Величина квантового дефекта $\mu=n-\nu$, где n - это главное квантовое число, принимающее целочисленные значения. Значение μ для данной серии слабо зависит от n . Наибольшую величину отклонения от постоянного для данной серии значения μ имеет для низколежащего широкого $4d^2$, однако, это может быть также связано с ошибкой определения положения максимума АИ резонанса для широкого пологого пика. Постоянство величины квантового дефекта свидетельствует о том, что исследуемые АИ серии регулярны. В регулярной серии контуры последовательных линий должны быть подобны, т.е. в рамках этого приближения параметры контуров q и p , ответственные за степень асимметрии АИ резонансов, не должны сильно меняться в пределах серии. Однако состояния $4d6d$ $J=2$ имеют явно асимметрично уширенный профиль по сравнению с узкими симметричными $4d5d$ $J=2$ [164]. Ширины АИС $4d6d$ $J=2$ в два-три раза больше ширин АИС $4d5d$ $J=2$. Из данных таблицы также видно, что серии $4dnd$ в области энергий $n=6-7$ демонстрируют отклонение от нормальной зависимости АИ ширины $\Gamma \sim \nu^{-3/2}$ при которой электрон - электронное взаимодействие с ростом n ослабляется, уменьшая скорость автоионизации. Причиной уширения АИС серии $4dnd$ $J=2$ в области энергий ~ 55000 см⁻¹ может быть влияние уровня $5p^2$ *S, который оказывает сильное возмущающее влияние на серию $4dnd$. АИС $5p^2$ является низшим уровнем серии $5pnp^1S_0$, сходящейся к третьему потенциалу ионизации Sr^+ $5p_{3/2}$ (70448,8 см⁻¹), т.е. является первым уровнем поглощения АИ серии. Взаимное влияние двух АИ серий $4dnd$ $J=2$ и $5pnp^1S_0$, имеющих различные пороги ионизации, приводит к возникновению эффекта "спектрального

Энергии и ширины АИС серий 4dnd J=0,2 в Sr

Члены АИ серий	Энергия (см ⁻¹)	Ширина (см ⁻¹)	Эфф.кв.числ ν
4d ² ³ P ₂	44729,7	—	2,64
4d5d ³ P ₂	51561	6	3,51
4d6d ³ P ₂	55234	15	4,57
4d ^F ₂	41300	—	2,39
4d5d ³ F ₂	51040	6	3,41
4d6d ³ F ₂	54890	17	4,43
4d ² ¹ D ₂	46385	225	2,76
4d5d ¹ D ₂	51361	7	3,41
4d6d ¹ D ₂	55084	20	4,39
4d ² ¹ S ₀	37160,3	—	2,15
4d5d ¹ S ₀	—	—	—
4d6d ¹ S ₀	55430	6	4,53
4d7d ¹ S ₀	57142,9	28	5,5
4d ² ³ P ₀	44525,9	--	2,62
4d5d ³ P ₀	--	--	--
4d6d ³ P ₀	54997	7	4,47
4d7d ³ P ₀	56795,4	8	5,45

отталкивания" - [120]. Эффект отталкивания известен в дискретных спектрах, когда уровень одной из конфигураций оказывается в середине группы уровней другой конфигурации; взаимодействие конфигураций заставляет группу уровней отодвигаться от возмущающего уровня. В нашем случае взаимодействие конфигураций проявляется во взаимном подавлении поглощения в АИ сериях, начиная с уровня 5p² и выше по энергии. Эффект "спектрального отталкивания" приводит к тому, что поглощение в серии с меньшим порогом ионизации (4dnd J=2) увеличится в области энергий ниже начала поглощения другой серии (5pnp¹S₀). Вблизи начала поглощения серии с более высоким порогом ионизации (АИС 5p²серии 5pnp¹S₀) поглощение в обоих каналах будет подавлено. Таким образом, межсерийное взаимодействие должно стремиться сгладить скачок поглощения в начале спектра поглощения серии с более высоким порогом ионизации. Взаимное подавление поглощения в

обоих сериях приводит к тому, что амплитуда резонанса с АИС $5p^2 \ ^1S_0$ в несколько раз меньше амплитуды резонансов с состояниями $4d5d \ J=2$. Амплитуды резонансов на дисперсионной кривой нормированы на изменение лазерной интенсивности во всем диапазоне генерации, резонанс с состоянием $4d6d \ ^3F_2$ не наблюдался из-за малой амплитуды его возбуждения, остальные резонансы с состояниями $4d6d \ J=0,2$ лежат за пределами генерации лазера. При ступенчатом возбуждении амплитуда резонансов с $4d6d$ имеют тот же порядок, либо меньше, чем $5p^2$.

В настоящее время не существует систематических экспериментальных данных по измерению зависимости ширины АИС при переходе к более тяжелым атомам. Для многозарядных ионов существует формула зависимости АИ ширины от Z , полученная в первом порядке теории возмущений [156].

Для нейтральных атомов отдельные экспериментальные данные относятся к измерению ширин узких АИС высоковозбужденных Ридберговских состояний щелочноземельных атомов [47], в спектре иттербия, гадолиния [154,155]. При сравнении имеющихся экспериментальных данных заметна тенденция к уменьшению ширины АИС при переходе к более тяжелым атомам [161].

В одночастичном приближении АИ распад можно представить следующим образом: $\alpha_1 \alpha_2 \rightarrow \alpha_3 k$, где α_i ($i=1,2,3$) описывает набор квантовых чисел связанных состояний, k -состояние свободного электрона. Ширина АИ уровня:

$$\Gamma \sim |V(\alpha_1 \alpha_2, \alpha_3 k)|^2, \quad (7.6)$$

где V - оператор межэлектронного взаимодействия. Величина матричного элемента $V(\alpha_1 \alpha_2, \alpha_3 k)$ определяется степенью перекрытия и взаимным расположением узлов одноэлектронных орбиталей электронов. Будем считать, что оба валентных электрона движутся в потенциальной яме остова (ядро атома плюс все внутренние электронные оболочки). Глубина этой ямы пропорциональна заряду ядра Z . С ростом атомной массы возрастают главные квантовые числа n валентных электронов и число осцилляции радиальных орбиталей в основной области, что приводит к уменьшению матричного элемента (7.6). В предположении прямоугольной потенциальной ямы глубиной Z расчет матричного элемента позволил получить качественную оценку для зависимости АИ ширины от Z [154]:

$$\Gamma \sim 1 / Z^2 \quad (7.7)$$

Таким образом, с увеличением заряда ядра (соответственно, и атомной массы для нейтральных атомов) должно наблюдаться сужение АИС одной конфигурации. Однако существующие эксперименты по измерению ширин АИС в различных атомах выполнены для различных конфигураций, поэтому сравнение ширин не совсем корректно. Поэтому нами были проведены эксперименты по измерению АИ ширин уровней одной конфигурации в щелочноземельных атомах. Были проведены измерения АИ ширин двух конфигураций: конфигурации $mp^2 \ ^1S_0$ в атомах Mg и Sr и конфигурации $nd(n+2)d \ J=0,2$ в атомах Ca и Sr. Результаты измерений сведены в таблице 7.6. В трех колонках таблицы расположены экспериментальные АИ ширины по мере возрастания атомной массы Mg, Ca и Sr. Сравнимые АИС имеют одинаковые угловые части и близкие радиальные. Это первые самые низколежащие члены серии $mnpn^1S_0$: $3p^2 \ ^1S_0$ Mg и $5p^2 \ ^1S_0$ Sr (состояние $4p^2 \ ^1S_0$ атома Ca расположено ниже первого потенциала ионизации атома и является связанным) и третьи с начала серии $(m-1)dnd^1S_0(^1D_2)$ состояния $3d5d$ атома Ca и $4d6d$ атома Sr.

Таблица 7.6

Зависимость ширин АИС одной конфигурации от атомной массы

Конфигурация	Ширина Γ (cm^{-1})		
	Mg	Ca	Sr
$mp^2 \ ^1s_0$	292	—	222
$(m-1)d(m+1)d^1S_0$	—	116	6
$(m-1)d(m+1)d^1D_2$	—	90	20
$(m-1)dmd^3P_2$	—	32	6

Хотя в целом Γ уменьшается с ростом атомной массы, скорость снижения существенно различна для разных состояний. Ширина низколежащего $mp^2 \ ^1S_0$ с валентными электронами в одинаковых состояниях, принадлежащего к серии $mnpn^1S_0$, сходящейся к третьему потенциалу ионизации ($I = 70448,4 \text{ cm}^{-1}$ для Sr) уменьшается значительно медленнее с ростом Z , чем предсказывает формула (7.7). Вообще, широкие низколежащие АИС конфигурации $mp^2 \ ^1S_0$ с эквивалентными валентными электронами не поддаются описанию в одночастичном приближении. Однако указанное приближение качественно объясняет существование наблюдавшихся нами узких АИ резонансов в атоме

Sr (наибольший заряд $Z=38$ по сравнению с остальными исследованными нами щелочноземельными атомами Mg $Z=12$ и Ca $Z=20$). Ширина АИС $(m-1)d(m+1)d^1S_0$, принадлежащего серии $(m-1)dnd$ сходящейся ко второму потенциалу ионизации ($I_{4d}= 60768,4 \text{ см}^{-1}$ для Sr) -уменьшается значительно быстрее, чем предсказывает формула (5.3). Ширины АИС $(m-1)d(m+1)d^1P_2$ и $(m-1)dnd^3P_2$ по порядку величин согласуются с оценочной формулой (7.7).

Таким образом, в области $\sim 55000 \text{ см}^{-1}$ экспериментально обнаружен эффект аномального роста ширины Γ и увеличения степени асимметрии q с ростом главного квантового числа n . Уровни $4d6d \ j=2$ имеют явно выраженный асимметричный профиль и аномально уширены по сравнению с предыдущими членами серии $4d5d \ J=2$. Результат может быть интерпретирован как межконфигурационное взаимодействие между уровнем $5p^2 \ ^1S_0$ и уровнями $4d6d$ серии $4dnd \ J=2$.

7.6. Выводы

Резюмируя изложенные выше экспериментальные результаты и их анализ, подведем итоги проведенных исследований. Основные результаты, изложенные в данной главе, следующие:

- методами каскадного и многофотонного резонансного возбуждения зарегистрированы автоионизационные резонансы в щелочноземельных атомах Mg, Ca, и Sr. Измерены энергия, ширины профили автоионизационных резонансов;

- экспериментально обнаружен эффект аномального роста ширины и увеличения степени асимметрии при переходе от членов серии $n=5$ к $n=6$ автоионизационной серии $4dnd \ J=2$ атома Sr, что противоречит нормальной зависимости $\Gamma \sim 1/v^{3/2}$. Результат был интерпретирован как межконфигурационное взаимодействие между уровнем $5p^2 \ ^2S_0$ и уровнями $4d6d$ серии $4dnd \ J=2$.

Таким образом, результаты проведенных экспериментов позволили впервые провести систематическое исследование зависимости АИ ширины от атомной массы $\Gamma(M)$ для уровней одной конфигурации в щелочноземельных атомах. Экспериментально обнаружено снижение АИ ширины с ростом атомной массы от 24 а.е.м. (Mg) к 88 а.е.м. (Sr). Зарегистрированная скорость уменьшения ширины различна для разных конфигураций щелочноземельных атомов.

Общие выводы и заключение

Проведенный нами цикл исследований позволил определить ряд новых физических закономерностей, которые существенным образом дополняют наше понимание физической сущности процессов.

Нестационарная теория многофотонных процессов в одноэлектронном приближении хорошо описывает основные закономерности многофотонных процессов в атомах с одним валентным электроном. Но насколько хорошо она будет работать и для более сложных атомов, в частности для атомов с двумя валентными электронами, неясно. Наличие автоионизационных состояний и корреляции между двумя валентными электронами могут существенно влиять на процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов, у которых два валентных электрона во внешней оболочке. Результаты экспериментальных исследований могут позволить выявить оптимальные теоретические методы расчета процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов.

В данной монографии проведен анализ и обобщение достаточно разрозненного экспериментального и теоретического материала, а также экспериментальное исследование влияния корреляции, валентных электронов на процесс многофотонной ионизации щелочноземельных атомов.

Из результатов, полученных в данной работе, можно сделать следующие выводы:

1. Проведены исследования нерезонансной многофотонной ионизации щелочноземельной группы. Обнаружено образование двухзарядных ионов при многофотонной ионизации атомов Ca и Mg при наличии образования однозарядных. Двухзарядные ионы появляются при интенсивностях, когда выход однозарядных ионов уже насыщен. Совокупность наших результатов и полученных другими авторами позволяет утверждать, что процесс образования двухзарядных ионов является типичным при многофотонной ионизации щелочноземельных атомов. Анализ полученных результатов указывает на каскадный механизм образования двухзарядных ионов.

2. Экспериментально измерены значения сечений прямого одноэлектронного процесса многофотонной ионизации атомов Ca, Ba, Mg. Сопоставление результатов, полученных нами с теоретическими расчетами, показало, что теория хорошо предсказывает такую интегральную характеристику процесса как сечение ионизации. Величины сечений позволяют

утверждать, что корреляционные эффекты, обусловленные связью валентных электронов, не проявляются в значениях сечений.

3. Измерены абсолютные значения сечений нерезонансной многофотонной ионизации щелочных атомов. Проведено сравнение результатов с теоретически рассчитанными значениями, и значениями, полученными для щелочноземельных атомов. Проведенный анализ показывает, что абсолютные значения сечений щелочных атомов хорошо описываются первым исчезающим порядком теории возмущений.

4. Получены новые экспериментальные результаты о зависимостях вероятностей образования однозарядных ионов Ca, Ba и Mg от степени эллиптичности лазерного излучения, которые подтверждают сделанный ранее вывод о том, что формула Кларцфельда не справедлива при многофотонной ионизации щелочноземельных атомов. В отличие от щелочей в щелочноземельных атомах поляризационные зависимости иные. Следует предположить, что в данном случае существенную роль играют корреляционные эффекты.

5. Исследованы зависимости образования однозарядных ионов атома калия от степени эллиптичности лазерного излучения. Показано, что формула Кларцфельда, полученная в одноэлектронном приближении и показывающая отношение вероятностей образования ионов при циркулярной поляризации к вероятности ионизации при линейной поляризации излучения, с точностью до ошибки эксперимента, справедлива для щелочных атомов.

6. Получены новые экспериментальные данные об интенсивностях интеркомбинационных переходов в спектрах атомов Ca, Ba, Sr. По относительной интенсивности разрешенных и синглет-триплетных переходов оценены силы осцилляторов некоторых интеркомбинационных переходов. Обнаружена сильная немонотонная зависимость интенсивности интеркомбинационных переходов от значения главного квантового числа возбуждаемого уровня.

7. Установлена корреляция между этой зависимостью и известной ранее зависимостью квантового дефекта от главного квантового числа. Дано качественное объяснение наблюдаемой зависимости, состоящее в возмущении одноэлектронных состояний двухэлектронными, как следствие эффекта взаимодействия конфигураций. Определены области энергий, где возмущение, вызванное взаимодействием конфигураций, велико, а где - мало.

8. Высокая вероятность интеркомбинационных переходов имеет место на частотах, на которых изменение квантового дефекта синглетного состояния больше изменения триплетного. Амплитуда перехода синглет-триплет больше амплитуды перехода синглет-синглет при выполнении условия $d(\mu_T/\mu_S)/dn < 0$.

9. Впервые зарегистрирован резонанс, соответствующий квадрупольному переходу $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5s \ ^1D_2$ при двухфотонной ионизации атома Sr. Измерены вероятности ионизации в схеме ступенчатого возбуждения с участием квадрупольных переходов, измерены вероятности дипольных переходов, проведено сравнение полученных результатов с расчетами, выполненными в одноэлектронном приближении. Сделан вывод о границах применимости одноэлектронного приближения при расчетах параметров переходов в атомах с двумя валентными электронами.

10. Методами каскадного и многофотонного резонансного возбуждения обнаружены автоионизационные резонансы в атомах Mg, Ca и Sr. Измерены энергии, ширины и профили автоионизационных резонансов.

11. Обнаружен эффект аномального роста ширины Γ и увеличения степени асимметрии q при переходе от членов серии $n=5$ к $n=6$ автоионизационной серии $4dnd \ J=2$ атома Sr, что противоречит нормальной зависимости $\Gamma \sim 1v^{3/2}$. Этот результат интерпретирован как межконфигурационное взаимодействие между уровнем $5p^2 \ ^1S_0$ и уровнем $4d6d$ серии $4dnd \ J=2$.

12. Обнаружена закономерность уменьшения ширин АИС одинаковой конфигурации с ростом атомной массы. Так при изменении атомной массы от 39 до 88 (а.е.м.) ширина уровней конфигурации $(m-1)d(m+1)d \ J=0,2$ уменьшается в несколько раз. Закономерности повторяются для всех исследованных конфигураций атомов Ca, Mg и Sr.

Таким образом, резюмируя все экспериментальные результаты можно сделать заключение, а именно:

- эффективность возбуждения запрещенных интеркомбинационных переходов сопоставима с эффективностью разрешенных переходов;
- существует ограничение на описание щелочноземельных атомов в рамках L-S связи и применении старой классификации энергетических уровней этих атомов;
- процесс многофотонной ионизации сложных атомов, возможно, и некоторых молекул носит универсальный характер. Некоторые законо-

мерности, полученные в дипольном одноэлектронном приближении, хорошо описывают основные характеристики процесса многофотонной ионизации и не зависят от конкретизации того или иного атома. Но, с другой стороны, более тонкие измерения показывают на необходимость развития теорий, учитывающих коллективные эффекты в атомах и молекулах, а также нарушение. В ряде случаев необходим учет нарушения дипольного приближения.

В заключение выношу благодарность акад. Хабибуллаеву П.К. за консультации и поддержку, столь необходимые при выполнении данной работы, проф. Алимову Д.Т. за помощь в интерпретации полученных результатов, а также сотрудникам лаборатории теплофизики микропроцессов за участие в проведении экспериментальных исследований.

Литература

1. Келдыш Л.В. Ионизация в поле сильной световой волны.- ЖЭТФ 1961 - т.47.-С.1945-1957.
2. Делоне Н.Б., Крайнев В.П. Атом в сильном световом поле. - М.: Атомиздат, 1978, 1984.
3. Многофотонная ионизация атомов //Труды ФИАН СССР М.: 1980 - Т.115.
4. Делоне Н.Б., Зон Б.А., Крайнев В.П., Ходовой В.А. Нерезонансное возмущение атомного спектра в сильном световом поле //УФН 1976. Т.120.- Вып.7. С.3-54.
5. Собельман И.И. Введение в теорию атомных спектров. М.: Физматиздат, 1963.
6. Ворошилович Д.А. Правила отбора для многоквантовых переходов// Оптика и спектроскопия 1968. Т.25.- Вып.1.- С.162-163.
7. Зон Б.А., Кацнельсон Б.Г. О правилах отбора для электромагнитных переходов атома в сильном световом поле //Оптика и спектроскопия -1976.- Т.40.- Вып.5.-С.952-954.
8. Делоне Н.Б., Крайнев В.П. Основы нелинейной оптики атомарных газов. М.: Наука, 1986.
- 9.Зон Б.А., Манаков Н.Л., Рапопорт Л.П. Спектры водородоподобного атома в поле лазерного излучения //Оптика и спектроскопия 1975.-Т.38.-Вып. 1- С.13-19.
10. Суран В.В., Запесочный И.П. Наблюдение Sr и Sr при многофотонной ионизации атомов стронция.[[Письма в ЖТФ 1975.-Т.1.-21-С. 973-974.
11. Алексахин И.О., Запесочный И.П., Суран В.В. Наблюдение одно - и двукратнозаряженных ионов при многофотонной ионизации атомов бария // Укр.физ.журнал .-1976.-Т.21.-8- С.1383-1384.
12. Суран В.В. Наблюдение одно- и двукратно ионизированных атомов при многофотонной ионизации самария //Оптика и спектроскопия. -1976. -Т. 41, -В.5. -С.90 1-902.
13. Алексахин И.С, Делоне Н.Б., Запесочный И.О., Суран В.В. Наблюдение и исследование процесса двухэлектронной многофотонной ионизации атомов // ЖЭТФ .- 1979.-Т.76.- В.3.- С.887-895.
14. Бондарь М.М., Гомонай А.М., Суран В.В. Экспериментальное исследование многофотонной ионизации атома бария // Сб.:Нелинейные

процессы в двухэлектронных атомах.-М.:Совет по спектроскопии АН СССР.-1984. -С.25-46.

15. Бондарь И.И. Вероятность процесса одноэлектронной многофотонной ионизации щелочноземельных атомов. Сб.: Теория возмущений в атомных расчетах.- М.: Совет по спектроскопии АН СССР.-1985.-С.35-58.

16. Делоне Н.Б., Запесочный И.П., Зон Б.А., Суран В.В. Двухэлектронная многофотонная ионизация. //Известия АН СССР, Сер.физ. 1981.- Т.45.-С.1085-1091.

17. Бондарь И.И., Делоне Н.Б., Запесочный И.П., Суран В.В. частотная зависимость процесса двухэлектронной многофотонной ионизации атомов // Письма в ЖТФ.- 1981.- Т.7- В.4- С.243-247.

18. Делоне Н.Б., Запесочный И.П., Суран В.В. Многоэлектронные процессы при нелинейной ионизации атомов.- Препринт ФИАН СССР.-1982-152-43С.

19. Бондарь И.И., Делоне Н.Б., Запесочный М.П., Суран В.В. Нелинейная ионизация атома бария.- Препринт ФМАН СССР - 1982.- С 111-24.

20. Бондарь И.М., Гомонай А.М., Делоне Н.Б., Суран В.В. Нелинейная ионизация атома бария излучением с частотой $18800-18900 \text{ см}^{-1}$.- Препринт ФИАН СССР.- 1983- 249.- 22 С.

21. Бондарь И.И., Суран В.В.- Исследование резонансного нелинейного процесса образования ионов Ba^{+2} //Оптика и спектроскопия -1983.-Т.55.- В.4.- С.784-786.

22. Акрамова Д.Ш., Алимов Д.Т., Медведева В.К. Преображенский Турсунов М.А., Хабибуллаев М.А., в П.К. Исследование процесса нелинейной ионизации атома бария излучением лазера на иттрий-алюминиевом гранате.- Препринт МЯФ АН УзССР.- 1983.3-9-104.-24 с.

23. Akramova D.Sh., Alimov D.T., Tursunov M.A., Khabibullaev P.K., Medvedeva V.K. //Non-linear ionization atom Ba radiation 0.53 rrikm .-Conf. in 16 conf. on Phenomene in Ionised Gases. Dusseldori-1983.- V.2- P.328-329.

24. Акрамова Д.Ш., Алимов Д.Т., Медведева В.К., Преображенский М.А., Турсунов М.А., Хабибуллаев П.К. //Нелинейная ионизация атома бария лазерным излучением с частотой 9395 см^{-1} // Оптика и спектроскопия. -1984.- Т.56.-В.6. -С.987-990.

25. Акрамова Д.Ш., Медведева В.К., Турсунов М.А. О процессе одноэлектронной нелинейной ионизации атома бария.// Известия АН УзССР, Сер.физ., -1983.-В.3.-С.60-62.
26. Bondar I.L.Gomonay A.I., Delone N.B., Zapesochnyi I.P., Suran V.// Measurement of three and five photon ionization probabilities of the barium atom.- J.Phys.B.-1984.-V.17.-P.2049-2056.
27. Бондарь И.И., Делоне Н.Б., Преображенский М.А., Суран В.В. Нелинейная ионизационная спектроскопия атома кальция.//Сб.тезисов докладов XII Всесоюзной конференции по Ки-НО.-М.:1985.-С.258-259.
28. Feldmann D., Krautwald J., Chin S.L., Hellfeld A., Welge K.N. //Multiphoton ionization of strontium creating Sr^+ and Sr^{2+} -J.Phys.B.: At.Mol.Phys. - 1982.-V.15.-P.1651-1662.
29. Agostini P., Petite G.// double multiphoton Ionization via above threshold ionization in strontium atoms.-J.Phys.B.:At.Mol.Phys.-1985.V&18.-L281-L286.
30. Делоне Н.Б. Коллективные эффекты при нелинейном взаимодействии лазерного излучения с атомами. Сб.: Теория возмущений в атомных расчетах.- М.: Совет по спектроскопии АН СССР.-1985-С.4-34.
31. Feldmann L., Krautwald H.J., Weldge K.H.// Resonant double Ionization of strontium atoms by tunable laser radiation.-J.Phys.B.:At.Mol.Phys. 1983-V.15.-L529-L531.
32. Суран В.А. Образование двухзарядных ионов при нелинейной ионизации щелочноземельных атомов. Сб.: Теория возмущений в атомных расчетах. -М.: Совет по спектроскопии АН СССР.- 1985.-С.59-91.
33. Agostini P., Fabre F., Mainfray G., Petite G. and Rahman N.K.// Free-free transitions following six photon Ionization of xenon atoms.- Phys.Rev.Lett.- 1979.- V.42- 1T-P.1127-1133.
34. Gontler Y., Poirier M., Trahin M. //Multiphoton absorptions above the Ionization threshold.-J.Phys.B.: At.Mol.Phys.-1980.- V.13.-P.1381-1387.
35. Fabre P., Petite G., Agostini P., Clement M. //Multiphoton above threshold ionization of xenon at 0.53 and 1.06*μ*m -J.Phys. B.: At.Mol. Phys. -1982-V. 15.-P. 1353-1369.
36. Agostini P., Clement M., Fabre P., Petite G.//Multiphoton ionization Involving multiphoton continuum-continuum transitions.-J.Phys.B.:At.Mol.Phys.- 1981-V.14.-L491-L495.

37. Делоне Н.Б., Зон Б.А., Крайтов Б.П. //Дуффузионный механизм ионизации высоковозбужденных атомов в переменном электромагнитном поле.// ЖЭТФ.- 1978.-Т.55.-Б.2.-С.445-453.
38. Бондарь И.И., Дудич М., Суран В.В. Образование одно -и двухзарядных ионов при нелинейной ионизации атомов стронция лазерным излучением в области частот $16800-18000 \text{ см}^{-1}$ // ЖЭТФ.-1986-Т.90-В.6-С.1952-1962.
39. Козлов М.Г. / Спектры поглощения паров металлов в вакуумном ультрафиолете -М.: Наука, 1981.- 201 С.
40. Коточигова С.А., Тупицин И.И. Исследование методом Хартри Фока-Дирака для расчета спектра автоионизационных состояний Ва. //Сб.: Нелинейные процессы в двухэлектронных атомах.- М.: Совет по спектроскопии АН СССР, 1984- С.92-114.
41. Амусья М.Я. Коллективные эффекты в изолированном атоме. //Известия АН СССР,Сер.физ. 1984.-Т.48. № -4.- С.642-650.
42. Амусья М.А. Взаимодействие сложных атомов с излучением. - //Известия АН СССР. Сер.физ. 1984-Т748-4-С.642-650.
43. Нелинейные процессы в двухэлектронных атомах // Сб. под ред. Н.Б. Делоне - М.: Совет по спектроскопии АН СССР, 1984, - 235с.
44. Ильков Ф.А. Двухфотонные резонансы с триплетными состояниями при трехфотонной ионизации щелочноземельных атомов препринт Ин-т общей физики N 299. М.: 1986, 27с.
45. Vrozowski S. Forbidden lines in the laboratory // Rev.-Mod.Phys. 1944-V.16, p.153-174.
46. Кондон Е.. Шортли Г. Теория атомных спектров -М.: Изд.иностр. лит., 1949, 440С.
47. Радциг А.А., Смирнов Б.М. Справочник по атомной и молекулярной физике -М.: Атомиздат, 1980 - 240с.
48. Wavelengths and transitions probabilities for atoms and. atomic ions //W.L.Wiese, G.A.Martin-PartII-NBS.USA.D.G.20234-Washington, 1980-С.359-401&.
49. Преображенский М.А. Одноэлектронная многофотонная ионизация щелочноземельныхэлементов // Сб. Нелинейные процессы в двухэлектронных атомах -М.: Совет по спектроскопии АН СССР 1984, С.69-90.

50. Бондарь И.И., Суран В.В. Исследование резонансного нелинейного образования ионов Ba^{2+} // Оптика и спектроскопия 1983-Т.55.-С.784-786.
51. Бондарь И., Дудич М., Суран В. Образование одно - и двухзарядных ионов при нелинейной ионизации атомов стронция и бария лазерным излучением в области частот $16800-18000 \text{ см}^{-1}$ // ЖЭТФ -1986 Т.90, С.1952-1962.
52. Dexter J.L., Jaffe S.M., Gallager T.F. Double ionization of Ba from 550 to 670 nm // J.Phys. B.: At.Mol. Phys. 1985 V.18., PL735-L740.
53. MAImed S. Core polarization corrections to oscillator strengths and singlet-triplet splitting in alkaline earth atoms // J.Phys.B.rAt.Mol.Phys. 1972, V.5, P.746-760.
54. Luc-Koenig E. Relativistic effects on transition probabilities $^3P_1 \ ^1S_0$ for group II elements // J.Phys.B.: At.Mol.Phys. 1974 V.7 P.1058-1058.
55. Dankwort W. The oscillator strength of the Intercombination line $3s3p^3P_1^0 - 3s^2 \ ^1S_0$ in MgI including corepolarisation and relativistic effects // J.Phys.B: At.Mol. Phys. 1977- V.10 - -P.3617-3625.
56. Bondar I.I., Delone N.B., Ilkov P.A., Suran V.V. Excitation of two-photon intermediate resonances with the triplet states at three-photon barium and strontium atom ionization // SPIE's 1986 International Symposium 2-6 July 1986 -SPIE Proceedings -Vol.664: High intensity laser processes P.106-109.
57. Алимов Д.Т., Бельковский А.Н., Жук А.А. Ильков Ф.А., Турсунов М.А. Запрещенные переходы в процессах резонансной трехфотонной ионизации щелочноземельных атомов // Сб. Нелинейная спектроскопия атомов и двухатомных молекул М.: Совет по спектроскопии АН СССР 1987. С.79-92.
58. Фабр С, Арош С. Спектроскопия одно - двухэлектронных ридберговских атомов // Сб. Ридберговские состояния атомов и молекул под ред. Р.Стеббингса и Ф. Даннига -М. Мир, 1985, С.139-193.
59. Esherick P., Wynne J.J. High-Ridberg states in alkaline earth atoms - I: Multiphoton spectroscopy //Com. At.Mol. Phys.-1977 V.7 P. 43-52.
60. Wynne J.J., Armstrong J.A. High-Redberg states in alkaline earth atoms II: Multichannel quantum defect theory //Com.At.Mol.Phys. 1979, V.8- P.155-171.
61. Esherick P., Armstrong J.A., Dreyfus R.W., Wynne J.J. Multiphoton ionization spectroscopy of high lying even parity states of calcium // Phys. Rev.Lett. 1976,V.36. P.1296-1299.

62. Armstrong J.A., Esherick P., Wynne J.J. Bound even parity $J=0$ and 2 spectra of Ca // Phys.Rev. A. 1977 -V.15.-P.180-196.
63. Borgstrom S.A., Rubbmark J.R. Stark mixing of high-lying calcium levels by laser produced charges // J.Phys. B.: At.Mol.-Phys. 1977-V.15 P.3607-3615.
64. Esherick P., Bound even-parity $J=0$ and 2 spectra of Sr // Phys.Rev. A. 1977-V.15.P.1920-1936.
65. Rubbmark J.R., Borgstrom S.A. Rydberg series in strontium found in absorption by selectively laser-excited atoms // Phys.-Scripta - 1978 -V.18. P.196-208.
66. Armstrong J.A., Wynne J.J., Esherick P. Bound, odd-parity $J=1$ spectra of the alkaline earths: Ca, Sr and Ba // -J.Opt.Soc.AИ. 1979-V.69-P.211-230.
67. Rubbmark J.R., Borgstrom S.A., Bockasten K. Absorption spectroscopy of laser excited barium // J. Phys.B.: At.Mol.Phys. 1977-V.10, P.421-432.
68. CAИus P., Morillon C. Experimental study of high-lying even parity states in barium by two-photon absorption spectroscopy // J.Phys. P.L133-L136.
69. Aymar M., CAИus P., Diculin H., Morillon C. Two-photon spectroscopy of neutral barium: Observaton of the highly excited even levels. // Phys. Rev.A.-1978 V.18 P.2173-2183.
70. Van-Leeuwen K.A.H., Hogervost W., Post B.H. Stark of fact in barium $6snd$ 1D_2 Rydberg states; evidence strong perturbation in the 1f_3 series // Phys. Rev.A.1983- V.28- P.1901-1907.
71. Aymar M., CAИus P. Multichannel quantum-defect analysis of the bound even-parity spectrum of neutral barium // Phys. - Rev.A. 1983- V.23- P.850-857.
72. Matthias E., Zaller P., Elliot D.S., Piltch N.D., Smith S.J. Influence of configuration mixing in Intermediate states on resonant multiphoton ionlization // Phys. Rev. Lett. 1983-V.50 -P.1914-1917.
73. Kelly J.F., Messier J.P., Alber G. Experimental studies of three-photon ionization of Ba: evidence of channel interference and RAIИan coupling // Phys. Rev. A. 1986 -V.33-P.3913-3937.
74. Seaton M.J. QDT -I General formulationk // Proc.Phys. Soc. (London) 1966 - V.88-P.801-814.
75. Зоммерфельд А. Строеение атома и спектры. Т. 2. М., 1956. - 530 с.
76. LAИbropoulos M., Moody S., Smith, Lineberger W. Observation of electric quadrupole transitions in multiphoton ionization // Phys. Rev.Lett.-1975-V.35-P.159-162.

77. Beck D.R. Fine electron effects in operator forms for electron quadrupole transition probabilities // Phys. Rev.A. -1981. V.23.-N1, p.159-171.

78. Pasternack L., Silver D.M., Yorkony, Dagdigian P.J. Experimental and theoretical study of the Ca $4s3d\ ^1D_2 - 4s^2\ ^1S_0$ and $4s4p\ ^3P_1^0 - 4s^2\ ^1S_0$ forbidden transitions // J.Phys. B.:At.Mol. Phys. 1980- V.13.,P.2231-2241.

79. Pukyda K. Ueda K. Oscillator strength and rare-gas induced broadening of the electric quadrupole transition $4s^2\ ^1S_0 - 4s3d\ ^1D_2$ in Ca // J.Phys.Chem. 1982- V.86- P.676-677.

80. Климовский М.И., Минаев П.В., Морозов А.В. Измерение вероятностей запрещенных радиационных переходов в атоме бария. [[Оптика и спектроскопии. 1981 - Т.50. С.847-852.

81. McCavert P., Treffts E. Oscillator strengths of some Ba lines calculated in MCHF approximation // J.Phys. B.:At.Mol.Phys. 1974-V.11.-P.1270-1278.

82. Алимов Д.Т., Бельковский А.Н., Медведева В.К., Турсунов М.А. Двухквантовая ионизация атома кальция // Сб.тезисов докладов конференции по физике плазмы –Ташкент, 1985. С.158-159.

83. Акрамова Д.Ш., Алимов Д.Т., Медведева В.К., Турсунов М.А., Хабибуллаев П.К. Исследование процесса многофотонной ионизации щелочноземельных атомов // Сб.: Нелинейные процессы в двухэлектронных атомах- М.:Совет по спектроскопии АН СССР. 1984.-С.48-68.

84. Акрамова Д.Ш., Алимов Д.Т., Бельковский А.Н.,Медведева В.К., Турсунов М.А., Хабибуллаев П.К. Многофотонная ионизация атома кальция - ЖПС, 1984.-Т.41.-В.5.-С.835-837.

85. Делоне Г.А., Манаков Н.Л., Пискова Г.К., Рапопорт Л.П. Нерезонансная многофотонная ионизация атомов // Труды ФИАН СССР, 1980, Т.115- С.5-41.

86. Каслин В.М., Петраш Г.Г. Импульсные газовые лазеры на электронных переходах молекул / В кн. Труды ФИАН СССР -М.: Наука, 1975.- Т.81.-С.88-183.

87. Moore CE. Atomic energy levels.Natl.Bur.Stand.(U.S.) Cire.N 467(U.S.GPO,Washington,D.C., 1958) V.II.

88. Moore C.E. Atomic energy levels.Natl.Bur.Stand.(U.S.) Cire.N 467(U.S.GPO,Washington,D.C, 1949) V.I 876. Moore C.E. Atomic energy levels.Natl.Bur.Stand.(U.S.) Cire.N 467(U.S.GPO,Washington.D.C , 1952) V.II.

89. Преображенский М.А. Динамические поляризуемости щелочноземельных атомов // Оптика и спектроскопия - 1983.-Т.755.-В.4-С.615-620.
90. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Резонансное взаимодействие интенсивного света с атомами - УФН 1978.- Т.124.-С.619-650.
91. Agostini P., Petite G. Multiphoton ionization of calcium with picosecond pulses.-J.Phys.B.:At.Mol.Phys. 1984, V.17, L811-L816.
92. Zhang Jingyuan, Li Qiogru, Yang Jian, Zhao Llzad and Nie. Yuxin.-Laser induced double ionisation and fluorescence in magnesium vapour. -J. Phys. B.: At. Mo 1. Phys. - 1986-V .19. -L75-L80.
93. Арифов У.А. Взаимодействие атомных частиц с поверхностью металла - Ташкент: Изд. АНУзССР. - 1961- 323 с.
94. Делоне Н.Б., Коварский В.А., Масалов А.В., Перельман И.Ф. Ионизация атомов в сильном некогерентном поле лазерного излучения [В кн.: Труды ФИАН СССР "Многофотонная ионизация атомов". - М.: Наука . 1980, Т.115.-С.140-175.
95. Загородняя Т.А., Масалов А.В. Измерение сечений многофотонной ионизации атомов по насыщению выхода ионов // Сб.: Теория возмущений в атомных расчетах.- М.: Совет по спектроскопии АН СССР- 1985.-С.93-127.
96. Масалов А.В. Нелинейные явления в некогерентном поле и проблема измерений - Препринт ФИАН СССР - 1983.- 187. - 19С.
97. Масалов А.В., Годиращку С.С. Роль ширины и формы спектра при нелинейном преобразовании многочастотного лазерного излучения- Препринт ФИАН СССР-1979.-177-26С.
98. Berson I. // Phys.Lett.-1981.-V.84.-P.364-369.
99. Берсон И.Ю. // ЖЭТФ.-1982.-Т.83.-С.1276.
100. Иванов М.Ю. // Автореферат канд. дис. - М., 1988.-20С.
101. Бондарь И.И., Суран В.В. // Оптика и спектроскопия.1986.-161.-В.1.- С.24-26.
102. Бондарь И.И., Суран В.В. Элементарные процессы в поле лазерного излучения // М., 1988.-С.122-141.
103. Алимов Д.Т., Бельковский А.Н., Гайсак М.М., Медведева В.К. и др. // Укр. физ. журнал- 1988.-Т.33.-С.658-664.

104. Алимов Д.Т., Медведева В.К., Турсунов М.А., Хабибуллаев П.К. Поляризационная зависимость трехфотонной ионизации атомов бария и кальция // Оптика и спектроскопия -1985- Т.758.-В.6.-С.1201-1203.
105. Klarsfeld S., Maquet Q. Circular versus linear polarization in multiphoton ionization -Phys.Rev.Lett.-1972.-V.29.-2.-P.79-81.
106. Бондарь И.И., Делоне Н.Б., Преображенский М.А., Суран В.В. Нелинейная ионизационная спектроскопия атома кальция Сб. тезисов докладов XII Всесоюзной конференции по КиНО. - М., 1985-С.258-259.
107. Делоне Н.Б., Иванов М.Н., Крайнев В.П. Многофотонная ионизация высоковозбужденного состояния атомов. - Препринт ФМАН СССР -1983.- 42.- 16с.
108. Акрамова Д.Ш., Алимов Д.Т., Делоне Н.Б., Зон Б.А., Медведева В.К., Преображенский М.А., Турсунов М.А., Хабибуллаев П.К. Поляризационные явления при трехфотонной ионизации атома калия // Известия АН СССР, Сер. физ. - 1981-Т.45.-В.8.-С.1459-1463.
109. Лансберг Г.С. Оптика - М.: Наука.- 1976, 928С.
110. John E., Hunter H.I., JAIes S.Kellerl and R.Stephen Berry. Experimental study of configuration mixing in intermediate excited levels of barium. - J.Phys. Rev.A., 1986.-V.33,-5-P.1338-1345.
111. Reiss H.R. Semiclassical electrodynamicics of bound systems in intense fields// Phys. Rev. 1970.-V.3.-P.803-818.
112. Gontler V., Trahin H. Multiphoton ionization induced by circularly polarized radiation // Phys.Rev.-1973.A7.-P.2069-2074.
113. LAIbropolus P. Multiphoton ionization of one-electron atoms with circularly polarized light.-Phys. Rec.lett., 1973, -29,8,p.453-455.
114. LAIbropolus P. Effect of light polarization on multiphoton ionization of atoms. Phys.Rev. Lett., 1972, 29, 10, p.583-587.
115. Faisal F.H.M. Multiphoton ionization by circularly and linearly polarized light. p.I-II_ J.Phys., 1972,B5,L196-198,L233-236.
116. Mizuno Y. Two-photon ionization of Li, Na and K with polarized photons . J. Phys., 1973, B6, p. 314-319.
117. LAIbropolus P. Spin-orbit coupling and photo-electron polarization in M.I. of atoms -Phys. Rev. Lett., 1973, 30,10,p.413-416.
118. Teaque M.R., LAIbropolus P., Goodmaison D.m Giveriss /d.B. Theory of two-photon ionization of cesium. -Phys. Rev., 1976,A 14, 3,p.1057-1064.

119. Felman D., Welge K.H. Two- and three-photon resonant ionisation of strontium. // J.Phys.B:At.Mol.Phys.-1982-V.15. P.1651-1662.
120. Смирнов Б.М. Физика атома и иона. - М.: Энергоатомиздат -1986.- 215С.
121. Фано У., Купер Дж. Спектральные распределения сил осцилляторов в атомах.- М.:Наука.-1972-200С.
122. Алимов Д.Т., Бельковский А.Н., Ильков Ф.А., Жук А.А., Медведева В.К., Турсунов М.А. Многофотонная ионизация атома магния в присутствии постоянного электрического поля. //Сб.Уровни зонегий и вероятности переходов в атомах и ионах - М.: Совет по спектроскопии АН СССР,-1986.- С.220-246.
123. Alimov D.T. Belkovsky A.N., Ilkon F.A., Khabibullaev P.K., Medvedeva V.K., Tursunov M.A. Influence of dc electric field on multiphoton ionization of magnezium atoms //SPIE's 1986 Quebec Int.Symposium 2-4 June 1986-SPIE Proceeding vol.664: High intensity laser proceses-P.109-117.
124. Eberly J.M. Extended two-level theory of the exponential index of MH/VPhys.Rev.Lett.-1979-V.42-P.1049-1052.
125. Bakos J.S. Multiphoton ionization of atoms //Advances in Electronic and Electron Phys.-1974.-V.36-P.58-152.
126. Алимов Д.Т., Бельковский А.Н., Ильков Ф.А., Жук А.А., Медведева В.К., Турсунов М.А. Влияние постоянного электрического поля на процесс многофотонной ионизации атома магния.- Ташкент -1987.- 13с. Препринт/Ин-т ядер.физики АНУзССР, P-6-248.
127. Бакош Й., Нагаева М.Л. Многофотонная ионизация возбужденных атомов. //Труды ФИАН СССР.-1980-Т.115- С.96-126.
128. Rautian S. Invited paper to IIConf.on interaction of electron with electromagnetic field. Budapest. CRIP-1975-P.150-161.
129. Попова Т.Я., Попов А.К., Раутиан С.Г.,Феокистов А.А. О резонансных радиационных процессах //ЖЭТФ-1969-Т.57.-С.444-451.
130. Делоне Н.Б., Федоров М.В. Резонансная ионизация атомов интенсивным излучением импульсных лазеров. - М.: - 1978.- 60с.- (Препринт/Физический ин-т 67).
131. Бетеров М.М., Матюгин Ю.А., Чеботаев В.П. Спектроскопия двухквантовых переходов в газе вблизи резонанса //ЖЭТФ 1973.- Т.758.- С.1243-1258.

132. Делоне Н.Б., Федоров М.В. Резонансный процесс многофотонной ионизации атомов. // Труды ФИАН СССР.-1980.-Т. 115.-С.42-95.
133. Казаков А.Е., Макаров В.П., Федоров М.В. Резонансная ионизация атомов. //ЖЭТФ.-1976-Т.70.-С.38-46.
134. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Динамическая поляризуемость высоковозбужденных водородоподобных состояний. //ЖЭТФ -1982.-Т.83.-С.2021-2026.
135. Афанасьева Н.В. О степенной зависимости в распределении времен жизни высоковозбужденных уровней атомов и ионов. Тезисы докл.19 Съезда по спектроскопии.-Томск.-1983.
136. Гореславский С.П., Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Вероятности радиационных переходов между высоковозбужденными атомными состояниями. //ЖЭТФ- 1982.-Т.82.-С.1789-1797.
137. Zaller P., LAIbropolos P. Lasler temporal coherence effect in two-photon resonant three – photoionization//J.Phys.B: At.Mol.Phys. - 1980-V.13.-P.69-83.
138. Фриш С.Э. Оптические спектры атомов - М.:Ф-М.-1963-640С.
139. Жук А.А., Исмаилов А.З., Малахов М.Г. Измерение двухфотонного матричного элемента связано-связанного перехода в атоме Са методом резонансной ионизационной спектроскопии // Совет по спектроскопии АН СССР.- М.: Наука,1990.
140. Малахов М.Г., Измерение составных матричных элементов многофотонных связно-связанных переходов методом резонансной спектроскопии // Сб. Многофотонная спектроскопия атомов и молекул., - М. 1989. С.158-179.
141. Kelleher D.E., Delpech J.F. & Welner J. Broadening of a valence AI resonances in electric fields// Phys.Rev.A-1985.V32.N4.
142. Littman M.G.,Metcalf H.J. Spectrally narrow pulsed dye laser without beAI expander// Appl.Opt.~1978.V17. p. 2224.
143. Fano U. Effects of configuration interaction on intensi- -ties and phase shifts//Phys.Rev.-1961.v.124, pp.1866-1878.
144. Aymar M., E.Luc-Koenig & S.Watanabe. R-matrix calculation of eigenchaimel multichannel quantum defect parAIeters for stron tium//J.Phys.B.- 1987.v.20.pp.4325-4345.
145. Коточигова С.А. Эффект многофотонной резонансной ионизации автоионизационных состояний атома стронция// Сб. Нелинейная спектроскопия

атомов и двухатомных молекул - М.: Совет по спектроскопии АН СССР.-1988.- с.17-47.

146. Kompitsas M., Cohen S., Nicolaidis C.A., Robaux O., Aymar M. & SAIus P. Observation and theoretical analysis of the odd $J=3$ autoionising spectrum of Sr up to the 4d threshold //J.Phys.B: At.Mol.Phys.-1990-v.23.pp.2247-2267.

147. Бондарь И.И., Дудич М.И., Суран В.В. Образование одно - и двух зарядных ионов при нелинейной ионизации атомов стронция и бария лазерным излучением в области частот $16800-18000 \text{ см}^{-1}$ //ЖЭТФ- 1986- т.90- с.1952-1962.

148. LAIbrooulos P., Tang X., Agostini P., Petite G. & L'Hu-illier Multiphoton spectroscopy of doubly excited, bound, and autoionising states of strontium// Phys.Rev.A.-1988-V38-N12 pp.6165-6178.

149. Елизаров А.Ю., Черепков Н.А. Экспериментальное определение полных моментов автоионизационных состояний при многоступенчатой фотоионизации атомов[Письма в ЖЭТФ.-1986-Т.44. Вш.1.Сз-5.

150. Kompitsas M. ,Goutis S., Aymar M. & SAIus P. The even parity $J=0$ autoionising spectrum of strontium below the 4d threshold observation and theoretical analysis// J.Phys.B.:At.Mol.Phys. -1991 - 24 - p.1557.

151. Newsom G H, O'Connor, & Learner R.C.M. Re-exAIination of the spectrum of strontiumrautoionisation in the spectrum of neutral strontium// J.Phys.B:Atom.Moi.Phys.-1973-v.6.pp.2162-2176.

152. Esherick P. Bound, even-parity $J=0$ and $J=2$ spectra of Sr// Phys.Rev.A.-1977.-v.15. N5.pp.1920-1936.

153. Bradley D.J. et al. Photolonisation cross-section absolute measurements for selectively ionised Mg.// Phys.Rev.A. -1976. v.13.N4.pp.44-56.

154. Bonanno R.E.,Clark C, Lucatoro T.B. Multiphoton excitation of autolonising states of Mg: Line-shape studies of the $3p^{21}S_0$ state// Phys.Rev.A-1986.- V.34. N3.pp.2082-2085.

155. Беков Г.И., Видолова-Ангелова В.П., Иванов Л.Н., Летохов В.С. Мишин В.И. Лазерная спектроскопия узких двукратно возбужденных автоионизационных состояний атома иттербия[[ЖЭТФ- 1981-Т.80. с.866-877.

156. Беков Г.И., Летохов В.С., Матвеев О.М., Мишин В.И. Обнаружение долгоживущего автоионизационного состояния в спектре атома Gd // Письма в ЖЭТФ-1978.- Т.28. С.308.

157. Аглицкий Е.В., Сафронова У.И. Спектроскопия автоионизационных состояний атомных систем.- М.: Энергоатомиздат.-1985-137с.
158. Делоне Н.Б. Взаимодействие лазерного излучения с веществом: Курс лекций. - М:Наука-1989.-278с.
159. Алимов Д.Т., Бельковский А.Н., Гайсак М.И., Зацаринный О.И., Лендшел В.И., Медведева В.К., Петрина Д.М., Шуба И.М. Вклад автоионизационных состояний в двухфотонную ионизацию атома кальция [[Сб. Спектроскопия АИС атомов и ионов.-М.-1988.С.203.
160. Алимов Д.Т., Жук А.А., Исмаилов А.З., Мальков Ф.А. Ионизационная спектроскопия автоионизационных состояний атома Sr// Сб. тезисов докладов Международной конференции КиНО-91. - Санкт-Петербург- 1991.- Т.2.-С.85.
161. Chin S.L., Feldman D., Krautwald J., Welge K.H. Three photon ionisation spectra of strontium in the excitation range 5560-5640 Å //J.Phys.B.: At.Mol.Phys.-1981-v14-p.2353-2359.
162. Летохов В.С. Лазерная фотоионизационная спектроскопия.-М.: Наука, 1987-284с.
163. Normand D., Lompre L., L'Huillier A., Morellec J., Ferray M., Lavancier J., Manfray G. & Manus C. Ac Stark shifts induced by a Yag laser in the nP and nF Rydberg series in xenon// JOSA B.1989.v6.N8.pp.1513-1518.
164. Carlson R.L., Paisner J.A., Worden E.E., Johnson S.A., May CA. Solarz R.W. Radiative lifetimes, absorption cross-sections and the observation of new high-lying odd levels of ^{238}U using multistep laser photoionisation// JOSA-1976.v.66.p.846.
165. Алимов Д.Т., Жук А.А., Исмаилов А.З., Пироговский П.Я., Турсунов М.А. Наблюдение четных автоионизационных состояний с $J=0,2$ в атоме стронция[[Сб. тезисов докладов второго Всесоюзного семинара по атомной спектроскопии и одиннадцатой Всесоюзной конференции по теории атомов и атомных спектров.-М., 1991.-с.101.
166. Moccia R. & Spizzo P. Atomic magnesium: 1.Discrete & continuous energy spectrum below the 3p ionisation threshold, a valence-shell L^2 CI calculation// J.Phys.B: At.Moi.Opt.Phys.-1988.v21.pp1121-1132.
167. Moccia R., Spizzo P. Atomic magnesium: 3.Two-photon transition probabilities and ionisation cross sections: A valence-shell L^2 calculation// J.Phys.B.:At.Moi.Phys.-1988- v.21. pp.1145-1154.

168. Morton V. Multiphoton absorption In monatomic gases. -Proc.Phys.Cos., 1967.-92. -P. 310-309.
169. Gontler T., Trahin M. Multiphoton processes in a hydrogen atoms-Phy.Rev. - 1971.-A.4.-P.1896-1906.
170. Смит К. Молекулярные пучки. - М. Изд. иностр. литературы -1959-160 с.
171. Делоне Г.А., Манаков Н.Л. Преображенский М.А. Рапопорт Л.П. Поляризационные эффекты при многофотонной ионизации щелочных атомов // ЖЭТФ -Т.70.-С.1234-1242.
172. Manakov N.L., Ovsinnikov V.D., Preobragenski M.A., Rapoport L.P. The use of model potential for the calculation of atomic multiphoton ionization probabilities. - J.Phys. - 1978-B.11-P.245-256.
173. Kogan R.M., Fox R.A., BurnhAI G.T., Robinson E.J. Two-photon ionization of Cs - Bull.AIer.Phys.Soc, - 1971 - 16- -p.1411-1414.
174. Fox R.A., Kogan R.M., Robinson E.J. Laser triple-quantum photoionization of Cesium - Phys.Rev.Lett. - 1971 - 26,23 - P.1416-1447.
175. Делоне Г.А. Экспериментальное исследование зависимости сечения прямого процесса многофотонной ионизации атома от поляризации поля оптической частоты Краткие сообщения по физике- -1975-Т.8-С.28-31.
176. Klarsield S., Maquet A. Curcular versus linear polarization in multlphoton ionization - Phys.Rev. Lett. - 1976- 37-P.987-990.
177. Шерклиф У. Поляризационный свет - М.: Мир - 1965- 264с.
178. Зайдель А.Н., Островская Г.В., Островский Ю.И. Техника и практика спектроскопии - М.: Наука, 1976- 392с.
179. Крифер М.Я., Панов В.А. - Справочник конструктора оптико-механических приборов - Л.: Машиностроение - 1967- 760с.
180. Алимов Д.Т., Бельковский А.Н., Жук А.А., Ильков Ф.А. Турсунов М.А. Запрещенные переходы в процессах резонансной трехфотонной ионизации щелочноземельных атомов //В сб. "Элементарные процессы в поле лазерного излучения " - Совет по спектроскопии. - М., 1988. С.92-107.
181. Алимов Д.Т., Бельковский А., Медведева В.К., Турсунова М.А., Хабибуллаев П.К. Исследование процесса многофотонной ионизации атома магния // Журнал прикладной спектроск., Т.44 Т2. с.211-213, Минск, 1986.
182. Алимов Д.Т., Бельковский А., Ильков Ф., Жук А., Медведева В., Турсунов М.А., Хабибуллаев П.К. Многофотонная ионизация атомов магния в

присутствии постоянного электрического поля // Сб. Уровни энергий и вероятности переходов в атомах и ионах - М.Совет по спектроскопии АН СССР 1986- С.220-246.

183. Алимов Д.Т., Жук А., Ильков Ф., Турсунов М.А. Двухфотонное возбуждение триплетных состояний при трехфотонной ионизации щелочноземельных атомов: Тез. докл. Всес. семинара "Процессы с участием возбужденных атомов" Ленинград, 1988. С.3-4.

184. Алимов Д.Т., Акрамова Д.Ш., Медведева В., Турсунов М.А. Сечения двукратной нелинейной ионизации атомов Ва и Са // Тез.- докл.У Всесоюз. конф. по взаимодействию электромаг. изл. с плазмой. Ташкент, 1989 - С.131.

185. Aliraov D.T., Ismailov A.Z. Tursunov M.A., Zhuk A.A. Au-toionization States in alkaline -earth atoms by Multistep Re-sonant Ionisation Spectroscopy // Laser Physics V.2.-N 5, 1992-P.738-740.

186. Medvedeva V.K., Tursunov M.A. Multiphoton ionization of magnesium atoms in dc electric field // Cont.paper ICCP, 1992, P.145- Yenna, Austria.

187. Alimov D.T., Medvedeva V.K., Tursunov M.A. Multiphoton cross-section of double charged ions // Cont.paper XXI ICPIG, -1993, P.68-69 sept. Bochum, Germany.

188. Alimov D.T., Medvedeva V.K., Tursunov M.A. Spectroscopy of earth-alkaline plasma by multiphoton ionization // Cont. paper XX FUSION , 1993, P.157-159 Lissabon, Portugalla July 26.

189. Alimov D.T., Ilkov F.A. Ismailov A.Z., Tursunov M.A., Zhuk A.A. The Investigation of Quadrupole Transition in Ca by Means of Laser Resonance Spectroscopy // Laser Physics, -V.3.-N.3.-1993-P.651-653.

190. Жук А.А., Медведева В.К., Турсунов М.А. Квадрупольные переходы в атоме кальция: Тез. Российск семинара по атомной спектроскопии Черноголовка - декабрь 1993 -С.49.

Список обозначений

K -степень нелинейности

I -потенциал ионизации

ω - частота

\hbar -постоянная Планка

σ - сечения ионизации

W - вероятность процесса

F - интенсивность излучения

Γ - ширина резонансного уровня

Δ - величина расстройки уровня

V - матричный элемент перехода

d_{01} -матричный элемент дипольного момента

L - разница динамических поляризуемостей

J -угловые моменты

M - магнитные квантовые числа

L -орбитальный угловой момент

S -спиновые угловой момент

Z - число электронов в атоме

N -полное число образованных ионов

Q -энергия излучения

δ - статический фактор излучения

λ -длина волны

μ - коэффициент эллиптичности

η - главное квантовое число

M - величина квантового дефекта

P - импульсная мощность

τ - длительность импульса

$V_{эфф}$ -эффективный объем

$S_{эфф}$ - эффективная площадь

δ_k -экспериментально измеренное значение сечения

Список сокращений

АИС- автоионизационное состояние

АИ- автоионизация

YAG-неодимовый лазер

СДА- кристалл дигидроарсенита цезия

ИМО-2Н измеритель энергии лазерного излучения

Содержание

Глава I. Физическая картина процесса многофотонной ионизации	8
1.1. Резонансный и нерезонансный процессы ионизации.	8
1.2. Правила отбора.	10
1.3. Динамический эффект Штарка. Динамические поляризуемости.	12
1.5. Основные соотношения, справедливые для LS-связи.	17
1.6. Интеркомбинационные переходы.	19
1.7. Ридберговские состояния щелочноземельных атомов.	21
1.8. Квадрупольные переходы.	22
1.9. Цель и постановка задачи исследований	23
2.1. Общие положения и методика проведения экспериментов	24
2.2. Ошибки экспериментальных измерений	28
Глава III. Нерезонансный процесс многофотонной	32
3.1. Нерезонансный процесс многофотонной ионизации атомов.	33
3.2. Экспериментальные результаты.	37
3.3. Измерения сечений многофотонной ионизации	43
3.5. Обсуждение и анализ полученных результатов	49
3.6. Выводы	52
Глава IV. Поляризационные зависимости процесса	53
4.1. Влияние поляризации на процесс нерезонансной многофотонной ионизации	54
4.2. Особенности постановки эксперимента	57
4.3. Зависимости образования однозарядных ионов щелочноземельных атомов	58
4.4. Зависимости образования однозарядных ионов	59
4.5. Сопоставление полученных результатов и анализ поляризационных зависимостей	65

4.6. Выводы	67
5.1. Экспериментальная установка, используемая для проведения экспериментов по резонансной многофотонной ионизации	68
5.2. Особенности спектров атомов Ca, Ba и Sr	69
5.3. Идентификация и анализ дисперсионных зависимостей	79
5.4. Интеркомбинационные переходы	85
5.6. Трехфотонная резонансная ионизация атома Mg на длине волны 337,14 нм.	94
5.7. Выводы	97
Глава VI. Процесс многофотонной ионизации с участием	97
6.1. Особенности методики эксперимента	97
6.2. Исследование переходов в атомах Sr в области длин волн 287-297 нм	102
6.3. Исследование переходов в атомах Sr в области	104
6.4. Исследование спектра Ca методом двухцветной многофотонной резонансной ионизационной спектроскопии	105
6.5. Обсуждение и анализ полученных результатов	106
6.6. Выводы	111
7.1. Многофотонная ионизационная спектроскопия АИС	112
7.2. Трехфотонное возбуждение АИС в Sr	115
7.3. Многоступенчатое возбуждение АИС	120
7.4. Двухступенчатое возбуждение уровней $mp^2\ ^1S_0$, в магнии и стронции	127
7.5. Экспериментальное исследование ширин АИС	134
7.6. Выводы	139

Общие выводы и заключение 140

Литература 144

Список обозначений 159

Список сокращений 160