

ΒΙΒΛΙΟΘΗΚΗ
ΠΑΝΕΠΙΣΤΗΜΙΟΥ ΙΩΑΝΝΙΝΩΝ



026000265344



... στον Άγν

42



ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

Η παρούσα διδακτορική διατριβή εκπονήθηκε στο Εργαστήριο Ατομικής & Μοριακής Φυσικής του Πανεπιστημίου Ιωαννίνων υπό την επίβλεψη του Αναπληρωτή Καθηγητή κ. Αγησίλαου Μπολοβίνου. Τον ευχαριστώ από καρδιάς για την αδιάλειπτη καθοδήγηση και ηθική συμπαράσταση που μου παρείχε όλα αυτά τα χρόνια καθώς και για τη συνεχή μετάγγιση της εργαστηριακής του πείρας.

Ευχαριστώ επίσης τον Αναπληρωτή Καθηγητή Ανδρέα Λύρα για την απλόχερη προσφορά γνώσεων, τις εύστοχες (με παιδαγωγικό πάντα τρόπο) υποδείξεις του και τις εποικοδομητικές μας συζητήσεις. Ιδιαίτερος δε, ευχαριστώ τον Επίκουρο Καθηγητή Σαμουήλ Κοέν γιατί, απλά, ήταν διαρκώς δίπλα μου σε όλα τα στάδια της διατριβής. Υπήρξε πραγματικός δάσκαλος για μένα τόσο σε πειραματικό όσο και σε θεωρητικό επίπεδο.

Τον Καθηγητή Κ. Κοσμίδη για τις χρήσιμες συζητήσεις, παρατηρήσεις και συμβουλές καθώς και για το αμέριστο ενδιαφέρον του κατά τη διάρκεια εκπόνησης της διατριβής.

Τον Αναπληρωτή Καθηγητή Π. Τσέκερη και Αναπληρωτή Καθηγητή Ι. Φίλη, για την αλληλεπίδραση μαζί τους η οποία ήταν πάντα ουσιαστική και εποικοδομητική. Τον Επίκουρο Καθηγητή Α. Οικιάδη για την ανιδιοτελή προσφορά βοήθειας όποτε αυτή του ζητήθηκε.

Τον Αναπληρωτή Καθηγητή Α. Χριστοδουλίδη και την Λέκτορα Α. Ιωαννίδου – Φίλη για τη συμβολή τους στην εκπαιδευτική μου πείρα κατά τη διάρκεια του επικουρικού μου έργου.

Την κ. Χρύσα Παπαϊωάννου και τον κ. Γεώργιο Σιαλιστή για την παροχή γραμματειακής και τεχνικής/ηλεκτρονικής υποστήριξης αντίστοιχα. Το μηχανουργό του Πανεπιστημίου Ιωαννίνων κ. Θωμά Οικονόμου για την κατασκευή όλων των διατάξεων που χρειάστηκαν.

Τους υποψήφιους διδάκτορες και τους μεταπτυχιακούς φοιτητές του εργαστηρίου.

Τους φίλους μου όλα αυτά τα χρόνια της παρουσίας μου στην πόλη των Ιωαννίνων.

Ξεχωριστά ευχαριστώ τον αδερφικό φίλο και υποψήφιο διδάκτορα κ. Σπυρίδων Καζιάννη, για την αγαστή συνεργασία και συναδελφικότητα που επέδειξε όλα αυτά τα χρόνια καθώς και για τις αμέτρητες ενδιαφέρουσες συζητήσεις γύρω από θέματα Φυσικής και όχι μόνο. Με τον Σπύρο ξεκινήσαμε μαζί αυτό το «ταξίδι» και η τύχη το έφερε να το ολοκληρώσουμε και μαζί την ίδια μέρα.

Τέλος, ένα πολύ μεγάλο ευχαριστώ για τους γονείς μου. Η διατριβή αυτή δε θα ήταν δυνατό να πραγματοποιηθεί χωρίς την υπομονή τους, την εμπιστοσύνη τους, τη διαρκή αρωγή και συμπαράστασή τους καθώς και την κατανόηση με την οποία με πλαισίωσαν όλα αυτά τα χρόνια. Η συμβολή τους είναι ανεκτίμητη.

Ιωάννης Λιόντος

Ιωάννινα 2007



Το ερευνητικό έργο συγχρηματοδοτήθηκε από την Ευρωπαϊκή Ένωση - Ευρωπαϊκό Κοινωνικό Ταμείο (ΕΚΤ) & Εθνικούς Πόρους, στα πλαίσια του προγράμματος με τίτλο «ΗΡΑΚΛΕΙΤΟΣ» το οποίο εντάσσεται στο ΕΠΕΑΕΚ ΙΙ του 3^{ου} Κοινοτικού Πλαισίου Στήριξης του ΥΠ.Ε.Π.Θ.



ΥΠΟΥΡΓΕΙΟ ΕΘΝΙΚΗΣ ΠΑΙΔΕΙΑΣ ΚΑΙ ΘΡΗΣΚΕΥΜΑΤΩΝ
ΕΙΔΙΚΗ ΥΠΗΡΕΣΙΑ ΔΙΑΧΕΙΡΙΣΗΣ ΕΠΕΑΕΚ



ΕΥΡΩΠΑΪΚΗ ΕΝΩΣΗ
ΣΥΧΡΗΜΑΤΟΔΟΤΗΣΗ
ΕΥΡΩΠΑΪΚΟ ΚΟΙΝΩΝΙΚΟ ΤΑΜΕΙΟ



Η ΠΑΙΔΕΙΑ ΣΤΗΝ ΚΟΡΥΦΗ
Επιχειρησιακό Πρόγραμμα
Εκπαίδευσης και Αρχικής
Επαγγελματικής Κατάρτισης



ΕΠΤΑΜΕΛΗΣ ΕΞΕΤΑΣΤΙΚΗ ΕΠΤΡΟΠΗ

- κ. Κουρούκλης Γεράσιμος
Καθηγητής Τμήματος Φυσικής Αριστοτελείου Πανεπιστημίου Θεσσαλονίκης

- κ. Κουρής Στυλιανός
Καθηγητής Τμήματος Φυσικής Πανεπιστημίου Πατρών

- κ. Κοσμίδης Κωνσταντίνος
Καθηγητής Τμήματος Φυσικής Πανεπιστημίου Ιωαννίνων

- κ. Μπολοβίνος Αγησίλαος
Αναπλ. Καθηγητής Τμήματος Φυσικής Πανεπιστημίου Ιωαννίνων (Επιβλέπων)

- κ. Λύρας Ανδρέας
Αναπλ. Καθηγητής Τμήματος Φυσικής Πανεπιστημίου Ιωαννίνων

- κ. Κοέν Σαμουήλ
Επικ. Καθηγητής Τμήματος Φυσικής Πανεπιστημίου Ιωαννίνων



ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκε πειραματικά (συλλέγοντας *ιόντα* και φθορισμό) ο απλός και διπλός μονοχρωματικός πολυφωτονικός ιονισμός ατόμων των Αλκαλικών Γαιών (Mg, Ca και Sr) στην περιοχή των τετραφωτονικά διεγερμένων αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων $mp^2 \ ^1S_0$ (με $m = 3, 4$ και 5 για τα Mg, Ca και Sr αντίστοιχα). Ειδικά για το άτομο του Mg τα πειραματικά ευρήματα αναπαράγονται από ένα θεωρητικό μοντέλο που συνδυάζει υπολογισμούς πίνακα πυκνότητας και εξισώσεις ρυθμών, λαμβάνοντας υπόψη την ισχυρή μονοφωτονική σύζευξη μεταξύ των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων $3p^2 \ ^1S_0$ και $3p3d \ ^1P_1$.

Η πειραματική διάταξη αποτελείται από ένα πείραμα ατομικής δέσμης (εφοδιασμένο με φασματογράφο μάζας ελεύθερου χρόνου πτήσης) όπου διεξάγονται τα πειράματα απλού και διπλού φωτοϊονισμού, καθώς και από ένα κελί παραγωγής ατμών αφιερωμένο στην μελέτη ανίχνευσης φθορισμού. Η ακτινοβολία και για τις δύο πειραματικές διατάξεις προσφέρεται από ένα αντλούμενο από Nd:YAG σύστημα laser χρωστικής το οποίο παράγει παλμούς διάρκειας ~ 5 ns ενώ οι εμπλεκόμενες εντάσεις υπό τις πειραματικές συνθήκες εστίασής μας χαρακτηρίζονται ως μέτριες ($10^{11} \text{ W/cm}^2 \leq I < 10^{12} \text{ W/cm}^2$).

Η επιλογή της τετραφωτονικής διέγερσης των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων $mp^2 \ ^1S_0$ υπαγορεύεται από την επιθυμία να είναι σχετικά μικρή η ενέργεια του φωτονίου ώστε να ευνοηθεί η (μονοφωτονική ή πολυφωτονική) ακτινοβολητική τους σύζευξη με υψηλότερα διεγερμένες (αυτοϊονιζόμενες) όπως επίσης και με χαμηλότερα (δέσμιες) καταστάσεις. Αναμένεται ότι τέτοια σχήματα κλιμακωτής διέγερσης θα ευνοήσουν την απορρόφηση σημαντικού αριθμού φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού μέσα στο ενεργειακό συνεχές, επιτρέποντας τη δημιουργία ιόντων σε διεγερμένες καταστάσεις οδηγώντας επακόλουθα σε πολύ αποδοτική παραγωγή διπλά φορτισμένων ιόντων.

Οι πειραματικές παρατηρήσεις αποκαλύπτουν πως στην περιοχή των ns παλμών ο ρόλος των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων στη δυναμική της αλληλεπίδρασης ατόμου-laser αποτυπώνεται πιο καθαρά. Σε όλες τις περιπτώσεις ο κύριος μηχανισμός σχηματισμού διπλά φορτισμένων ιόντων είναι ο διαδοχικός ιονισμός μέσω διεγερμένων ιοντικών καταστάσεων, ενώ αντιπαράθεση των αποτελεσμάτων της παρούσας εργασίας με αυτά της υπάρχουσας βιβλιογραφίας προτείνει ότι η απορρόφηση υψηλού αριθμού φωτονίων πάνω από το κατώφλι ιονισμού, και για παλμούς διάρκειας ns, γίνεται κυρίως για φωτόνια σχετικά μικρής ενέργειας (σε σύγκριση με τα απλά και διπλά δυναμικά ιονισμού).



ABSTRACT

In the present study single and double one-colour multiphoton ionization of Alkaline-Earth atoms (Mg, Ca and Sr) is investigated experimentally (collection *ions* and *fluorescence*) in the vicinity of the four-photon doubly excited $mp^2\ ^1S_0$ autoionizing states ($m = 3,4,5$ for Mg, Ca and Sr correspondingly). Especially for the Mg atom the experimental findings are reproduced by a theoretical model based on a combination of density matrix calculations and rate equations taking into account the near-resonant strong one-photon coupling between the $3p^2\ ^1S_0$ and $3p3d\ ^1P_1$ autoionizing states.

The experimental setup consists of an atomic beam apparatus (equipped with a TOF mass spectrometer) where the single and double photoionization experiments have been performed and a vapour-cell devoted to the studies of fluorescence detection. In both cases the laser radiation is provided by a Nd:YAG pumped dye laser system delivering linearly polarized pulses of ~ 5 ns duration while the employed intensities under our focusing conditions are moderate ($10^{11}\ \text{W/cm}^2 \leq I < 10^{12}\ \text{W/cm}^2$).

The choice of the four-photon excitation of the $mp^2\ ^1S_0$ states is dictated by the desire for the photon energy to be low enough so that it favours their (single or multiple) photon radiative couplings to higher (autoionizing) as well to lower (bound) atomic states. It may be anticipated that such ladder excitation schemes favours the absorption of a significant number of ATI-photons within the continuum, allowing the production of ions in excited states resulting in a subsequent very efficient doubly charged ion production.

The experimental observations reveal that within the ns laser pulse regime the role of autoionizing states in the dynamics of the atom-laser field interaction emerges more clearly. In all cases the main mechanism of the doubly charged ion production is the sequential process via excited ionic states, while a confrontation of the present results to those of the existing relevant literature suggests that absorption of high numbers of above threshold photons in Alkaline Earth atoms, and with pulses of ns duration, occurs predominantly with low photon energy radiation (as compared to the single and double ionization potentials).



ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ

ΕΙΣΑΓΩΓΗ		1
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1	ΘΕΩΡΗΤΙΚΗ ΠΕΡΙΓΡΑΦΗ	10
1.1	Ατομική Δομή	10
1.2	Αλληλεπίδραση μιας διακριτής κατάστασης με το ενεργειακό συνεχές: Αυτοϊονισμός	14
1.3	Ακτινοβολητικές Μεταβάσεις	22
1.3.1	<i>Προσέγγιση ηλεκτρικής διπολικής αλληλεπίδρασης</i>	22
1.3.2	<i>Πολυφωτονική Απορρόφηση</i>	23
1.3.2.2	<i>Μη-συντονιστική περίπτωση</i>	23
1.3.2.3	<i>Συντονιστική περίπτωση</i>	27
1.3.3	<i>Δυναμικό Φαινόμενο Stark</i>	29
1.3.4	<i>Κανόνες Επιλογής</i>	33
1.4	Φορμαλισμός Πίνακα Πυκνότητας	34
1.4.1	<i>Εισαγωγικά</i>	34
1.4.2	<i>Εξισώσεις κίνησης πίνακα πυκνότητας για ένα κλειστό άτομο δύο - επιπέδων</i>	37
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2	ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΟ ΜΕΡΟΣ	41
2.1	Εισαγωγή	41
2.1	Πειραματική Διάταξη	42
2.2.1	<i>Σύστημα Laser</i>	43
2.2.2	<i>Διάταξη ατομικής δέσμης - Φασματογράφος μάζας</i>	44
2.2.2.1	<i>Μαγνήσιο</i>	48
2.2.2.2	<i>Ασβέστιο</i>	50
2.2.2.3	<i>Στρόντιο</i>	51
2.3	<i>Κελί ατμών</i>	52
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3	ΠΑΡΟΥΣΙΑΣΗ ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΩΝ - ΑΝΑΛΥΣΗ	53
3.1	Μηχανισμοί παραγωγής απλά και διπλά φορτισμένων ιόντων	53
3.2	<i>Μαγνήσιο</i>	56
3.2.1	<i>Διάγραμμα ενεργειακών επιπέδων του Μαγνησίου</i>	56
3.2.2	<i>Θεωρητικό μοντέλο $Mg - Mg^+$</i>	57
3.2.3	<i>Παραγωγή ιόντων Mg^+</i>	67
3.2.4	<i>Παραγωγή ιόντων Mg^{2+}</i>	73
3.2.5	<i>Πειραματική επαλήθευση δημιουργίας Mg^+ σε διεγερμένες καταστάσεις: Μελέτη φθορισμού</i>	78
3.3	<i>Ασβέστιο</i>	83
3.3.1	<i>Διάγραμμα ενεργειακών επιπέδων του Ασβεστίου</i>	83



3.3.2	<i>Παραγωγή ιόντων Ca^+</i>	84
3.3.3	<i>Παραγωγή ιόντων Ca^{2+}</i>	90
3.3.4	<i>Σχηματισμός Ca^+ σε διεγερμένες καταστάσεις: Απόδοση ιοντικού φθορισμού</i>	95
3.4	<i>Στροντίο</i>	99
3.4.1	<i>Διάγραμμα ενεργειακών επιπέδων του Στροντίου</i>	99
3.4.2	<i>Παραγωγή ιόντων Sr^+</i>	101
3.4.3	<i>Παραγωγή ιόντων Sr^{2+}</i>	107
3.4.3	<i>Σχηματισμός Sr^+ σε διεγερμένες καταστάσεις: Απόδοση ιοντικού φθορισμού – Συνολική εικόνα</i>	111
	ΣΥΝΟΨΗ – ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ – ΠΡΟΤΑΣΕΙΣ ΓΙΑ ΠΑΡΑΠΕΡΑ ΜΕΛΕΤΗ	119
	ΑΝΑΦΟΡΕΣ	124



ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Είναι γνωστό εδώ και σχεδόν ένα αιώνα ότι ένα άτομο μπορεί να φωτοϊονιστεί απορροφώντας φωτόνιο ενέργειας μεγαλύτερης ή ίσης από την ενέργεια ιονισμού του ατόμου. Η πιθανότητα ιονισμού του ατόμου σε αυτή την περίπτωση είναι γραμμική ως προς την ένταση της ακτινοβολίας. Ο πολυφωτονικός ιονισμός, απόρροια της διαδοχικής απορρόφησης δύο ή/και περισσότερων φωτονίων, αποτελεί μια γενίκευση του φωτοϊονισμού. Η πρώτη εργασία στις πολυφωτονικές διαδικασίες χρονολογείται από το 1931 όταν η Göeppert-Mayer [Göeppert-Mayer 1931] δημοσίευσε ένα θεωρητικό άρθρο με θέμα την ταυτόχρονη απορρόφηση δύο φωτονίων. Πειραματική επαλήθευση όμως της θεωρητικής πρόβλεψης δεν ήταν δυνατό να πραγματοποιηθεί λόγω της έλλειψης φωτεινής πηγής μονοχρωματικής ακτινοβολίας και ικανής έντασης. Δεδομένου ότι η ενεργός διατομή διφωτονικής μετάβασης είναι μικρή, η παρατήρησή της απαιτεί μια ισχυρή πηγή φωτός. Κατά τη δεκαετία του 1950 αναπτύχθηκαν ισχυρές πηγές στην ενεργειακή περιοχή των ραδιοκυμάτων για την παρατήρηση πολυφωτονικών μεταβάσεων μεταξύ υποεπιπέδων Zeeman μιας ατομικής [Hughes 1950] ή μοριακής κατάστασης [Kusch 1954]. Η έλευση των laser και ειδικά του πανίσχυρου για την εποχή laser-Ρουβιδίου Q-μεταγωγής στην αρχή της δεκαετίας του 1960 παρείχε στους επιστήμονες μια εξαιρετικά ισχυρή πηγή ακτινοβολίας στο ορατό φάσμα καθιστώντας δυνατή τη μελέτη πολυφωτονικών μεταβάσεων όχι μόνο μεταξύ δέσμιων καταστάσεων αλλά επίσης μεταξύ καταστάσεων δέσμιων και του συνεχούς, δηλ. πολυφωτονικός ιονισμός.

Ο πολυφωτονικός ατομικός ιονισμός παρατηρήθηκε για πρώτη φορά από τους Voronov και Delone [Voronov 1965] και τους Agostini *et al* [Agostini 1968]. Στα πειράματα αυτά, οι παλμοί laser εστιάστηκαν σε χαμηλής-πίεσης ($\sim 10^{12}$ άτομα/cm³) ευγενή αέρια. Ο N-φωτονικός ρυθμός ιονισμού είναι ίσος με $\sigma^{(N)} I^N$ όπου $\sigma^{(N)}$ είναι η γενικευμένη ενεργός διατομή N-φωτονικού ιονισμού σε μονάδες cm²N^{N-1} και I η ένταση laser εκφρασμένη σε φωτόνια/(cm⁻²s⁻¹). Όσο η τάξη μη-γραμμικότητας N αυξάνεται η $\sigma^{(N)}$ μειώνεται, συνεπώς για να αυξηθεί ο ρυθμός ιονισμού μιας N-φωτονικής διαδικασίας χρειάζεται να εφαρμοστεί αντίστοιχα μεγάλη ένταση laser. Τυπικά, για τον τετραφωτονικό ιονισμό του Cs απαιτείται μια ελάχιστη ένταση της τάξης των 10¹⁰ W/cm², για τον 11-φωτονικό ιονισμό του Xe $\sim 10^{13}$ W/cm² και για τον 22-φωτονικό ιονισμό του He $\sim 10^{14}$ - 10^{15} W/cm² [L'Huiller 1983b], δηλ. οι εντάσεις θεωρούνται μεγάλες αλλά παρ' όλα αυτά το ηλεκτρικό πεδίο που επάγουν είναι



Εισαγωγή

μικρότερο από το ηλεκτρικό πεδίο που αισθάνεται το ηλεκτρόνιο στο άτομο του Υδρογόνου στη βασική κατάσταση ($\sim 5 \times 10^9$ V/cm). Είναι ξεκάθαρο ότι οι εντάσεις αυτές μπορούν να παραχθούν μόνο από ισχυρούς παλμούς laser. Ο πολυφωτονικός ατομικός ιονισμός αντικατοπτρίζει τόσο τα χαρακτηριστικά του παλμού laser (χρονικό και φασματικό εύρος παλμού) όσο και χαρακτηριστικές ιδιότητες του ατόμου οι οποίες επηρεάζονται υπό την παρουσία ηλεκτρικού πεδίου laser, όπως ο διαχωρισμός ενεργειακών υποεπιπέδων με διαφορετικό m_j και η μεταβολή του εύρους και μετατόπιση των θέσεων των ενεργειακών καταστάσεων, εν συγκρίσει με την απουσία αυτού. Από τα τέλη της δεκαετίας του 1970 παρατηρείται μετατόπιση της ερευνητικής δραστηριότητας όσον αφορά τον πολυφωτονικό ιονισμό. Οι περισσότερες προσπάθειες επικεντρώθηκαν σε τρεις κύριες περιοχές: Στον ιονισμό πάνω από το δυναμικό ιονισμού (Above Threshold Ionization - ATI), στην παραγωγή πολλαπλά φορτισμένων ιόντων και στην παραγωγή υπεριώδους ακτινοβολίας κενού (Vacuum Ultra Violet - VUV). Οι τεχνικές που αναπτύχθηκαν για τη μελέτη του πολυφωτονικού ιονισμού βασίζονται κυρίως στη συλλογή ιόντων που δημιουργούνται κατά την αλληλεπίδραση του παλμού laser-ατόμων (με το δείγμα να βρίσκεται στην αέρια φάση). Παράλληλα εξελίχθηκαν τεχνικές ανίχνευσης φθορισμού που παράγεται κατά την αποδιέγερση ατομικών/ιοντικών καταστάσεων καθώς επίσης συλλογής και ανάλυσης ενεργειών των εκπεμπόμενων ηλεκτρονίων.

Με τον όρο ATI εννοούμε την απορρόφηση επιπλέον φωτονίων από τον ελάχιστο αναγκαίο αριθμό που απαιτείται για να ιονιστεί το άτομο. Αναμενόταν ότι σε μια διαδικασία N-φωτονικού ιονισμού, η κινητική ενέργεια του ηλεκτρονίου που απελευθερώνεται θα έχει μία και καθορισμένη τιμή σύμφωνα με τη σχέση $N\hbar\omega - E_i$, όπου $\hbar\omega$ η ενέργεια του φωτονίου και E_i η ενέργεια ιονισμού του ατόμου και N ο αριθμός των φωτονίων (η εικόνα-Einstein για το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο). Οι Agostini *et al* όμως, παρατήρησαν στα πειράματά τους ότι το φάσμα ενεργειών των ηλεκτρονίων που παράγεται από τον εξαφωτονικό ιονισμό ατόμων Xe, αποτελείται από δύο κορυφές που αντιστοιχούν στην απορρόφηση έξι και επτά φωτονίων αντίστοιχα [Agostini 1979]. Οι Gontier *et al* ονόμασαν το φαινόμενο ιονισμό πάνω από το δυναμικό ιονισμού [Gontier 1980]. Επιπρόσθετα αποτελέσματα έδειξαν ότι το ενεργειακό φάσμα των ηλεκτρονίων αποτελείται από μια σειρά ισαπεχουσών κορυφών με την απόστασή τους να ισούται με την ενέργεια ενός φωτονίου. Ποιος είναι όμως ο μηχανισμός μέσω του οποίου το ηλεκτρόνιο απορροφά επιπλέον φωτόνια? Είναι γνωστό πως ένα ελεύθερο



ηλεκτρόνιο (που δεν υφίσταται την επίδραση πεδίου από άτομο ή ιόν) δεν μπορεί να απορροφήσει φωτόνια από το πεδίο laser λόγω της ισχύος της αρχής διατήρησης ορμής. Ένα ηλεκτρόνιο που παράγεται μέσω πολυφωτονικού ιονισμού μπορεί να απορροφήσει φωτόνια από το εναλλασσόμενο πεδίο laser ενώ βρίσκεται ακόμα στο πεδίο του πατρικού ιόντος στο οποίο αρχικά ήταν δεσμευμένο. Το πατρικό ιόν παρέχει τη μεταφορά ορμής που είναι αναγκαία για την διατήρησή της [Mainfray and Manus 1991].

Ένα φυσικό ερώτημα που προκύπτει από την παρατήρηση του πολυφωτονικού ιονισμού και τη δημιουργία απλά φορτισμένων ιόντων είναι κατά πόσο μπορούν να δημιουργηθούν πολλαπλά φορτισμένα ιόντα, δηλ. απομάκρυνση δύο ή και περισσότερων ηλεκτρονίων από ένα πολυηλεκτρονικό άτομο. Αφού ακόμα και ο απλός ιονισμός θεωρείτο πολύ δύσκολος να πραγματοποιηθεί, η σκέψη των πολλαπλά φορτισμένων ιόντων φάνταζε απίθανη λόγω του ότι σχετίζεται με διαδικασίες πολύ υψηλότερης τάξης. Η ομάδα των *Alekshakin et al* πρώτοι ανέφεραν την παρατήρηση διπλά φορτισμένων ιόντων μέσω πολυφωτονικού ιονισμού ατόμων των Αλκαλικών Γαιών (Mg, Ca, Sr, Ba), Λανθανιδών (Eu, Sm) όπως και στο άτομο του Pb [Alekshakin 1977;1979]. Σύντομα ακολούθησαν αναφορές παρατήρησης από αριθμό επιστημονικών ομάδων τόσο πολυφωτονικού απλού και διπλού ιονισμού ατόμων των Αλκαλίων [Fabre 1982, Petite 1984] και των Αλκαλικών Γαιών [Feldman and Welge 1982, Agostini 1985a, DiMauro 1988, Camus 1989] όσο και πολλαπλού ιονισμού σε άτομα της ομάδας των ευγενών αερίων [Gavrila 1992].

Η αλληλεπίδραση ενός ισχυρού παλμού laser με άτομα που έχουν μεγάλο αριθμό ηλεκτρονίων στον εξωτερικό τους φλοιό και κυρίως άτομα με συμπληρωμένο τον εξωτερικό τους φλοιό, οδηγεί στην απομάκρυνση αρκετών ή ακόμη και όλων των οπτικών ηλεκτρονίων σχηματίζοντας πολλαπλά φορτισμένα ιόντα. Το φαινόμενο παρατηρήθηκε για πρώτη φορά στο άτομο του Κρυπτού από τους L' Huiller *et al* [L' Huiller 1982]. Ακολούθησαν πειράματα σε διάφορα μήκη κύματος Luk *et al* [1983] - 193 nm, L' Huiller *et al* [1983a] - 532 nm, L' Huiller *et al* [1983b] - 1064nm, Yergeau *et al* [1987] - 9550nm, Perry *et al* [1988] - 586 nm και Augst *et al* [1989] - 1053 nm, με τα πολλαπλά φορτισμένα ιόντα που παράγονται να δημιουργούνται είτε στη βασική τους είτε σε κάποια διεγερμένη κατάσταση. Τα μήκη κύματος των εκπεμπόμενων φωτονίων κατά την αποδιέγερση των τελευταίων, ανήκουν στην περιοχή της υπεριώδους ακτινοβολίας κενού ή ακόμα και στις «μαλακές» ακτίνες-X,

Εισαγωγή

καθιστώντας εφικτή την παραγωγή ισχυρής και σύμφωνης ακτινοβολίας ακόμα και στο «βαθύ» υπεριώδες κενού.

Από τις περιπτώσεις πολλαπλού ιονισμού η πιο απλή και προσιτή για μελέτη τόσο πειραματικά όσο και θεωρητικά είναι η περίπτωση του διπλού ιονισμού. Ανάμεσα δε στα ατομικά στοιχεία, τα άτομα της ομάδας των Αλκαλικών Γαιών θεωρούνται ιδανικοί υποψήφιοι από θεωρητικής άποψης για τη μελέτη του απλού-διπλού ιονισμού λόγω της ύπαρξης δύο οπτικών ηλεκτρονίων στην εξωτερική τους στοιβάδα. Όντας ότι πιο κοντινό στο πρόβλημα του συστήματος τριών αλληλεπιδρώντων σωματίων στην Ατομική Φυσική-βλέπε άτομο του He (εξαιτίας της σημαντικής ενεργειακής απόστασης των δύο οπτικών ηλεκτρονίων από τους αμέσως επόμενους κλειστούς φλοιούς), οι Αλκαλικές Γαίες συγκέντρωσαν την άμεση προσοχή της επιστημονικής κοινότητας οδηγώντας στη μελέτη και στο χαρακτηρισμό του δέσμιου και του αυτοϊονιζόμενου φάσματος (το οποίο είναι πλούσιο σε διπλά διεγερμένες καταστάσεις λίγο πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού τους), τόσο πειραματικά [Armstrong 1978, Brown and Ginter 1980, Preses 1984, Baig 1984, Sugar and Corliss 1985, Lambropoulos 1988, Kompitsas 1990;1991, Lindsay 1992, Bolovinos 1992;1996, Camus 1993, Assimopoulos 1994;1998, Jimoyiannis 1992;1993] όσο και θεωρητικά [Aymar 1984;1987, Aymar and Telmini 1991, Moccia and Spizzo 1988, Dai 1995, McKenna and van der Hart 2003, Benec'h and Bachau 2004]. Παράλληλα οι Αλκαλικές Γαίες είναι ελκυστικές και από πειραματικής πλευράς λόγω των χαμηλών πρώτων και δεύτερων δυναμικών ιονισμού τους, απαιτώντας (για μεσαίες εντάσεις laser) σχετικά μικρό αριθμό φωτονίων για το διπλό τους ιονισμό.

Η πρώτη πειραματική παρατήρηση απλού και διπλού μονοχρωματικού πολυφωτονικού ιονισμού ατόμων των Αλκαλικών Γαιών αναφέρθηκε από τους Alekshakin *et al* [Alekshakin 1977;1979] στην οποία καταγράφηκε εκπληκτικά μεγάλη ποσότητα διπλά φορτισμένων ιόντων σε σύγκριση με τα απλά ιόντα, μη αναμενόμενη για την εμπλεκόμενη διάρκεια παλμού (~30ns) και για τις μεσαίες εντάσεις laser που επιτεύχθηκαν (~10¹¹ W/cm²). Από τότε ο απλός και διπλός πολυφωτονικός ιονισμός έχει προσελκύσει το επιστημονικό ενδιαφέρον εδώ και τρεις δεκαετίες. Προτάθηκαν δύο δυνατοί μηχανισμοί παραγωγής διπλά φορτισμένων ιόντων στην περιοχή εντάσεων laser όπου μελετάται το φαινόμενο ($I \leq 10^{14}$ W/cm²): Ο αποκαλούμενος απευθείας ιονισμός [Boyer 1985] όπου τα δύο ηλεκτρόνια απομακρύνονται ταυτόχρονα από το ουδέτερο άτομο και ο διαδοχικός ιονισμός



[Lambropoulos and Tang 1987] όπου τα διπλά φορτισμένα ιόντα παράγονται κατά τη διάρκεια του ίδιου παλμού laser, ως αποτέλεσμα πολυφωτονικού ιονισμού των απλά φορτισμένων ιόντων τα οποία σχηματίζονται μέσω του πολυφωτονικού ιονισμού των ουδέτερων ατόμων. Γενικότερα οι επιστημονικές ομάδες που μελέτησαν το φαινόμενο, εστίασαν κυρίως τις προσπάθειές τους στην ανίχνευση ξεκάθαρων πειραματικών ενδείξεων απευθείας διπλού ιονισμού. Ιδιαίτερη προσοχή δόθηκε δε, στη συντονιστική πολυφωτονική διέγερση των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων [Hou 1990, van Druten 1994]. Λόγω του ότι οι καταστάσεις αυτές εκδηλώνουν έντονη ηλεκτρονιακή συσχέτιση, αναμένεται να συνεισφέρουν σημαντικά στο σχηματισμό διπλά φορτισμένων ιόντων. Πιο συγκεκριμένα, είχε προταθεί ότι διέγερσή τους θα οδηγούσε στην απορρόφηση επιπλέον φωτονίων (από τον ελάχιστο αναγκαίο αριθμό που απαιτείται για να ιονιστεί το άτομο) στο συνεχές και ότι αυτή η απορρόφηση θα μπορούσε να οδηγήσει σε απευθείας διπλό ιονισμό. Έως τώρα, εκτός από μια σειρά πειραματικών μελετών (στα Ba, Sr) χρησιμοποιώντας παλμική (~40ns) υπέρυθη ακτινοβολία όπου οι συγγραφείς ισχυρίζονται ότι παρατήρησαν απευθείας διπλό ιονισμό [Bondar 1992;1993;2000;2002], τα πειραματικά ευρήματα στα άτομα των Αλκαλικών Γαιών [Agostini 1985b, Jingyuan 1985, DiMauro 1988, Zhu 1989, Camus 1989, Kim 1990, Nakhate 1991, Shao 1991, van Druten 1994, Xenakis 1999, Gillen 2001] δείχνουν ότι τα διπλά φορτισμένα ιόντα (για ποικιλία εμπλεκόμενων εντάσεων laser και παλμούς, στο ορατό φάσμα, που κυμαίνονται από ns έως fs) παράγονται μέσω διαδοχικής διαδικασίας ιονισμού. Παρόλα αυτά, καταδεικνύεται, ακόμα και για βραχείς παλμούς, ο σημαντικός ρόλος που διαδραματίζουν οι αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις και τα φαινόμενα ηλεκτρονιακής συσχέτισης τόσο στη δυναμική διέγερσης του ατόμου όσο και στη διαδικασία διαδοχικού διπλού πολυφωτονικού ιονισμού που εκδηλώνεται μέσω της συμβολής τους στην απορρόφηση επιπλέον φωτονίων στο συνεχές που έχει ως αποτέλεσμα τη δημιουργία ιόντων σε διεγερμένες καταστάσεις.

Η ύπαρξη αυτών των διπλά διεγερμένων καταστάσεων λίγο πάνω από το πρώτο δυναμικό ιονισμού προσδίδει μια πολύ ενδιαφέρουσα ιδιαιτερότητα στο μονοχρωματικό απλό και διπλό πολυφωτονικό ιονισμό των ατόμων των Αλκαλικών Γαιών. Μπορεί να ισχυριστεί κανείς ότι με προσεκτική επιλογή μήκους κύματος του laser, καθίσταται δυνατή η διερεύνηση σχημάτων κλιμακωτής διέγερσης (π.χ. τρεις διαδοχικές καταστάσεις να είναι κοντά-σε-συντονισμό για μια δεδομένη ενέργεια φωτονίου) τα οποία ενδεχομένως ευνοούν την

Εισαγωγή

απορρόφηση μεγάλου αριθμού φωτονίων μέσα στο ενεργειακό συνεχές (το οποίο διέπεται από ηλεκτρονιακή συσχέτιση εξαιτίας της παρουσίας των διπλά διεγερμένων αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων), πριν το άτομο ιονιστεί. Μια τέτοια απορρόφηση οδηγεί στη δημιουργία απλά φορτισμένων ιόντων σε διεγερμένες καταστάσεις με αποτέλεσμα το μετέπειτα πολυφωτονικό ιονισμό τους (κατά τη διάρκεια του ίδιου παλμού laser), ο οποίος αναμένεται να οδηγήσει σε πολύ αποδοτική παραγωγή διπλά φορτισμένων ιόντων ακόμα και με μέτριες εντάσεις ($<10^{13}$ W/cm²) και παλμούς διάρκειας ns. Ο λόγος αυτός μπορεί ως ένα βαθμό να εξηγήσει την ιδιαίτερα υψηλή απόδοση διπλού ιονισμού που παρατηρήθηκε από τους Alekshakin *et al* το 1977 αλλά και τις μετέπειτα πειραματικές μελέτες [Agostini 1985, DiMauro 1988, Kim 1990].

Είναι γνωστό πως η χρήση παλμών διάρκειας ps και fs οδηγεί σε απορρόφηση αριθμού φωτονίων ακόμα και μέσα στο χωρίς δομή συνεχές των ατόμων των Αλκαλίων [Fabre 1982, Petite 1984]. Παρόλα αυτά, η συμβολή των διπλά διεγερμένων καταστάσεων των Αλκαλικών Γαιών [Xenakis 1999] και σε μερικές περιπτώσεις των ατόμων των ευγενών αερίων στο φαινόμενο [Walker 1993, Charalambidis 1994, Chaloupka 2003, Rudatti 2004] είναι πλέον αναγνωρισμένη ακόμη και όταν εμπλέκεται ισχυρή ($>10^{13}$ W/cm²) παλμική ακτινοβολία διάρκειας έως και μερικά fs. Ωστόσο όμως, ο ρόλος τους στη δυναμική της αλληλεπίδρασης ατόμου-laser αναδεικνύεται πιο καθαρά στο εύρος των ns παλμών (μια δυσμενή θεωρητικά περίπτωση λόγω της πολύ γρήγορης διαδικασίας αυτοϊονισμού) καθιστώντας έτσι άξια περαιτέρω μελέτης τη διαδικασία παρόμοιων δρόμων τύπου κλιμακωτής διέγερσης.

Στόχος των επιστημονικών ομάδων ήταν η διαμόρφωση κατάλληλων πειραματικών συνθηκών τέτοιων ώστε το άτομο να απορροφήσει μεγάλο αριθμό φωτονίων πάνω από το πρώτο δυναμικό ιονισμού (πριν ιονιστεί ή αυτοϊονιστεί μιας και ο χρόνος ζωής των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων είναι της τάξης των ps – fs), σε μια προσπάθεια αύξησης της πιθανότητας παρατήρησης διαδικασίας απευθείας διπλού ιονισμού ατόμων των Αλκαλικών Γαιών. Προς την κατεύθυνση αυτή, η επιστημονική κοινότητα επέλεξε τη χρήση υπερβραχέων παλμών laser (ps, fs) και υψηλών εντάσεων ($I > 10^{12}$ W/cm²) σε βάρος των ns παλμών, που την εποχή εκείνη (μέσα δεκαετίας '80 – μέσα δεκαετίας '90) ισχυρούς ns παλμούς παρείχαν κυρίως τα Nd:YAG lasers και οι αρμονικές τους [DiMauro 1988, Kim



1990]. Από την άλλη πλευρά όμως οι πηγές παραγωγής fs παλμών δεν προσφέρουν τη δυνατότητα σάρωσης ως προς το μήκος κύματος [Xenakis 1999, Gillen 2001].

Το κενό που παρατηρείται όσον αφορά τη σε βάθος διερεύνηση της δυναμικής της διέγερσης με ns παλμούς laser έρχεται να καλύψει η εργασία που παρουσιάζεται στην παρούσα διδακτορική διατριβή. Με τη βοήθεια των σύγχρονων εμπορικά διαθέσιμων ns lasers χρωστικής (dye lasers) (τα οποία διαθέτουν τη δυνατότητα σάρωσης του μήκους κύματος στην ορατή περιοχή παρέχοντας μεγάλη ενέργεια ανά παλμό) καθίσταται εφικτή η μελέτη του πολυφωτονικού απλού - διπλού ιονισμού μέσω σχημάτων κλιμακωτής διέγερσης που εμπλέκουν συντονισμούς μεταξύ δέσμιων και αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων στις περιοχές απορρόφησης διαδοχικών φωτονίων, π.χ. στο τρίτο, στο τέταρτο και στο πέμπτο φωτόνιο.

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκε πειραματικά (συλλέγοντας *ιόντα και φθορισμό*) ο απλός και διπλός ιονισμός των Mg, Ca και Sr στη περιοχή των τετραφωτονικά διεγερμένων $mp^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων με [$m = 3,4,5$ για τα Mg, Ca και Sr αντίστοιχα], με την κατάλληλη επιλογή μηκών κύματος laser για την εκάστοτε υπό μελέτη περιοχή. Επιπλέον, για το Mg αναπτύχθηκε θεωρητικό μοντέλο βασισμένο σε συνδυασμό εξισώσεων Πίνακα-πυκνότητας και ρυθμών μεταβολής πληθυσμών το οποίο επαληθεύει πλήρως τα πειραματικά ευρήματα καθώς και την ισχυρή μονοφωτονική σύζευξη μεταξύ της $3p^2 \ ^1S_0$ και της υψηλότερα διπλά διεγερμένης $3d4p \ ^1P_1$ που οδηγεί στον ενεργειακό τους διαχωρισμό Rabi.

Για τις $mp^2 \ ^1S_0$ υπάρχουν πλούσια διαθέσιμα φασματοσκοπικά δεδομένα καταγεγραμμένα είτε με τεχνικές βασισμένες σε βηματική διέγερση [Boloninos 1992 (Ca), Kompitsas 1990 (Sr)] είτε με διφωτονική φασματοσκοπία [Shao 1993(Mg), Bonanno 1986(Mg)]. Ο κύριος λόγος επιλογής διέγερσης με τέσσερα φωτόνια των $mp^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων υπαγορεύεται από την επιθυμία για την ενέργεια του φωτονίου να είναι αρκετά μικρή (σε σχέση με το αντίστοιχο δυναμικό ιονισμού) ώστε να ευνοεί την μονοφωτονική (ή πολυφωτονική) τους ακτινοβολητική σύζευξη με ενεργειακά χαμηλότερες (δέσμιες) όπως και με υψηλότερες (αυτοϊονιζόμενες) ατομικές καταστάσεις. Εναλλακτικά, και σε συμφωνία με τους κανόνες επιλογής πολυφωτονικών μεταβάσεων, οι $mp^2 \ ^1S_0$ θα μπορούσαν να διεγερθούν με δύο ή έξι φωτόνια. Στη πρώτη περίπτωση το φωτόνιο δεν πληροί τις προϋποθέσεις σχήματος κλιμακωτής διέγερσης. Στη δεύτερη,

Εισαγωγή

μειονέκτημα θεωρείται η μη δυνατότητα μεταβολής του μήκους κύματος στην ενεργειακή περιοχή όπου ανήκει το σχετικό φωτόνιο ενώ οι απαιτήσεις σε ένταση laser θα ήταν ιδιαίτερα αυξημένες (εξαφωτονικός ιονισμός). Όσον αφορά το παρών πείραμα, πράγματι και για τις τρεις τετραφωτονικά διεγερμένες $mp^2 \ ^1S_0$ καταστάσεις υπάρχει τουλάχιστον μία δέσμια κατάσταση 1P_1 συμμετρίας στην περιοχή απορρόφησης του τρίτου φωτονίου. Από την άλλη μεριά ο αριθμός των προσεγγίσιμων καταστάσεων στην περιοχή απορρόφησης του πέμπτου φωτονίου μεγαλώνει με την αύξηση του ατομικού αριθμού. Ενώ για την περίπτωση του Mg υπάρχει μία μόνο κατάσταση ($3d4p \ ^1P_1$), στην περίπτωση του Ca και του Sr το πέμπτο φωτόνιο προσεγγίζει πλήθος αυτοϊονιζόμενων επιπέδων Rydberg κοντά στην περιοχή των $mp_{1/2,3/2}$ κατωφλίων ($m = 3,4,5$ για Mg, Ca, Sr αντίστοιχα).

Εξαιρετικό ενδιαφέρον παρουσιάζει η μελέτη των ομοιοτήτων και διαφορών μεταξύ των δύο αυτών ακραίων περιπτώσεων, εστιάζοντας πιο συγκεκριμένα στον αριθμό φωτονίων που απορροφώνται πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού. Εδώ θα πρέπει να σημειωθεί ότι, σε αντίθεση με τις μελέτες που κάνουν χρήση παλμών διάρκειας ps και fs τα περισσότερα πειράματα απλού και διπλού ιονισμού σε άτομα των Αλκαλικών Γαιών που εκτελέστηκαν με ns παλμούς laser, αποκάλυψαν απορρόφηση όχι περισσότερων του ενός επιπλέον φωτονίου από τον ελάχιστο αριθμό που απαιτείται για τον ιονισμό του ατόμου [Lambropoulos 1998]. Υπάρχουν μόνο ορισμένες εξαιρέσεις στα ευρήματα αυτά. Στο Mg οι Kim *et al* [Kim 1990] και για εντάσεις σαφώς μεγαλύτερες από 10^{12} W/cm^2 παρατήρησαν απορρόφηση τεσσάρων επιπλέον φωτονίων χρησιμοποιώντας ακτινοβολία μήκους κύματος 1064 nm ενώ με επιφύλαξη ανέφεραν την παρατήρηση απορρόφησης τριών φωτονίων με παλμούς laser στα 532 nm. Για χαμηλότερες εντάσεις ($<10^{12} \text{ W/cm}^2$) έχει παρατηρηθεί αναμφισβήτητα απορρόφηση δύο επιπλέον φωτονίων στο Mg [Kim 1990], Ca [DiMauro 1988, Haugen 1992] και Sr [Haugen 1992, Haugen 1988]. Για το Ca, οι Haugen and Stapelfeldt [Haugen 1992] υποστηρίζουν με επιφύλαξη την απορρόφηση τριών επιπλέον φωτονίων. Οι ίδιοι συγγραφείς στο Sr πιο συγκεκριμένα, ενώ πραγματοποίησαν σάρωση της περιοχής ($\sim 532\text{nm}$) με ένα χαμηλής έντασης dye-laser χωρίς να παρατηρήσουν ενδείξεις ύπαρξης αυτοϊονιζόμενης δομής, εντούτοις τις μετρήσεις φθορισμού τις κατέγραψαν χρησιμοποιώντας τη δεύτερη αρμονική ενός Nd:YAG laser πολύ ισχυρότερης έντασης ($\sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$). Παρόλα αυτά για τέτοιες τιμές εντάσεων, οι επαγόμενες από το πεδίο laser ενεργειακές μετατοπίσεις των επιπέδων αναμένεται να είναι σημαντικού μεγέθους και κατά συνέπεια μερικές καταστάσεις



μπορεί να έρθουν σε συντονισμό. Ο ανωτέρω συλλογισμός είναι σε συμφωνία με τα ευρήματα που παρουσιάζονται στην παρούσα εργασία όπως επίσης και η αναμφισβήτητη παρατήρηση απορρόφησης τουλάχιστον δύο φωτονίων μέσα στο ενεργειακό συνεχές και για τις τρεις υπό μελέτη Αλκαλικές Γαίες, ενώ ειδικά για το άτομο του Sr τα πειραματικά μας αποτελέσματα παρέχουν ισχυρές ενδείξεις απορρόφησης τεσσάρων ΑΤΙ φωτονίων. Κοινό γνώρισμα των αποτελεσμάτων της παρούσας εργασίας και των Kim *et al*, είναι η μικρή ενέργεια του φωτονίου σε σχέση με το αντίστοιχο δυναμικό ιονισμού. Σε συνδυασμό με τους ισχυρισμούς των Bondar and Suran [Bondar 2000;2002] για επικράτηση του μηχανισμού απευθείας διπλού ιονισμού στη περιοχή μηκών κύματος του υπερύθρου, μπορεί κανείς να συμπεράνει πως ένα κριτήριο που προκύπτει για την απορρόφηση επιπλέον φωτονίων στο συνεχές είναι η χρησιμοποίηση φωτονίων μικρής ενέργειας. Το φωτόνιο μικρής ενέργειας προσφέρει και τη δυνατότητα εκμετάλλευσης σχημάτων κλιμακωτής διέγερσης, με τα αποτελέσματα της παρούσας εργασίας να υποδεικνύουν ότι οι κοντά-σε-συντονισμό ακτινοβολητικές συζεύξεις, οι οποίες εξελίσσονται σε ένα σχετικά μεγάλο χρονικό εύρος (ns), παίζουν καθοριστικό ρόλο στη δυναμική της αλληλεπίδρασης ατόμου-laser, παρά την ύπαρξη ανταγωνιστικών διαδικασιών αποδιέγερσης (αυτοϊονισμός) και συνεισφέρουν σημαντικά στη συγκέντρωση πληθυσμού στις διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις. Η μετέπειτα παραγωγή των διπλά φορτισμένων ιόντων εξαρτάται άμεσα τόσο από την κατανομή του πληθυσμού στις διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις όσο και από τις συντονιστικές πολυφωτονικές μεταβάσεις που προκύπτουν εντός του συστήματος του ιόντος.

1.1 Ατομική Δομή

Η Χαμιλτονιανή ενός ατόμου N -ηλεκτρονίων και ατομικού αριθμού Z γράφεται (στο ατομικό σύστημα μονάδων $m_e = \hbar = e = 1$)

$$\begin{aligned}
 H &= H_{kin} + H_{e-n} + H_{e-e} + H_{s-o} \\
 &= -\sum_i \nabla_i^2 - \sum_i \frac{2Z}{r_i} + \sum_{i>j} \sum \frac{2}{r_{ij}} + \sum_i \xi_i(r_i)(\vec{l}_i \cdot \vec{s}_i)
 \end{aligned}
 \tag{1.1}$$

όπου $r_i = |\vec{r}_i|$ είναι η απόσταση του i -οστού ηλεκτρονίου από τον πυρήνα, $r_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ είναι η απόσταση μεταξύ του i -οστού και j -οστού ηλεκτρονίου, με το άθροισμα επί των i, j ($i > j$) να εκτείνεται σε όλα τα ζευγάρια ηλεκτρονίων. Ο όρος της Χαμιλτονιανής H_{kin} αντιστοιχεί στο άθροισμα των κινητικών ενεργειών των ηλεκτρονίων. Ο όρος H_{e-n} περιγράφει την ηλεκτροστατική αλληλεπίδραση Coulomb μεταξύ του πυρήνα και καθενός ηλεκτρονίου, ενώ ο όρος H_{e-e} περιγράφει την αμοιβαία άπωση Coulomb μεταξύ των ηλεκτρονίων ανά δύο. Ο όρος H_{s-o} οφείλεται στην δυναμική ενέργεια της αλληλεπίδρασης της μαγνητικής ροπής λόγω της ιδιοστροφορμής (σπίν) του κάθε ηλεκτρονίου με το μαγνητικό πεδίο που δημιουργεί η κίνησή του γύρω από τον πυρήνα (αλληλεπίδραση σπίν-τροχιάς). Ο όρος αυτός παίζει σημαντικό ρόλο στην δομή των ενεργειακών επιπέδων. Ο πολλαπλασιαστικός παράγοντας ξ_i μετράται σε Rydbergs (με τα \vec{l} και \vec{s} σε μονάδες \hbar), εξαρτάται από την απόσταση r_i από τον πυρήνα και χαρακτηρίζει την ένταση αυτής της αλληλεπίδρασης. Άλλες μαγνητικές αλληλεπιδράσεις όπως τροχιάς-τροχιάς ($\vec{l}_i \cdot \vec{l}_j$), σπίν-σπίν ($\vec{s}_i \cdot \vec{s}_j$) και σπίν-(άλλη) τροχιά ($\vec{l}_i \cdot \vec{s}_j$) είναι πολύ πιο αδύναμες από την αλληλεπίδραση σπίν-τροχιάς ($\vec{l}_i \cdot \vec{s}_i$) και δεν λαμβάνονται υπόψη.

Ο στόχος του κβαντομηχανικού προβλήματος είναι η επίλυση της εξίσωσης Schrödinger

$$H\Psi^k = E^k\Psi^k
 \tag{1.2}$$

μέσω της οποίας θα προσδιοριστούν οι κυματοσυναρτήσεις Ψ^k και οι ιδιοτιμές της ενέργειας E^k του ατόμου για κάθε στάσιμη κβαντική κατάσταση k .



Η κυματοσυνάρτηση Ψ είναι μια συνάρτηση $4N$ μεταβλητών (τρεις χωρικές και μια συντεταγμένη σπίν για κάθε ηλεκτρόνιο) καθιστώντας την επίλυση της κβαντομηχανικής αυτής εξίσωσης ιδιαίτερα περίπλοκη. Για $N > 1$ δεν υπάρχουν ακριβείς λύσεις της (1.2), ούτε με αναλυτικές ούτε με αριθμητικές μεθόδους, και για την επίλυση της εξίσωσης Shrödinger απαιτούνται κατάλληλες προσεγγίσεις.

Μέθοδος αναπτύγματος σε ορθοκανονικές βάσεις συναρτήσεων

Αυτή η μέθοδος προσέγγισης αναπτύχθηκε πρώτα από τον Slater [Slater 1929] και αργότερα με μεγαλύτερη λεπτομέρεια από τους Condon – Shortley [Condon and Shortley 1935] και τώρα είναι γνωστή ως η μέθοδος Slater-Condon.

Αρχικά η άγνωστη κυματοσυνάρτηση Ψ^k αναπτύσσεται σε όρους γνωστών συναρτήσεων βάσης Ψ_b

$$\Psi^k = \sum_b y_b^k \Psi_b. \quad (1.3)$$

Οι συναρτήσεις βάσης Ψ_b θεωρείται ότι είναι μέλη ενός σετ από ορθοκανονικές συναρτήσεις

$$\langle \Psi_b | \Psi_{b'} \rangle = \delta_{bb'} \quad (1.4)$$

Γενικά το σετ αυτό έχει άπειρο αριθμό μελών, έτσι η (1.3) αποτελείται από άπειρους όρους. Πρακτικά όμως η περιγραφή είναι επαρκής με ένα κατάλληλο περιορισμό σε πεπερασμένο αριθμό όρων M ανάγοντας το πρόβλημα στον καθορισμό των τιμών των M συντελεστών y_b^k ($1 \leq b \leq M$). Η αντικατάσταση της (1.3) στην εξίσωση Shrödinger (1.2) δίνει:

$$\sum_{b'=1}^M H y_{b'}^k \Psi_{b'} = E^k \sum_{b'=1}^M y_{b'}^k \Psi_{b'}$$

από την οποία λαμβάνοντας υπόψη και την (1.4) προκύπτει η

$$\begin{aligned} \sum_{b'=1}^M H_{bb'} y_{b'}^k &= E^k \sum_{b'=1}^M y_{b'}^k \langle \Psi_b | \Psi_{b'} \rangle \\ &= E^k y_b^k, \quad 1 \leq b \leq M \end{aligned}$$

όπου $H_{bb'} = \langle \Psi_b | H | \Psi_{b'} \rangle$ είναι τα στοιχεία πίνακα της Χαμιλτονιανής (1.1) στην ορθοκανονική βάση Ψ_b . Με τη βοήθεια κατάλληλων υπολογιστικών τεχνικών διαγωνοποιείται ο πίνακας της Χαμιλτονιανής (Cowan 1981) καθιστώντας έτσι σχετικά εύκολο τον προσδιορισμό των E^k και των y_b^k , δηλ. των ιδιοσυναρτήσεων και των ιδιοτιμών.

Το μοντέλο κεντρικού-πεδίου



Θεωρητική περιγραφή

Τα N ηλεκτρόνια του ατόμου αλληλεπιδρούν μεταξύ τους μέσω της αμοιβαίας άπωσης Coulomb. Σε πρώτη προσέγγιση το κάθε ηλεκτρόνιο κινείται ανεξάρτητα από τα άλλα στο σφαιρικά συμμετρικό ηλεκτροστατικό πεδίο που οφείλεται στον πυρήνα (που θεωρείται ακίνητος) και στα υπόλοιπα $N-1$ ηλεκτρόνια (προσέγγιση αυτοσυνεπούς πεδίου). Σε αυτό το κεντρικό πεδίο η κυματοσυνάρτηση του i -οστού ηλεκτρονίου θα περιγράφεται από την μονοηλεκτρονιακή συνάρτηση (ατομικό τροχιακό)

$$\varphi_i(\vec{r}_i) = \frac{1}{r} P_{n_i, l_i}(r_i) Y_{l_i, m_i}(\vartheta_i, \phi_i) \sigma_{m_i}(s_{iz}) \quad (1.5)$$

όπου Y_{l_i, m_i} είναι οι συναρτήσεις των σφαιρικών αρμονικών, σ_{m_i} οι ιδιοσυναρτήσεις του σπίν του ηλεκτρονίου και P_{n_i, l_i} το ακτινικό τμήμα του ατομικού τροχιακού, με το \vec{r}_i να δηλώνει τη θέση του ηλεκτρονίου ως προς τις συντεταγμένες (r, θ, φ) σε σχέση με την θέση του πυρήνα και την διεύθυνση του σπίν.

Η (1.5) είναι όμοια ποιοτικά με την αντίστοιχη κυματοσυνάρτηση του ατόμου του υδρογόνου (μονοηλεκτρονιακό άτομο) αλλά διαφέρει ποσοτικά ως προς το ακτινικό μέρος P_{n_i, l_i} . Η δυναμική ενέργεια του ηλεκτρονίου $V(r)$ δεν έχει πια την γνωστή μορφή της συνάρτησης Coulomb $-2Z/r$, άρα ακριβείς αναλυτικές λύσεις της διαφορικής εξίσωσης δεν είναι δυνατόν να βρεθούν. Ο καλύτερος δυνατός προσδιορισμός του $V(r)$ και κατ' επέκταση του P_{n_i, l_i} επιτυγχάνεται με κατάλληλες υπολογιστικές μεθόδους αυτοσυνεπούς επανάληψης (Cowan 1981).

Γινόμενα κυματοσυναρτήσεων

Η πιθανότητα για το ηλεκτρόνιο- i να βρίσκεται στη θέση \vec{r}_i δίνεται από την $|\varphi_i(\vec{r}_i)|^2$. Άρα η πιθανότητα το i -ηλεκτρόνιο να βρίσκεται στο \vec{r}_i και ταυτόχρονα το ηλεκτρόνιο- j να βρίσκεται στη θέση \vec{r}_j θα είναι:

$$|\varphi_i(\vec{r}_i)|^2 \cdot |\varphi_j(\vec{r}_j)|^2$$

Η συνάρτηση βάσης για όλο το άτομο θα κατασκευαστεί από τα ατομικά τροχιακά φ_i του i -ηλεκτρονίου και θα είναι το απλό γινόμενο των ατομικών τροχιακών

$$\psi = \varphi_1(\vec{r}_1) \varphi_2(\vec{r}_2) \dots \varphi_N(\vec{r}_N). \quad (1.6)$$



Στην παραπάνω έκφραση ο κάθε δείκτης i είναι μια σύντμηση για τους τέσσερις κβαντικούς αριθμούς, του ενός ηλεκτρονίου, n_i, l_i, m_l, m_s , οι οποίοι γράφονται στην πιο συμπαγή μορφή $n l_{m_l}^{m_s}$.

Λόγω της ορθοκανονικότητας των ατομικών τροχιακών ($\langle \varphi_i | \varphi_j \rangle = \delta_{ij}$) και το γινόμενο (1.6) είναι ορθοκανονικό, άρα θα ισχύει ότι

$$\langle \psi | \psi' \rangle = \delta_{\psi\psi'}$$

Παράγοντες αντισυμμετροποίησης οριζουσών

Το πρόβλημα με το γινόμενο συναρτήσεων (1.6) είναι ότι δεν αντανakλά την φυσική μη διακρισιμότητα των ηλεκτρονίων, της οποίας απαίτηση είναι όταν δύο ηλεκτρόνια εναλλάσσονται, π.χ. όταν από την

$$\psi_c = \varphi_1(\vec{r}_1)\varphi_2(\vec{r}_2)\varphi_3(\vec{r}_3)\varphi_4(\vec{r}_4) \text{ πάμε στην } \psi_d = \varphi_1(\vec{r}_2)\varphi_2(\vec{r}_1)\varphi_3(\vec{r}_3)\varphi_4(\vec{r}_4)$$

η πυκνότητα πιθανότητας να παραμείνει αμετάβλητη. Από εδώ πηγάζει μια από τις θεμελιώδεις αρχές της κβαντικής μηχανικής, ότι η ψ πρέπει να είναι αντισυμμετρική κατά την εναλλαγή δύο ηλεκτρονίων ώστε να ισχύει

$$\psi_c = -\psi_d.$$

Μια κυματοσυνάρτηση η οποία είναι αντισυμμετρική κατά την εναλλαγή δύο τυχαίων ηλεκτρονίων μπορεί να σχηματιστεί με τον ακόλουθο γραμμικό συνδυασμό των γινομένων συναρτήσεων (Cowan 1981)

$$\Psi = (N!)^{-1/2} \sum_P (-1)^p \varphi_1(\vec{r}_{j_1})\varphi_2(\vec{r}_{j_2})\varphi_3(\vec{r}_{j_3}) \dots \varphi_N(\vec{r}_{j_N}) \quad (1.7)$$

Σε κάθε γινόμενο συναρτήσεων, είναι διαταγμένο με την ίδια σειρά το ίδιο σετ κβαντικών αριθμών ενός-ηλεκτρονίου αλλά οι $\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \dots$ συντεταγμένες του ηλεκτρονίου έχουν αναδιαταχθεί σε κάποια νέα σειρά $\vec{r}_{j_1}, \vec{r}_{j_2}, \vec{r}_{j_3}, \dots$. Η άθροιση γίνεται επί των $N!$ δυνατών μεταθέσεων $P = j_1 j_2 j_3 \dots j_N$ της θεμελιώδους $1 2 3 \dots N$ διάταξης των συντεταγμένων και p είναι η ομοτιμία της P μετάθεσης ($p=0$ εάν η P προέρχεται από άρτιο αριθμό εναλλαγών της θεμελιώδους διάταξης και $p=1$ εάν εμπλέκεται περιττός αριθμός μεταθέσεων).

Για παράδειγμα, στην περίπτωση όπου $N=3$ η (1.7) γίνεται:

Θεωρητική περιγραφή

$$\Psi = \frac{1}{\sqrt{6}} \left[\varphi_1(\vec{r}_1)\varphi_2(\vec{r}_2)\varphi_3(\vec{r}_3) - \varphi_1(\vec{r}_2)\varphi_2(\vec{r}_1)\varphi_3(\vec{r}_3) + \varphi_1(\vec{r}_3)\varphi_2(\vec{r}_1)\varphi_3(\vec{r}_2) - \varphi_1(\vec{r}_1)\varphi_2(\vec{r}_3)\varphi_3(\vec{r}_2) - \varphi_1(\vec{r}_2)\varphi_2(\vec{r}_3)\varphi_3(\vec{r}_1) + \varphi_1(\vec{r}_3)\varphi_2(\vec{r}_2)\varphi_3(\vec{r}_1) \right]$$

και μπορεί εύκολα να επαληθευτεί ότι η παραπάνω συνάρτηση είναι αντισυμμετρική κατά την εναλλαγή των \vec{r}_1 και \vec{r}_2 , των \vec{r}_2 και \vec{r}_3 , ή των \vec{r}_1 και \vec{r}_3 . Η (1.7) έχει την ιδιότητα ότι εάν δύο τροχιακά είναι πανομοιότυπα τότε η Ψ είναι μηδέν. Άρα, η αντισυμμετρική συνάρτηση Ψ ικανοποιεί την αρχή του Pauli ότι

δύο ηλεκτρόνια δεν μπορούν να έχουν όλους του κβαντικούς αριθμούς ίδιους.

Η (1.7) επίσης μπορεί να γραφεί σε μορφή ορίζουσας

$$\Psi = \frac{1}{(N!)^{1/2}} \begin{vmatrix} \varphi_1(\vec{r}_1) & \varphi_1(\vec{r}_2) & \varphi_1(\vec{r}_3) & \dots \\ \varphi_2(\vec{r}_1) & \varphi_2(\vec{r}_2) & \varphi_2(\vec{r}_3) & \dots \\ \varphi_3(\vec{r}_1) & \varphi_3(\vec{r}_2) & \varphi_3(\vec{r}_3) & \dots \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \end{vmatrix},$$

η οποία ονομάζεται ορίζουσα Slater και παρουσιάζει τις εξής ιδιότητες: (i) Η αλλαγή των συντεταγμένων δύο ηλεκτρονίων είναι ισοδύναμη με την εναλλαγή δύο στηλών της ορίζουσας αλλάζοντας έτσι το πρόσημό της, (ii) εάν δύο τροχιακά έχουν τους ίδιους κβαντικούς αριθμούς, τότε δύο γραμμές της ορίζουσας είναι ίδιες και άρα η ορίζουσα μηδενίζεται, και (iii) εάν δύο ηλεκτρόνια έχουν τις ίδιες συντεταγμένες, τότε δύο στήλες είναι ίδιες άρα και η ορίζουσα είναι μηδέν.

1.2 Αλληλεπίδραση μιας διακριτής κατάστασης με ένα ενεργειακό συνεχές:

Αυτοϊονισμός

Καταστάσεις στις οποίες είναι διεγερμένα ηλεκτρόνια εσωτερικών ατομικών φλοιών ή πάνω από ένα ηλεκτρόνιο σθένους είναι, συνήθως, χαρακτηριστικά παραδείγματα αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων. Το απλούστερο άτομο για την θεωρητική περιγραφή των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων και των φαινομένων ηλεκτρονιακής συσχέτισης είναι το άτομο του Ηλίου, το οποίο αποτελείται από ένα πυρήνα με φορτίο $Z = 2$ και από δύο ηλεκτρόνια. Κάθε ηλεκτρόνιο έλκεται από τον πυρήνα και τα δύο ηλεκτρόνια απωθούν το ένα το άλλο. Έστω ότι ο πυρήνας είναι τοποθετημένος στην αρχή των αξόνων και οι



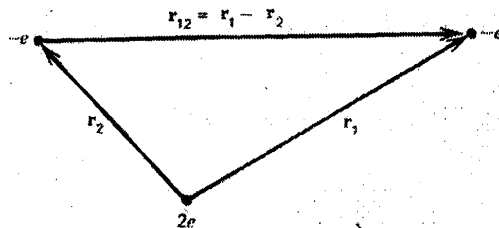
συντεταγμένες των ηλεκτρονίων είναι \vec{r}_1 και \vec{r}_2 . Τότε η Χαμιλτονιανή για το άτομο είναι (Σχ. 1.2.1) [Gasiorowicz 1974]

$$H = \frac{1}{2m} \vec{p}_1^2 + \frac{1}{2m} \vec{p}_2^2 - \frac{Ze^2}{r_1} - \frac{Ze^2}{r_2} + \frac{e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}$$

όπου m είναι η μάζα του ηλεκτρονίου. Η παραπάνω Χαμιλτονιανή μπορεί να γραφεί

$$H = H^{(1)} + H^{(2)} + V$$

όπου $H^{(i)} = \frac{1}{2m} \vec{p}_i^2 - \frac{Ze^2}{r_i}$ και $V = \frac{e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}$: η άπωση Coulomb.



Σχήμα 1.2.1: Συντεταγμένες για τον ορισμό της Χαμιλτονιανής του Ηλίου

Εάν ο όρος V δεν λαμβανόταν υπόψη στην ολική Χαμιλτονιανή, θα υπήρχε μία λύση στο πρόβλημα ιδιοτιμών για το σύστημα των δύο ηλεκτρονίων. Οι ιδιοσυναρτήσεις της εξίσωσης

$$[H^{(1)} + H^{(2)}] \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = E \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$$

θα ήταν οι

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = y_{n_1 l_1 m_1 m_{s_1}}(\vec{r}_1) y_{n_2 l_2 m_2 m_{s_2}}(\vec{r}_2) \quad (1.2.1)$$

$$\text{όπου} \quad y_{nlm m_s}(r) = \frac{1}{r} P_{nl}(r) Y_{lm}(\theta, \varphi) \sigma_{m_s}(s_z) \quad (1.2.2)$$

οι μονοηλεκτρονιακές κυματοσυναρτήσεις, με τις ενεργειακές τιμές να δίνονται από (Σχ. 1.2.2)

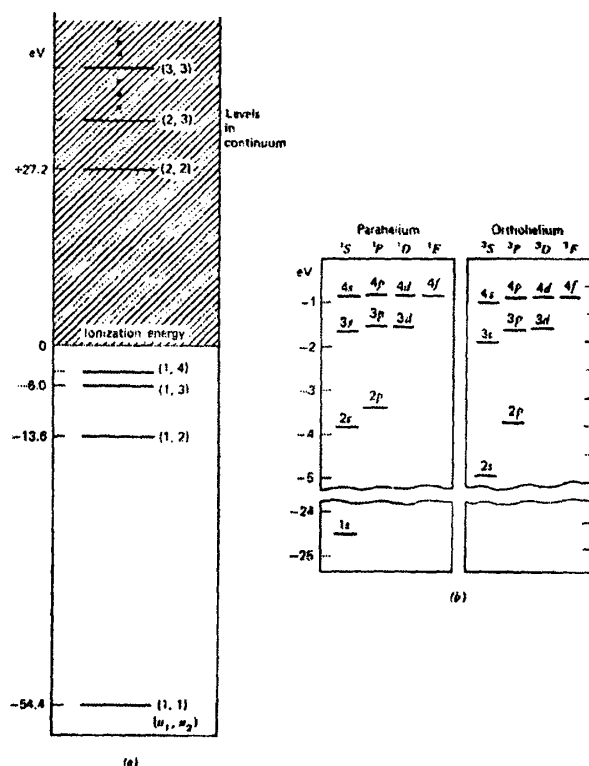
$$E = E_{n_1} + E_{n_2}$$

$$\text{όπου} \quad E_n = -\frac{mc^2 (Z\alpha)^2}{2 n^2}$$

Έτσι, στο ιδανικό μοντέλο στο οποίο τα δύο ηλεκτρόνια αγνοούν το ένα το άλλο η χαμηλότερη τιμή για την ενέργεια είναι $E = -2E_1 = -108.8eV$. Η πρώτη διεγερμένη

Θεωρητική περιγραφή

κατάσταση είναι αυτή στην οποία το πρώτο ηλεκτρόνιο είναι στην βασική του κατάσταση με $n = 1$ και το δεύτερο βρίσκεται στην $n = 2$. Τότε θα είναι $E = E_1 + E_2 = -68.0eV$. Αφού τα δύο ηλεκτρόνια είναι ταυτόσημα φερμιόνια η ολική τους κυματοσυνάρτηση πρέπει να είναι αντισυμμετρική. Σε συμφωνία και με την αρχή του Pauli η κατάσταση αυτή θα χαρακτηρίζεται από ολικό σπίν $S = 0$ (απλές καταστάσεις) ή $S = 1$ (τριπλές καταστάσεις) και εφόσον η αλληλεπίδραση $V = 0$ τότε θα είναι και εκφυλισμένη ως προς τον αριθμό του ολικού σπίν S . Η ενέργεια ιονισμού θα είναι $E_{ioniz} = E_1 + E_\infty - 2E_1 = -E_1$, με την αρχή του συνεχούς να βρίσκεται χαμηλότερα από την ενεργειακή κατάσταση στην οποία τα δύο διεγερμένα ηλεκτρόνια βρίσκονται στην $n = 2$. Η ενέργεια της τελευταίας θα είναι $E = 2E_2$ και δείχνει την ύπαρξη μιας διακριτής κατάστασης της Χαμιλτονιανής $H^{(1)} + H^{(2)}$ μέσα στο συνεχές [Gasirowicz 1974].



Σχήμα 1.2.2: (α) Το φάσμα του ατόμου του Ηλίου όπως θα ήταν εν απουσία της αλληλεπίδρασης ηλεκτρονίου-ηλεκτρονίου. Το σημείο μηδέν στον άξονα της ενέργεια αντιστοιχεί στην ενέργεια ιονισμού. (β) Το πραγματικό φάσμα του Ηλίου για τις απλές (ορθοήλιο) και τις τριπλές (παραήλιο) καταστάσεις. Στον συμβολισμό των επιπέδων λείπει το (1s) ηλεκτρόνιο, δηλ. το επίπεδο (2p) περιγράφεται από το (1s)(2p) τροχιακό.



Εάν ληφθεί υπόψη η άπωση Coulomb, V , στην ολική Χαμιλτονιανή τότε το πραγματικό φάσμα του ατόμου του Ηλίου προκύπτει όπως απεικονίζεται στο Σχ. 1.2.2(β). Η παρουσία του V λαμβάνεται σε πρώτη προσέγγιση ως διαταραχή. Τότε αποδεικνύεται ότι η ενέργεια της βασικής κατάστασης είναι $E \cong -74.8eV$ (αντί για $-108.8eV$ απουσία του V).

Για την πρώτη δέσμια διεγερμένη κατάσταση του Ηλίου, η έκφραση για την μεταβολή της ενέργειάς της αποτελείται από δύο όρους: ο πρώτος έχει την γνωστή μορφή μιας ηλεκτροστατικής αλληλεπίδρασης μεταξύ δύο ηλεκτρονιακών νεφών κατανεμημένων σύμφωνα με τις κυματοσυναρτήσεις των δύο ηλεκτρονίων. Η προέλευση του δεύτερου όρου έγκειται στην αρχή του Pauli και το πρόσημό του εξαρτάται από το αν η κατάσταση έχει ολικό σπίν $S = 0$ ή 1 . Έτσι, οι απλές ($S=0$) και οι τριπλές ($S=1$ καταστάσεις) δεν είναι πια ενεργειακά εκφυλισμένες (Σχ. 1.2.2β).

Οι διακριτές καταστάσεις που βρέθηκαν να συνυπάρχουν με τις καταστάσεις του συνεχούς (έστω $|\varepsilon\rangle$) όταν $V = 0$, συνεχίζουν να συνυπάρχουν όταν λαμβάνεται υπόψη η αλληλεπίδραση V ηλεκτρονίου-ηλεκτρονίου, μόνο που πλέον οι διακριτές αυτές καταστάσεις παρουσιάζουν τόσο δέσμιο όσο και συνεχή χαρακτήρα. Αυτό έχει μια σημαντική συνέπεια. Όταν διεγερθεί μια τέτοια κατάσταση, δεν είναι αναγκαίο να αποδιεγερθεί ακτινοβολητικά πίσω στην βασική στάθμη ή σε κάποια άλλη επιτρεπόμενη από τους κανόνες επιλογής, αλλά μπορεί να μεταβεί σε ένα άλλο κανάλι: μπορεί να αποδιεγερθεί σε ένα ηλεκτρόνιο και σε απλά ιονισμένο Ήλιο, He^+ , με την ενέργεια του ελεύθερου πλέον ηλεκτρονίου να καθορίζεται σύμφωνα με την αρχή διατήρησης της ενέργειας. Η διαδικασία αυτή ονομάζεται αυτοϊονισμός και οι καταστάσεις αυτές καταστάσεις αυτοϊονισμού [Gasiotowicz 1974].

Έστω η διακριτή κατάσταση $|\varphi\rangle$ που περιγράφεται από μια κυματοσυνάρτηση η οποία γενικά υπολογίζεται ως ένας γραμμικός συνδυασμός

$$\Psi_j^k = \sum_{\beta} y_{\beta j}^k \Psi_{\beta l} \quad (1.2.3)$$

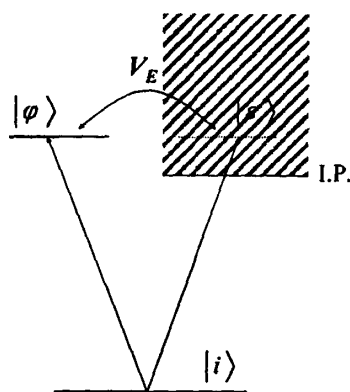
καταστάσεων μιας διακριτής βάσης και της οποίας η ενέργεια E_{φ} είναι μεγαλύτερη από το πρώτο τουλάχιστον δυναμικό ιονισμού ($E = 0$). Έστω επίσης οι καταστάσεις $|\varepsilon\rangle$ ενός ενεργειακού συνεχούς με ενέργειες $\varepsilon > 0$ στην ίδια περιοχή, Σχήμα (1.2.3), που είναι ορθογώνιες μεταξύ τους, με κυματοσυναρτήσεις που δίνονται από τις εξ. (1.2.3) και (1.2.2)

Θεωρητική περιγραφή

αντικαθιστώντας τον κύριο κβαντικό αριθμό n με το ε . Οι $|\varphi\rangle$ και $|\varepsilon\rangle$ ικανοποιούν τις σχέσεις

$$\begin{aligned} \langle \varphi | H | \varphi \rangle &= E_\varphi \\ \langle \varepsilon' | H | \varepsilon \rangle &= \varepsilon \delta(\varepsilon' - \varepsilon) \\ \langle \varepsilon | H | \varphi \rangle &= V_\varepsilon \end{aligned} \quad (\text{Πίνακας 1})$$

όπου η τελευταία σχέση είναι υπεύθυνη για την ανάμειξη της $|\varphi\rangle$ με καταστάσεις του συνεχούς (αν η αλληλεπίδραση Coulomb $V_\varepsilon = 0$, αλληλεπίδραση και συνεπώς ανάμειξη δεν υπάρχει).



Σχήμα 1.2.2: Αλληλεπίδραση μεταξύ μιας διακριτής κατάστασης και ενός συνεχούς

Η κυματοσυνάρτηση της αυτοϊονιζόμενης κατάστασης που επιθυμούμε να καθορίσουμε έχει την μορφή [Fano 1961]

$$|E\rangle = \alpha_\varphi(E)|\varphi\rangle + \int |\varepsilon\rangle b_\varepsilon(E) d\varepsilon$$

Οι συντελεστές α_φ , b_ε καθορίζονται από την λύση του συστήματος των εξισώσεων που αναφέρονται στον πίνακα 1

$$E_\varphi \alpha_\varphi(E) + \int V_\varepsilon^* b_\varepsilon(E) d\varepsilon = E \alpha_\varphi \quad (1.2.4\alpha)$$

$$V_\varepsilon \alpha_\varphi + \varepsilon b_\varepsilon(E) = E b_\varepsilon(E) \quad (1.2.4\beta)$$

Από την (1.2.4β) συμπεριλαμβάνοντας την περίπτωση $E=\varepsilon$ προκύπτει [Cowan 1981]

$$b_\varepsilon(E) = \left(\frac{1}{E - \varepsilon} + Z(E) \delta(E - \varepsilon) \right) V_\varepsilon \alpha_\varphi \quad (1.2.5)$$

Αντικαθιστώντας την (1.2.5) στην (1.2.4α) έχουμε

$$Z(E) = \frac{E - E_\varphi - F(E)}{|V_E|^2}$$

όπου

$$F(E) = P \left\{ \int \frac{|V_E|^2}{E - \varepsilon} dE \right\}$$

το ολοκλήρωμα κύριας τιμής εκφράζει την μετατόπιση (διαταραχή) της ενεργειακής θέσης της κατάστασης $|\varphi\rangle$ λόγω της αλληλεπίδρασής της με τις καταστάσεις του συνεχούς $|\varepsilon\rangle$.

Ο συντελεστής α_φ , ο οποίος απλοποιείται στην εξ. 1.2.4(α), καθορίζεται μέσω της κανονικοποίησης της κυματοσυνάρτησης και βρίσκεται να είναι

$$|\alpha_\varphi(E)|^2 = \frac{|V_E|^2}{|E - E_\varphi - F(E)|^2 + \pi^2 |V_E|^4} = \frac{\Gamma / \pi}{(E - E_0)^2 + \Gamma^2}$$

το οποίο δείχνει ότι ο χαρακτήρας της διακριτής κατάστασης $|\varphi\rangle$ διαχέεται σε μια ενεργειακή περιοχή εύρους $2\Gamma = 2\pi|V_E|^2$ με κέντρο την ενέργεια $E_0 = E_\varphi + F(E)$ (το μέγιστο της Λορεντζιανής κατανομής). Η αβεβαιότητα $\Delta E = 2\Gamma$ της ενέργειας του διακριτού μέρους της $|E\rangle$ οδηγεί σε ένα πεπερασμένο χρόνο ζωής

$$\tau = \frac{\hbar}{2\pi|V_E|^2}$$

του ατόμου στη διακριτή κατάσταση $|\varphi\rangle$ πριν μεταβεί στις καταστάσεις του συνεχούς $|\varepsilon\rangle$ (αυτοϊονισμός). Παρατηρούμε ότι η ένταση της αλληλεπίδρασης V_E καθορίζει το πλάτος Γ του συντονισμού και συνεπώς το ρυθμό αυτοϊονισμού της κατάστασης που είναι ίσος με $1/\tau$.

Από τα παραπάνω γίνεται φανερό ότι κατά τη μετάβαση από μια δέσμια αρχική κατάσταση $|i\rangle$ σε μια κατάσταση αυτοϊονισμού $|E\rangle$, εμφανίζονται έντονα φαινόμενα κβαντομηχανικής συμβολής των δύο δρόμων διέγερσης $|i\rangle \rightarrow |\varphi\rangle$ και $|i\rangle \rightarrow |\varepsilon\rangle$. Αν \tilde{D} είναι ο υπεύθυνος τελεστής της μετάβασης $|i\rangle \rightarrow |E\rangle$, (π.χ. μπορεί να είναι ο τελεστής της ηλεκτρικής διπολικής ροπής του ατόμου, στην περίπτωση της αλληλεπίδρασης με το ηλεκτρομαγνητικό πεδίο), τότε ο λόγος της πιθανότητας μετάβασης στην κατάσταση

Θεωρητική περιγραφή

αυτοϊονισμού $|\langle E|\tilde{D}|i\rangle|^2$ προς την πιθανότητα $|\langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle|^2$ της απ' ευθείας μετάβασης στο αδιατάραχτο συνεχές είναι

$$R = \frac{|\langle E|\tilde{D}|i\rangle|^2}{|\langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle|^2} = \frac{|\alpha_\varphi(E)\langle \varphi|\tilde{D}|i\rangle + \int b_\varepsilon(E)\langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle d\varepsilon|^2}{|\langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle|^2}$$

Γνωρίζουμε πως ο συντελεστής $b_\varepsilon(E)$ δίνεται από την (1.2.5), άρα έχουμε

$$R = \frac{|\alpha_\varphi(E)|^2}{|\langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle|^2} |\langle \Phi|\tilde{D}|i\rangle + V_E Z(E)\langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle|^2$$

όπου

$$|\Phi\rangle = |\varphi\rangle + P \left\{ \int V_E \frac{\langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle}{E - \varepsilon} d\varepsilon \right\}$$

είναι η τροποποιημένη κατάσταση $|\varphi\rangle$ λόγω μίξης με καταστάσεις του συνεχούς.

Εισάγοντας μια νέα μεταβλητή

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon - E_0}{\pi V_E^2} = \frac{Z(E)}{\pi}$$

η οποία εκφράζει το μέτρο της ενεργειακής μετατόπισης από τη μη διαταραγμένη θέση E_0 και ορίζοντας την παράμετρο του Fano [Fano 1961]

$$q = \frac{\langle \Phi|\tilde{D}|i\rangle}{\pi V_E \langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle}$$

βρίσκουμε πως

$$R = |\alpha_\varphi(E)|^2 V_E^2 |q\pi + \varepsilon|^2$$

και γνωρίζοντας ότι

$$|\alpha_\varphi(E)|^2 = \frac{1}{\pi^2 V_E^2 (\varepsilon^2 + 1)}$$

καταλήγουμε στη συνάρτηση Beutler - Fano

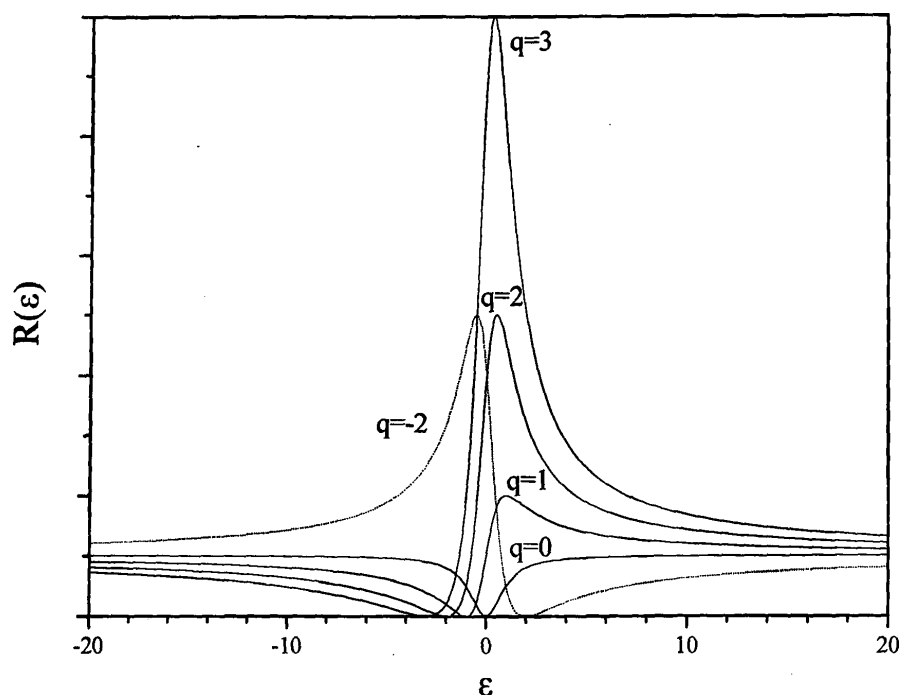
$$R = \frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} \quad (1.2.6)$$

ή ισοδύναμα στην

$$\langle E|\tilde{D}|i\rangle = \frac{q + \varepsilon}{(1 + \varepsilon^2)^{1/2}} \langle \varepsilon|\tilde{D}|i\rangle$$



Η παράμετρος του Fano, q (που την θεωρούμε σταθερά στην περιοχή της E_0) εκφράζει το μέτρο σύγκρισης της ισχύος των μεταβάσεων $|i\rangle \rightarrow |\varphi\rangle$ και $|i\rangle \rightarrow |\varepsilon\rangle$. Ο παράγοντας R αναπαρίσταται για διάφορες τιμές του q στο Σχήμα (1.2.4).



Σχήμα 1.2.4: Γραφική παράσταση του παράγοντα R ως προς την μεταβλητή (ε) για διάφορες τιμές της παραμέτρου του Fano q .

Έτσι:

α) Για $q = 0$ έχουμε μετάβαση μόνο στις καταστάσεις $|\varepsilon\rangle$ του ενεργειακού συνεχούς με πλάτος πιθανότητας

$$P \propto \frac{\varepsilon}{(1+\varepsilon^2)^{1/2}}$$

Το φάσμα απορρόφησης είναι συνεχές με ένα συμμετρικό ελάχιστο με μηδενική απορρόφηση για $\varepsilon = 0$ ή για $E = E_0$.

β) Για $q \rightarrow \infty$ η μετάβαση γίνεται ουσιαστικά από την $|i\rangle$ στην $|\varphi\rangle$ και το φάσμα απορρόφησης δίνεται από την Λορεντζιανή $\frac{q^2}{1+\varepsilon^2}$ με μέγιστο στο $\varepsilon = 0$ ή $E = E_0$ και πλάτος

$$\Delta\varepsilon = 2\Gamma \quad \text{ή} \quad \Delta E = 2\pi V_E^2$$

Θεωρητική περιγραφή

γ) Για $0 < q < \infty$ έχουμε συμβολή των πλατών πιθανότητας μετάβασης για τις $|i\rangle \rightarrow |\varphi\rangle$ και $|i\rangle \rightarrow |\varepsilon\rangle$ και το φάσμα απορρόφησης δίνεται από την εξ. (1.2.6), που έχει τώρα ασύμμετρη ως προς την ε (ή E) μορφή, παρουσιάζει δε και ένα ελάχιστο με μηδενική απορρόφηση για $\varepsilon = -q$.

Από τα παραπάνω πηγάζει το συμπέρασμα ότι πειραματικά σε μια κατάσταση αυτοϊονισμού προσδιορίζεται η ενέργεια του συντονισμού $E_0 = E_\varphi + F(E)$ και όχι η θέση E_φ της αδιατάρακτης δέσμιας κατάστασης $|\varphi\rangle$.

Στην περίπτωση της αλληλεπίδρασης της διακριτής κατάστασης $|\varphi\rangle$ με καταστάσεις δύο ή και περισσότερων συνεχών το πρόβλημα γίνεται ιδιαίτερα περίπλοκο. Γενικά όμως, αναμένεται οι συντονισμοί να παρουσιάζουν την ασύμμετρη μορφή του Σχ.(1.2.4) με την διαφορά ότι το ελάχιστο της πιθανότητας μετάβασης θα είναι διάφορο του μηδενός (Fano 1961). Επιπλέον, στο πλάτος αυτοϊονισμού συνεισφέρουν αθροιστικά τα στοιχεία πίνακα της αλληλεπίδρασης της διακριτής κατάστασης $|\varphi\rangle$ με το καθένα από τα συνεχή.

1.3 Ακτινοβολητικές Μεταβάσεις

1.3.1 Προσέγγιση ηλεκτρικής διπολικής αλληλεπίδρασης

Η Χαμιλτονιανή H ενός ατόμου που αλληλεπιδρά με το ηλεκτρομαγνητικό πεδίο είναι

$$H = H_E + H_R + H_I$$

όπου H_E είναι η Χαμιλτονιανή του απομονωμένου ατόμου και H_R είναι η Χαμιλτονιανή του πεδίου της ακτινοβολίας.

Η Χαμιλτονιανή H_I περιγράφει την αλληλεπίδραση του ατόμου με το πεδίο και γράφεται [Loudon 1983]:

$$H_I = H_{ED} + H_{EQ} + H_{MD} + H_{NI}$$

Ο όρος $H_{ED} = \bar{D} \bar{E}(\vec{r}, t)$ οφείλεται στην αλληλεπίδραση της ηλεκτρικής διπολικής ροπής του ατόμου \bar{D} με το ηλεκτρικό πεδίο \bar{E} .



Ο όρος $H_{EQ} = -\vec{Q} \cdot \nabla \vec{E}(\vec{r}, t)$ οφείλεται στην αλληλεπίδραση της ηλεκτρικής τετραπολικής ροπής του ατόμου \vec{Q} με την κλίση του ηλεκτρικού πεδίου της ακτινοβολίας στο σημείο \vec{r} .

Ο όρος $H_{MD} = -\vec{\mu} \cdot \vec{B}(\vec{r}, t)$ οφείλεται στην αλληλεπίδραση της μαγνητικής διπολικής ροπής $\vec{\mu}$ με το μαγνητικό πεδίο \vec{B} της ακτινοβολίας.

Ο διαμαγνητικός όρος $H_{NL} = \frac{e^2}{8m} \sum_i [\vec{r}_i^2 \times \vec{B}(\vec{r}, t)]^2$ είναι μη γραμμικός, αφού είναι ανάλογος του τετραγώνου του μαγνητικού πεδίου, και παίζει ρόλο σε τουλάχιστον διφωτονικές διαδικασίες αν και ακόμη και σε αυτές τις περιπτώσεις η επίδρασή του είναι αμελητέα [Loudon 1983].

Η ένταση της ηλεκτρικής τετραπολικής και της μαγνητικής διπολικής αλληλεπίδρασης είναι της ίδιας τάξης μεγέθους, και αποδεικνύεται ότι και οι δύο παραπάνω όροι είναι ασθενέστεροι της ηλεκτρικής διπολικής αλληλεπίδρασης κατά ένα παράγοντα $a =$

$$1/137 = e^2/\hbar c, \text{ δηλαδή } \frac{\langle H_{EQ} \rangle}{\langle H_{ED} \rangle} \approx \frac{\langle H_{MD} \rangle}{\langle H_{ED} \rangle} \approx \frac{1}{137} = a, \text{ ο οποίος παράγοντας } a \text{ είναι γνωστός ως}$$

σταθερά λεπτής υφής.

Γνωρίζουμε πως ο ρυθμός μετάβασης μεταξύ δύο ατομικών καταστάσεων $|\psi_1\rangle \rightarrow |\psi_2\rangle$ είναι ανάλογος του τετραγώνου του στοιχείου πίνακα $\langle \psi_1 | H_I | \psi_2 \rangle$. Εάν ο όρος $\langle \psi_1 | H_{ED} | \psi_2 \rangle$ είναι μη μηδενικός τότε σύμφωνα με την παραπάνω συζήτηση η συνεισφορά των υπόλοιπων όρων στην έκφραση της H_I μπορεί να παραληφθεί. Η παραπάνω προσέγγιση είναι γνωστή ως προσέγγιση ηλεκτρικής διπολικής αλληλεπίδρασης. Οι περισσότερες από τις ισχυρές ατομικές γραμμές απορρόφησης ή εκπομπής αφορούν ατομικές μεταβάσεις για τις οποίες το στοιχείο πίνακα της ηλεκτρικής διπολικής αλληλεπίδρασης είναι μη μηδενικό. Οι αλληλεπιδράσεις H_{EQ} και H_{MD} μπορούν γίνουν σημαντικές (εφόσον η μετάβαση είναι επιτρεπτή ως προς κάποια από τις δύο) όταν $\langle \psi_1 | H_{ED} | \psi_2 \rangle = 0$ και τότε λέγεται ότι η μετάβαση είναι απαγορευμένη ως προς την ηλεκτρική διπολική αλληλεπίδραση.

1.3.2 Πολυφωτονική απορρόφηση

1.3.2.1 Μη-συντονιστική περίπτωση



Θεωρητική περιγραφή

Ο μονοφωτονικός ιονισμός του ατόμου, του οποίου η πιθανότητα σχετίζεται άμεσα με την συνθήκη $\hbar\omega > E_n^{(0)}$ (όπου $E_n^{(0)}$ το δυναμικό ιονισμού του ατόμου), έχει παρατηρηθεί για διάφορες συχνότητες ω και έχει περιγραφεί με μεγάλη ακρίβεια ποσοτικά από την κβαντική μηχανική [Sobel'man 1979, Samson 1976]. Η κβαντική μηχανική επιπλέον έχει δείξει ότι ένα ηλεκτρόνιο μπορεί να φτάσει στο συνεχές απορροφώντας αριθμό φωτονίων τέτοιον ώστε $K\hbar\omega > E_n^{(0)}$. Είναι επίσης γνωστό, ότι μια διαφορετική διαδικασία ιονισμού μπορεί να υπάρξει σε ένα βραδέως μεταβαλλόμενο ηλεκτρικό πεδίο κατά την οποία το ηλεκτρόνιο μπορεί να διασχίσει ή να υπερπηδήσει το φράγμα δυναμικού που έχει παραμορφωθεί από το εξωτερικό πεδίο. (ιονισμός μέσω φαινομένου σήραγγας ή ιονισμός πάνω από το φράγμα δυναμικού). Πως όμως σχετίζονται οι διαδικασίες πολυφωτονικού ιονισμού και ιονισμού μέσω φαινομένου σήραγγας σε ένα πεδίο αυθαίρετης συχνότητας;

Έχει αποδειχθεί ότι η πιθανότητα ιονισμού ανά μονάδα χρόνου, είναι μια συνάρτηση της αδιαβατικής παραμέτρου γ [Keldysh 1965],

$$\gamma = \frac{\omega(2E_n^{(0)})^{1/2}}{E}$$

η οποία είναι ένας συνδυασμός τριών παραμέτρων που χαρακτηρίζουν αφ' ενός το πηγάδι δυναμικού ($I.P. = E_n^{(0)}$) και αφ' ετέρου το μεταβαλλόμενο πεδίο (συχνότητας ω και πλάτους πεδίου E).

Για $\gamma \gg 1$ προκύπτει πως $W \propto E^{2K} \propto I^K$, όπου K ο αριθμός των φωτονίων που απορροφά το ηλεκτρόνιο με $K = [(E_n^{(0)}/\hbar\omega) + 1]$ και $I (\propto E^2)$ η ένταση της ακτινοβολίας. Στην περίπτωση αυτή ο ιονισμός οφείλεται κυρίως σε πολυφωτονικές διαδικασίες.

Για $\gamma \ll 1$ κυρίαρχη διαδικασία είναι ο ιονισμός μέσω φαινομένου σήραγγας.

Για $\gamma \approx 1$ οι δύο μηχανισμοί είναι περίπου ισοδύναμοι.

Όλες οι πειραματικές μετρήσεις που παρουσιάζονται στην εργασία αυτή καταγράφονται υπό τέτοιες συνθήκες ώστε $\gamma \gg 1$.

Η πιθανότητα ιονισμού (ανά μονάδα χρόνου) μιας διαδικασίας μετάβασης K -φωτονίων από μια αρχική δέσμια κατάσταση $|i\rangle$ σε μια τελική δέσμια κατάσταση $|f\rangle$ υπό την επίδραση αρμονικά μεταβαλλόμενου πεδίου $E \cos\omega t$ είναι ίση με [Delone – Krainov 1984]:



$$W_{if}^{(K)} = 2\pi |V_{if}^{(K)}|^2 \delta(\omega_f - K\omega) \quad (1.3.1)$$

$$\text{όπου } V_{if}^{(K)} = E^K \sum_{p,s,\dots,t} \frac{\langle f | \bar{e} \cdot \bar{D} | t \rangle \cdots \langle s | \bar{e} \cdot \bar{D} | p \rangle \langle p | \bar{e} \cdot \bar{D} | i \rangle}{[\omega_{ti} - (K-1)\omega] \cdots [\omega_{st} - 2\omega][\omega_{pi} - \omega]} = E^K M_{if}^{(K)}$$

Έτσι η (1.3.1) λαμβάνοντας υπόψη πως $I \propto E^2$ γίνεται

$$W_{if}^{(K)} \propto I^K |M_{if}^{(K)}|^2 \delta(\omega_f - K\omega) \propto \sigma^{(K)} I^K$$

όπου $\sigma^{(K)}$ είναι η ενεργός διατομή της μετάβασης εκφρασμένη σε $\text{cm}^{2K} \text{s}^{K-1}$ και I η ροή της ακτινοβολίας σε (φωτόνια/ $\text{cm}^2 \text{s}$).

Όταν η τελική κατάσταση $|f\rangle$ ανήκει στο συνεχές, τότε φυσική σημασία δεν έχει η πιθανότητα μετάβασης σε μια συγκεκριμένη κατάσταση f ενέργειας E_f , αλλά η πιθανότητα να βρεθεί το σύστημα σε μια περιοχή καταστάσεων του συνεχούς με ενέργεια μεταξύ E_f και $E_f + dE_f$ [Delone 1984, Trahanas 1988]. Αντικαθιστώντας το άθροισμα επί των τελικών καταστάσεων με ολοκλήρωμα προκύπτει ότι

$$W_{if}^{(K)} = 2\pi |V_{if}^{(K)}|^2 \rho_f \Big|_{\hbar\omega_f = E_i + K\hbar\omega}$$

όπου $\rho_f = \frac{df}{dE_f^{(0)}}$ είναι η ενεργειακή πυκνότητα των καταστάσεων του συνεχούς.

Εάν η τελική κατάσταση $|f\rangle$ είναι αυτοϊονιζόμενη αποδεικνύεται ότι η ένταση της ακτινοβολίας και ο χρόνος αλληλεπίδρασης επηρεάζουν τα χαρακτηριστικά του φάσματος ιονισμού [Zoller 1984]. Στην προσέγγιση ασθενούς πεδίου, όπου ως ασθενές πεδίο στην συγκεκριμένη περίπτωση χαρακτηρίζεται ένα πεδίο αρκετά ισχυρό ώστε να προκαλέσει την πολυφωτονική μετάβαση από την $|i\rangle \rightarrow |f\rangle$ αλλά όχι τόσο ισχυρό ώστε να προκαλέσει κορεσμό, η πιθανότητα μετάβασης ανά μονάδα χρόνου είναι

$$W_{if}^{(K)} = 2\pi I^K |M_{ci}^{(K)}|^2 \frac{(\tilde{q}_K + \tilde{\varepsilon})^2}{1 + \varepsilon^2} \quad (1.3.2)$$

όπου $M_{ci}^{(K)}$ είναι το σύνθετο πολυφωτονικό στοιχείο πίνακα που συνδέει την αρχική κατάσταση $|i\rangle$ με μια από τις καταστάσεις $|c\rangle$ του συνεχούς στην περιοχή της κατάστασης αυτοϊονισμού. Το \tilde{q}_K είναι η ενεργή παράμετρος του Fano που ορίζεται ως [Cohen 1990]

Θεωρητική περιγραφή

$$\tilde{q}_K = \frac{M_{\varphi}^{(K)} + P \int dE_c \frac{U_{\varphi} M_{c_i}^{(K)}}{(E_i + K\hbar\omega - E_c)}}{\pi [U_{\varphi} M_{c_i}^{(K)}]_{E_c = E_i + K\hbar\omega}}$$

όπου

$$U_{\varphi} \equiv V_{\varphi} + D_{\varphi}^{(2)} = V_{\varphi} + E^2 \sum_a \frac{\mu_{c_a} \mu_{a\varphi}}{E_i - E_a + \hbar\omega}$$

με $D_{\varphi}^{(2)}$ το ενεργό διφωτονικό στοιχείο πίνακα σύζευξης του συνεχούς με την κατάσταση $|\varphi\rangle$ η οποία είναι σε σύζευξη με το συνεχές μέσω του V_{φ} .

Το ενεργό πλάτος της φασματικής γραμμής είναι

$$2\tilde{\Gamma} = 2\pi |U_{\varphi}|^2 = 2\pi |V_{\varphi} + V_{\varphi}^F|^2 \quad (1.3.3)$$

σε σχέση με το οποίο ορίζεται και το $\tilde{\varepsilon} = [K\hbar\omega - (E_f - E_i)]/\tilde{\Gamma}$. Ο όρος V_{φ} είναι υπεύθυνος

για το πλάτος αυτοϊονισμού ενώ ο όρος $V_{\varphi}^F = I M_{\varphi}^{(K)} = I \sum_{l_{n-1}} \frac{\langle c | \bar{e} \bar{D} | l_{n-1} \rangle \langle l_{n-1} | \bar{e} \bar{D} | \varphi \rangle}{E_{\varphi} - E_{l_{n-1}} + K\hbar\omega}$ προέρχεται

από το πεδίο, όπου $M_{\varphi}^{(K)}$ είναι ένα σύνθετο στοιχείο πίνακα που συνδέει την δέσμια κατάσταση $|\varphi\rangle$ με τις ενεργειακές καταστάσεις του συνεχούς $|c\rangle$ μέσω των προτελευταίων ενδιάμεσων καταστάσεων $|l_{n-1}\rangle$. Τα \tilde{q}_K και $\tilde{\Gamma}$ εξαρτώνται από την ένταση της ακτινοβολίας αντίθετα από τα q και Γ , που καθορίζουν το φάσμα αυτοϊονισμού στην περίπτωση μονοφωτονικής διέγερσης και είναι αποκλειστικώς ατομικές παράμετροι.

Το εύρος της φασματικής γραμμής $\tilde{\Gamma}$ [όπως καθίσταται φανερό και από την εξ.(1.3.3)] δεν είναι πια το εύρος αυτοϊονισμού, παραμένει όμως το εύρος γραμμής του διεγερμένου επιπέδου σε συντονισμό. Επομένως, το εύρος του συντονισμού μεταβάλλεται με την ένταση της ακτινοβολίας και μάλιστα κατά τέτοιο τρόπο που εξαρτάται από το σχετικό πρόσημο των όρων V_{φ} και V_{φ}^F . Από την συμβολή των όρων αυτών πηγάζει μια χαρακτηριστική ιδιαιτερότητα της πολυφωτονικής διέγερσης των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων, η δυνατότητα συρρίκνωσης του πλάτους τους σε σχέση με το πλάτος απουσία πεδίου, για συγκεκριμένες περιοχές τιμών της έντασης I .

Η εξάρτηση του \tilde{q}_K πηγάζει από τον εξαρτημένο-από-την-ένταση όρο U_{φ} και επανέρχεται στην χρόνο-ανεξάρτητη παράμετρο q_K για χαμηλές εντάσεις I της ακτινοβολίας.



1.3.2.2 Συντονιστική περίπτωση

Η εξ. (1.3.1) ισχύει όταν κανένας από τους παρανομαστές δεν είναι πολύ μικρός, δηλ. όταν ισχύει $|\omega_{si} - K\omega| \gg \gamma_s$ όπου γ_s : το φυσικό εύρος ενός ενδιάμεσου επιπέδου s και K ο εμπλεκόμενος αριθμός φωτονίων στην μετάβαση από την $|i\rangle \rightarrow |s\rangle$.

Όταν η ενέργεια ενός αριθμού φωτονίων $K' (< K)$ είναι κοντά στην ενέργεια της μετάβασης από μια αρχική κατάσταση $|i\rangle$ σε μια συγκεκριμένη διεγερμένη δέσμια κατάσταση $|m\rangle$ τότε το φαινόμενο αυτό ονομάζεται K' -φωτονική συντονιστική διέγερση, ενώ η διαδικασία ιονισμού υπό την παρουσία ενός τέτοιου ενδιάμεσου K' -φωτονικού συντονισμού ονομάζεται συντονιστικός πολυφωτονικός ιονισμός.

Στην περίπτωση αυτή ο παρανομαστής $|\omega_{mi} - K'\omega| \approx \gamma_m$ στην (1.3.1) είναι μικρός, η συνάρτηση Dirac είναι μη ρεαλιστική και πρέπει να γίνει η αντικατάσταση [Delone 1975]

$$E_m^{(0)} \rightarrow E_m^{(0)} - \frac{i\gamma_m}{2}.$$

Τελικώς, η πιθανότητα ανά μονάδα χρόνου του συντονιστικού πολυφωτονικού ιονισμού ενός ατόμου σε ένα ασθενές μονοχρωματικό πεδίο δίνεται από τον τύπο

$$W = \frac{\Gamma_f \Gamma_i}{\Delta^2 + \frac{\gamma_m^2}{4}} \quad (1.3.4)$$

όπου $\Delta = \hbar(\omega - \omega_{im})$, Γ_i είναι η πιθανότητα ιονισμού του επιπέδου m που ορίζεται ως

$$\Gamma_i = 2\pi |V_{mE}^{(K-K')}|^2 \rho_E \quad (1.3.5)$$

και $\Gamma_f = |V_{im}^{K'}|^2$.

Από την εξ. (1.3.4) εξάγεται το συμπέρασμα πως η τάξη μη-γραμμικότητας της διαδικασίας ως προς την ένταση της ακτινοβολίας παραμένει ίση με K . Η εξ. (1.3.4) ισχύει όταν

- (i) $W_{\tau_L} \ll 1$, δηλ. όταν ο ιονισμός δεν είναι σε κορεσμό και
- (ii) $\Delta E_{i,m} \ll \gamma_m$, με $\Delta E_{i,m}$ να συμβολίζουν οι μεταβολές στην ενέργεια των επιπέδων i, m λόγω του δυναμικού φαινομένου Stark

Θεωρητική περιγραφή

Συντονιστικός ιονισμός σε ισχυρό πεδίο

Υπάρχουν τρεις μηχανισμοί διαταραχής του ατομικού φάσματος υπό την επίδραση ενός ισχυρού εξωτερικού πεδίου [Delone 1984]:

i) Όταν η βασική κατάσταση είναι σε συντονισμό με μια ενδιάμεση κατάσταση προκαλείται διαχωρισμός Rabi του επιπέδου υπό συντονισμό σε δύο οιονεί ενεργειακές ιδιοκαταστάσεις, η ενεργειακή απόσταση των οποίων καθορίζεται από το Γ_i . Για $K'=1$ το εξωτερικό πεδίο καθίσταται ισχυρό ($\Gamma_i \geq \gamma_m$) ακόμα και για μικρό πλάτος ηλεκτρικού πεδίου ($\sim 10 - 10^2$ V/cm). Όσο το K' γίνεται μεγαλύτερο, η αντίστοιχη τιμή για το πλάτος του πεδίου αυξάνει σημαντικά και για $K' > 2$ είναι πρακτικά αδύνατο να παρατηρηθούν φαινόμενα διαχωρισμού λόγω πολυφωτονικού συντονισμού.

ii) Επάγεται ενεργειακή μετατόπιση της βασικής κατάστασης (ΔE_i) και του ενδιάμεσου επιπέδου σε συντονισμό (ΔE_m) λόγω πολυφωτονικής μη-συντονιστικής αλληλεπίδρασης με το πεδίο μέσω άλλων ατομικών καταστάσεων (δυναμικό φαινόμενο Stark). Στην γενική περίπτωση είναι δύσκολο να καθοριστεί εάν ένα πεδίο είναι ισχυρό, δηλ. εάν ισχύει $\Delta E_{i,m} \geq \gamma_m$. Το παραπάνω κριτήριο ικανοποιείται συνήθως για εντάσεις πεδίων της τάξης του $10^4 - 10^5$ V/cm.

iii) Επάγεται διαπλάτυνση λόγω ιονισμού του ενεργειακού επιπέδου σε συντονισμό. Ποσοτικά το φαινόμενο αυτό χαρακτηρίζεται από το εύρος ιονισμού Γ_i [εξ. (1.3.5)]. Στην πιο κοινή περίπτωση όπου $K-K'=1$ η εκτίμηση του πλάτους για την οποία το πεδίο μπορεί να θεωρηθεί ισχυρό, δηλ. $\Gamma_i \geq \gamma_m$, είναι περίπου $10^4 - 10^5$ V/cm. Η τιμή αυτή είναι της ίδιας τάξης μεγέθους όπως και για την μετατόπιση λόγω δυναμικού φαινομένου Stark.

Για την περιοχή παραμέτρων όπου έγινε η πειραματική μελέτη της παρούσας εργασίας ισχύει $K \geq 3$ και $K-K'=1$ και δεν παρατηρούνται φαινόμενα ενεργειακού διαχωρισμού Rabi μεταξύ της βασικής κατάστασης και του ενδιάμεσου επιπέδου υπό συντονισμό, ενώ η διαπλάτυνση λόγω ιονισμού είναι το κυρίαρχο φαινόμενο συνοδευόμενο και από ενεργειακή μετατόπιση των επιπέδων εξαιτίας του δυναμικού φαινομένου Stark.

Για μια τυπική περίπτωση όπου $K' > \frac{2}{3} K$ ισχύει ότι $\Gamma_i \gg \Gamma_f$, δηλ. ο ιονισμός της κατάστασης m σε συντονισμό επέρχεται σημαντικά πιο γρήγορα από την μετάβαση από αυτήν την κατάσταση πίσω στην βασική κατάσταση i . Υπό αυτές τις προϋποθέσεις, η πιθανότητα συντονιστικού ιονισμού σε ισχυρό πεδίο βρίσκεται από την εξ. (4) αντικαθιστώντας Γ_i αντί για γ_m και $\tilde{\Delta} = \Delta + \Delta E_{im}$ δίνοντας



$$W = \frac{\Gamma_f^2 \Gamma_i}{\tilde{\Delta}^2 + \frac{\Gamma_i^2}{4}} \quad (1.3.6)$$

Η παραπάνω σχέση ισχύει όταν (i) $W_{TL} < 1$ και (ii) $\Delta E_{i,m} \gg \gamma_m$, ενώ ο ρυθμός ιονισμού αυξάνει ανάλογα με την $(2K'-K)$ δύναμη της έντασης της ακτινοβολίας.

1.3.3 Δυναμικό φαινόμενο STARK

Η ενέργεια E_n της ατομικής κατάστασης $|n\rangle$, υπό την επίδραση του αρμονικά μεταβαλλόμενου ηλεκτρικού πεδίου της ακτινοβολίας ($E = |E| \cos \omega t$), μεταβάλλεται κατά ΔE_n . Κάποιες γενικές σχέσεις που δείχνουν την φύση της μετατόπισης ΔE_n και ποιες παράμετροι την επηρεάζουν, μπορούν να παραχθούν θεωρώντας τον συνδυασμό άτομο + ηλεκτρομαγνητικό πεδίο ως ενιαίο κβαντικό σύστημα. Η ενέργεια αυτού του συστήματος αποτελείται από την ενέργεια του πεδίου, την ενέργεια του ατόμου και την ενέργεια της αλληλεπίδρασής τους, της οποίας ο τελεστής (στην συγκεκριμένη περίπτωση της ηλεκτρικής διπολικής ροπής) $\tilde{V} = -\tilde{d}|E|$, είναι ανεξάρτητος του χρόνου. Εάν ο \tilde{V} θεωρηθεί σαν διαταραχή, οι διορθώσεις στην ενέργεια του συστήματος που επάγονται από την αλληλεπίδραση μεταξύ του ατόμου και του πεδίου, μπορούν να υπολογιστούν με την μέθοδο της χρονοανεξάρτητης θεωρίας διαταραχών.

Έστω το απλούστερο σύστημα, που αποτελείται από ένα άτομο με δύο μη-εκφυλισμένες ενεργειακές καταστάσεις $E_1^{(0)}$ και $E_2^{(0)}$ ($E_1^{(0)} > E_2^{(0)}$) και N φωτόνια συχνότητας ω , πόλωσης e_λ και κυματανύσματος k_λ του ηλεκτρικού πεδίου. Η φύση της μεταβολής των ενεργειών των ατομικών επιπέδων εξαρτάται κύρια από το εάν η συχνότητα του πεδίου συμπίπτει (είναι σε συντονισμό) με την συχνότητα της μετάβασης $(E_1^{(0)} - E_2^{(0)})/\hbar$.

Εάν $\omega = (E_1^{(0)} - E_2^{(0)})/\hbar$ τότε το σύστημα άτομο + πεδίο είναι εκφυλισμένο. Για παράδειγμα, η ενέργεια του συστήματος (άτομο στην κατάσταση $E_1^{(0)}$, N_λ φωτόνια του πεδίου) δεν αλλάζει όταν το άτομο με εκπομπή ενός φωτονίου μεταβεί στην κατάσταση $E_2^{(0)}$. Η πρώτη τάξης διόρθωση $\Delta E^{(1)}$ στην ενέργεια των εκφυλισμένων καταστάσεων $E_{N_\lambda,1}^{(0)} = E_1^{(0)} + N_\lambda \cdot \hbar\omega$ και $E_{N_\lambda+1,2}^{(0)} = E_2^{(0)} + (N_\lambda + 1) \cdot \hbar\omega$ δίνεται από την επίλυση της εξίσωσης

[Bonch 1967]



Θεωρητική περιγραφή

$$\begin{vmatrix} -\Delta E_{(1)} & \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \\ \frac{1}{2}\hbar\Omega_{21} & \Delta E_{(1)} \end{vmatrix} = 0 \quad (1.3.4.1)$$

$$\text{όπου } \Omega_{12} = \frac{2V_{12}}{\hbar} = \frac{|\mathbf{E}||\mathbf{e}_\lambda d|_{12}}{\hbar}$$

είναι η συχνότητα Rabi και V_{12} είναι το στοιχείο πίνακα του τελεστή αλληλεπίδρασης \tilde{V} μεταξύ των εκφυλισμένων καταστάσεων. Στην ηλεκτροδυναμική προσέγγιση για $N_\lambda \gg 1$ ισχύει:

$$|\hbar\Omega_{12}|^2 = \mathbf{E}^2 |\mathbf{e}_\lambda d|_{12}^2 \quad (1.3.4.2)$$

Από τις (1.3.4.1), (1.3.4.2) για $\Omega_{12} \neq 0$ η εκφυλισμένη κατάσταση του συστήματος άτομο + πεδίο διαχωρίζεται σε δύο καταστάσεις με ενέργειες μετατοπισμένες σχετικά με την αρχική ενέργεια κατά [Bonch 1967]

$$\Delta E_1^{(1)} = \left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right| = \frac{|\mathbf{E}||\mathbf{e}_\lambda d|_{12}}{2} \quad \text{και} \quad \Delta E_2^{(1)} = -\left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right| = -\frac{|\mathbf{E}||\mathbf{e}_\lambda d|_{12}}{2}$$

Στην περίπτωση που $\hbar\omega \neq E_1^{(0)} - E_2^{(0)}$ δεν υπάρχουν εκφυλισμένες καταστάσεις του συστήματος άτομο + πεδίο. Η πρώτης-τάξης διόρθωση στις ενέργειες των αδιατάραχτων καταστάσεων $E_{N_\lambda,1}$ και $E_{N_\lambda,2}$ είναι μηδέν λόγω του κανόνα επιλογής ομοτιμίας (δεν υπάρχει σταθερή διπολική ροπή σε μη-εκφυλισμένες ατομικές καταστάσεις). Η δεύτερης-τάξης διόρθωση δίνεται από τις [Bonch 1967]

$$\begin{aligned} \Delta E_{N_\lambda,1}^{(2)} &= \frac{|\mathbf{E}|^2 |\mathbf{e}_\lambda d|_{12}^2}{4} \left\{ \frac{1}{E_1^{(0)} - E_2^{(0)} - \hbar\omega} + \frac{1}{E_1^{(0)} - E_2^{(0)} + \hbar\omega} \right\} \\ \Delta E_{N_\lambda,2}^{(2)} &= \frac{|\mathbf{E}|^2 |\mathbf{e}_\lambda d|_{21}^2}{4} \left\{ \frac{1}{E_2^{(0)} - E_1^{(0)} - \hbar\omega} + \frac{1}{E_2^{(0)} - E_1^{(0)} + \hbar\omega} \right\} = -\Delta E_{N_\lambda,1}^{(2)} \end{aligned} \quad (1.3.4.3)$$

Το πρόσημο της ενεργειακής μετατόπισης των επιπέδων καθορίζεται από την διαφορά $E_1^{(0)} - E_2^{(0)} - \hbar\omega$. Εάν $\hbar\omega < (E_1^{(0)} - E_2^{(0)})$, τα επίπεδα 1 και 2 μετατοπίζονται έτσι ώστε η απόσταση μεταξύ τους να αυξάνεται («απόθηση» των επιπέδων), ενώ όταν $\hbar\omega > (E_1^{(0)} - E_2^{(0)})$ η απόστασή τους μειώνεται («έλξη» των επιπέδων).

Όταν το ω πλησιάζει την συχνότητα συντονισμού $(E_1^{(0)} - E_2^{(0)})/\hbar$ οι μετατοπίσεις που δίνονται από τις σχέσεις (1.3.4.3) τείνουν προς το άπειρο και δεν ισχύουν. Το σωστό αποτέλεσμα στην περίπτωση αυτή δίνεται από την διαγωνοποίηση του πίνακα του τελεστή



$\tilde{H}_0 + \tilde{V}$ (όπου \tilde{H}_0 η χρονοανεξάρτητη Χαμιλτονιανή που περιγράφει το άτομο). Αυτό οδηγεί στις ακόλουθες στάσιμες τιμές της ενέργειας του συστήματος άτομο + πεδίο [Bonch 1967]

$$\begin{aligned} E_{N_{\lambda,1}} &= \frac{(2N_{\lambda} + 1)\hbar\omega}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_1^{(0)} - E_2^{(0)} - \hbar\omega)^2 + |\hbar\Omega_{12}|^2} \\ E_{N_{\lambda,2}} &= \frac{(2N_{\lambda} - 1)\hbar\omega}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_2^{(0)} - E_1^{(0)} + \hbar\omega)^2 + |\hbar\Omega_{12}|^2} \end{aligned} \quad (1.3.4.4)$$

Οι εξισώσεις (1.3.4.4) εκφράζουν τόσο την μετατόπιση όσο και το διαχωρισμό του κάθε ατομικού επιπέδου που υπόκειται σε ένα όχι συντονιστικής συχνότητας πεδίο, σε αντίθεση με τις εξ. (1.3.4.1) που δίνουν μόνο τις μετατοπίσεις των ατομικών επιπέδων.

Για $|\hbar\Omega_{12}| \gg E_1^{(0)} - E_2^{(0)} - \hbar\omega$ (περιοχή ισχυρού πεδίου) από τις (1.3.4.4) έχουμε τις ενεργειακές τιμές

$$E_{N_{\lambda,1}} \cong N_{\lambda}\hbar\omega + E_1^{(0)} \pm \left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|, \quad E_{N_{\lambda,2}} \cong N_{\lambda}\hbar\omega + E_2^{(0)} \pm \left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|$$

που συμφωνούν με τα αποτελέσματα που προκύπτουν από την (1.3.4.1).

Για $|\hbar\Omega_{12}| \ll E_1^{(0)} - E_2^{(0)} - \hbar\omega$ (περιοχή ασθενούς πεδίου) οι εξισώσεις (1.3.4.4) δίνουν, πέρα από τις δύο ενεργειακές τιμές

$$E_{N_{\lambda,1}}^{(1)} = E_{N_{\lambda,1}}^{(0)} + \frac{\left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|^2}{\Delta} \quad \text{και} \quad E_{N_{\lambda,2}}^{(1)} = E_{N_{\lambda,2}}^{(0)} - \frac{\left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|^2}{\Delta}$$

οι οποίες συμφωνούν με τις ενέργειες που, σύμφωνα με την θεωρία διαταραχών δεύτερης-τάξης, δίνονται από τις εξ. (1.3.4.3), δύο ακόμη ενεργειακές τιμές

$$E_{N_{\lambda,1}}^{(2)} = E_{N_{\lambda,1}}^{(0)} - \Delta - \frac{\left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|^2}{\Delta} \quad \text{και} \quad E_{N_{\lambda,2}}^{(2)} = E_{N_{\lambda,2}}^{(0)} + \Delta + \frac{\left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|^2}{\Delta}$$

όπου $\Delta = E_1^{(0)} - E_2^{(0)} - \hbar\omega$. Οι τελευταίες αυτές τιμές αντιστοιχούν σε συντονισμούς που σχετίζονται με μετατοπίσεις των ενεργειακών επιπέδων του ατόμου $E_1^{(0)}$ και $E_2^{(0)}$ κατά

$$\Delta E_1^{(2)} = -\Delta - \frac{\left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|^2}{\Delta} \quad \text{και} \quad \Delta E_2^{(2)} = \Delta + \frac{\left| \frac{1}{2}\hbar\Omega_{12} \right|^2}{\Delta}$$

αντίστοιχα.

Για να ερμηνεύσουμε τις αλλαγές που επιφέρουν αυτές οι επιπρόσθετες μετατοπίσεις $\Delta E_1^{(2)}$ και $\Delta E_2^{(2)}$ στο ατομικό φάσμα, πρέπει να στραφούμε στις κυματοσυναρτήσεις των καταστάσεων που αντιστοιχούν στις ενέργειες $E_{N_{\lambda,1}}^{(1,2)}$ και $E_{N_{\lambda,2}}^{(1,2)}$. Για λόγους απλότητας, θα

Θεωρητική περιγραφή

περιοριστούμε στις κανονικοποιημένες συναρτήσεις $\Psi_{N_\lambda,1}^{(1)}$ και $\Psi_{N_\lambda,1}^{(2)}$ οι οποίες αντιστοιχούν στις ενέργειες $E_{N_\lambda,1}^{(1)}$ και $E_{N_\lambda,1}^{(2)}$ [Bonch 1967]

$$\Psi_{N_\lambda,1}^{(1)} = \Psi_1^{(0)} \Phi_{N_\lambda} \cos \frac{\beta_\omega}{2} + \Psi_2^{(0)} \Phi_{N_\lambda+1} \sin \frac{\beta_\omega}{2},$$

$$\Psi_{N_\lambda,1}^{(2)} = \Psi_1^{(0)} \Phi_{N_\lambda} \sin \frac{\beta_\omega}{2} + \Psi_2^{(0)} \Phi_{N_\lambda+1} \cos \frac{\beta_\omega}{2}$$

όπου $\tan \beta_\omega = |V_{12}|/\Delta$ και Φ_{N_λ} οι κυματοσυναρτήσεις των N_λ φωτονίων. Η αλλαγή στην ενεργειακή δομή που επάγεται από την αλληλεπίδραση ατόμου-laser ανιχνεύεται ως μετατόπιση των γραμμών εκπομπής που προέρχονται ή καταλήγουν σε μία από τις διαταραγμένες ατομικές καταστάσεις $\Psi_{N_\lambda,1}^{(1)}$, $\Psi_{N_\lambda,1}^{(2)}$. Ας θεωρήσουμε για παράδειγμα τον φθορισμό από την $\Psi_{N_\lambda,1}^{(1)}$ προς μια τρίτη κατάσταση $\Psi_s^{(0)}$ (ενέργειας $E_3^{(0)} < E_1^{(0)}$). Θεωρείται ότι η αλληλεπίδραση του πεδίου συχνότητας ω με την $\Psi_s^{(0)}$ την αφήνει ανεπηρέαστη. Απουσία του εναλλασσόμενου ηλεκτρικού πεδίου συχνότητας ω ισχύει $\beta_\omega = 0$ και $\Psi_1^{(1)} = \Psi_1^{(0)}$, $\Psi_1^{(2)} = \Psi_2^{(0)}$ με το φάσμα απορρόφησης να αποτελείται από μια γραμμή συχνότητας $\omega_s = (E_1^{(0)} - E_3^{(0)})/\hbar$. Όταν εφαρμόζεται το πεδίο συχνότητας ω τότε οι καταστάσεις $\Psi_1^{(0)}$ και $\Psi_2^{(0)}$ αναμιγνύονται και στο φάσμα εμφανίζονται δύο γραμμές φθορισμού με συχνότητες

$$\omega_1 = \omega_s - \frac{1}{2} \Delta + \left(\sqrt{\Delta^2 + (\hbar\Omega_{12})^2} \right) = \omega_s + \delta_n(\omega)$$

$$\omega_2 = \omega_s - \frac{1}{2} \Delta - \left(\sqrt{\Delta^2 + (\hbar\Omega_{12})^2} \right) = \omega_s - \delta_n(\omega) - \Delta$$

έχοντας εισάγει την εξαρτημένη-από-τη-συχνότητα δυναμική μετατόπιση Stark [Shore 1990]

$$2\delta_n(\omega) = \sqrt{\Delta^2 + (\hbar\Omega_{12})^2} - \Delta.$$

Ο λόγος των εντάσεων των δύο συχνοτήτων είναι $I_2/I_1 = \tan^2(\beta_\omega/2)$ [Bonch 1967].

Στην περιοχή «ισχυρού πεδίου» όπου ισχύει $|\hbar\Omega_{12}| \gg |\Delta|$ οι δύο αυτές συνιστώσες έχουν ίσες εντάσεις και η μετατόπισή της καθεμίας είναι ανάλογη της Ω_{12} συχνότητας Rabi. Η επαγόμενη από το laser μετατόπιση είναι εκδήλωση του γραμμικού φαινομένου AC Stark (δηλ. γραμμικού ως προς το $|\mathbf{E}|$, άρα ανάλογη του $I^{1/2}$). Το ζευγάρι των γραμμών αυτών ορίζεται μερικές φορές στη βιβλιογραφία ως *Autler-Townes doublet* ενώ η ενεργειακή μετατόπιση $|\frac{1}{2} \hbar\Omega_{12}|$ ονομάζεται Rabi splitting (AC Stark splitting).



Στην περιοχή «ασθενούς πεδίου» όπου ισχύει $|\hbar\Omega_{12}| \ll |\Delta|$ το φάσμα αποτελείται κυρίως από τη συχνότητα ω_1 . Η συνιστώσα αυτή μετατοπίζεται κατά $\delta_n(\omega)$ (δυναμική μετατόπιση Stark), η οποία για ασθενή και κοντά σε συντονισμό πεδία ($\Delta \sim 0$) δίνεται προσεγγιστικά από [Shore 1990]

$$\delta_n(\omega) \approx \frac{(\hbar\Omega_{12})^2}{4\Delta}.$$

Αυτό είναι το τετραγωνικό φαινόμενο Stark (δηλ. ή μετατόπιση είναι ανάλογη του τετραγώνου του $|\mathbf{E}|$). Για σταθερή συχνότητα laser ω το $\delta_n(\omega)$ αυξάνεται γραμμικά με την ένταση $I \left(= \frac{c|\mathbf{E}|^2}{8\pi} \right)$. Για σταθερή ένταση I το $\delta_n(\omega)$ αυξάνει σε μέγεθος όσο η συχνότητα ω προσεγγίζει τη συχνότητα ω_0 . Το $\delta_n(\omega)$ αλλάζει πρόσημο όταν η συχνότητα του laser ξεπεράσει τη συχνότητα του Bohr.

1.3.4 Κανόνες επιλογής

Οι ηλεκτρονικές μεταβάσεις στα άτομα καθορίζονται από τους κανόνες επιλογής οι οποίοι αντανακλούν τις αρχές διατήρησης συγκεκριμένων φυσικών μεγεθών που συνδέονται με τις ιδιότητες συμμετρίας του ατομικού συστήματος.

Έστω ότι η διαταραχή V εκφράζεται από τον τελεστή αλληλεπίδρασης της ηλεκτρικής διπολικής ροπής (μιας και ο τελεστής αυτός είναι υπεύθυνος για τις μεταβάσεις οι οποίες παρατηρήθηκαν στην εργασία αυτή). Εάν ο τελεστής γράφεται στην μορφή $V = zE \cos \omega t$ (υποθέτοντας εξωτερικό αρμονικό πεδίο γραμμικά πολωμένο κατά τον άξονα z) και υπολογιστούν τα στοιχεία πίνακα της μετάβασης που προκαλεί η διαταραχή αυτή, τότε σύμφωνα και με το θεώρημα του Wigner – Eckart [Sakurai 1985] αποδεικνύεται ότι οι επιτρεπόμενες μονοφωτονικές μεταβάσεις υπακούουν στους ακόλουθους κανόνες επιλογής [Cowan 1981]:

- (i) Αλλαγή ομοτιμίας
- (ii) $\Delta J = 0, \pm 1$, με $J = 0 \leftarrow | \rightarrow J' = 0$ εάν $\Delta J = 0$
- (iii) $\Delta M = 0$ με $M = 0 \leftarrow | \rightarrow M' = 0$ εάν $\Delta J = 0$

Θεωρητική περιγραφή

όπου J, J' είναι ο κβαντικός αριθμός της ολικής στροφορμής, και M, M' ο μαγνητικός κβαντικός αριθμός της αρχικής και τελικής κατάστασης αντίστοιχα.

Οι παραπάνω κανόνες μπορούν να γενικευθούν για να περιγράφουν πολυφωτονικές μεταβάσεις που επάγονται από γραμμικά πολωμένο φως. Εφαρμόζοντας τους κανόνες επιλογής για απορρόφηση ενός φωτονίου, σε μια μετάβαση που αφορά απορρόφηση K φωτονίων θα ισχύουν οι επιπλέον ακόλουθοι κανόνες [Delone 1984, Cook 1978]:

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

με την ομοτιμία της τελικής κατάστασης να αλλάζει ως προς αυτήν της αρχικής σύμφωνα με την έκφραση $(-1)^K$.

Για κυκλικά πολωμένο φως και για μονοφωτονικές διαδικασίες, ο τελετής μετάβασης είναι $V = E(x \cos \omega t \pm y \sin \omega t)$, ανάλογα με την «στροφικότητα» (helicity) του κυκλικά πολωμένου φωτός. Τα στοιχεία πίνακα για την μετάβαση αυτή είναι μη μηδενικά εάν ισχύουν οι ακόλουθοι κανόνες επιλογής [Delone 1984, Cowan 1981]:

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

Το πρόσημο του ΔM εξαρτάται από το αν το φως είναι δεξιόστροφα (π πόλωση, $+1$) ή αριστερόστροφα πολωμένο (σ πόλωση, -1). Για K -φωτονικές μεταβάσεις οι κανόνες επιλογής είναι:

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

και η ομοτιμία των καταστάσεων αλλάζει ως $(-1)^K$.

1.4 Φορμαλισμός Πίνακα Πυκνότητας

1.4.1. Εισαγωγικά

Εάν ένα κβαντομηχανικό σύστημα (π.χ. ένα άτομο) βρίσκεται σε μια συγκεκριμένη κατάσταση s , όλες οι φυσικές ιδιότητες του συστήματος μπορούν να περιγραφούν μέσω της αντίστοιχης κυματοσυνάρτησης $\Psi_s(\vec{r}, t)$ η οποία υπακούει την εξίσωση του Schrödinger

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_s(\vec{r}, t)}{\partial t} = \tilde{H} \Psi_s(\vec{r}, t) \quad (1.4.1)$$



με $\tilde{H} = \tilde{H}_0 + \tilde{V}$, όπου \tilde{H}_0 η Χαμιλτονιανή του ελεύθερου ατόμου και \tilde{V} η Χαμιλτονιανή της αλληλεπίδρασης. Η κυματοσυνάρτηση της κατάστασης s γράφεται

$$\Psi_s(\vec{r}, t) = \sum_n C_n^s(t) u_n(\vec{r}) \quad (1.4.2)$$

όπου οι συναρτήσεις $u_n(\vec{r})$ είναι οι ορθοκανονικοποιημένες ιδιοσυναρτήσεις-λύσεις της χρονοανεξάρτητης εξίσωσης του Schrödinger, $\tilde{H}_0 u_n(\vec{r}) = E_n u_n(\vec{r})$. Οι συντελεστές $|C_n^s(t)|^2$ δίνουν την πιθανότητα το σύστημα να είναι στην ιδιοκατάσταση n τη χρονική στιγμή t . Οι (1.4.1)-(1.4.2) δίνουν

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_m^s(t) = \sum_n H_{mn} C_n^s(t) \quad (1.4.3)$$

όπου $H_{mn} = \int u_m^*(\vec{r}) \tilde{H} u_n(\vec{r}) d^3r$.

Ένα βασικό αξίωμα της κβαντικής μηχανικής είναι ότι οποιοδήποτε παρατηρούμενο μέγεθος A συνδέεται με ένα Ερμιτιανό τελεστή \tilde{A} . Η αναμενόμενη τιμή του \tilde{A} είναι

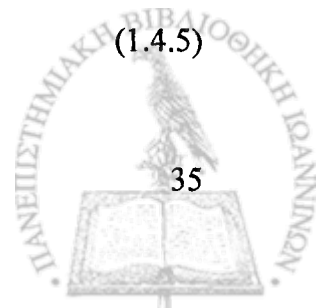
$$\langle A \rangle = \int \Psi_s^* \tilde{A} \Psi_s d^3r = \sum_{nm} C_m^{s*} C_n^s A_{mn} \quad (1.4.4)$$

όπου $A_{mn} = \langle u_m | \tilde{A} | u_n \rangle$.

Όταν η αρχική κατάσταση και η Χαμιλτονιανή του συστήματος είναι γνωστά, ο παραπάνω φορμαλισμός είναι ικανός να περιγράψει πλήρως την χρονική εξέλιξη του συστήματος και όλων των παρατηρούμενων μεγεθών. Παρόλα αυτά υπάρχουν περιπτώσεις όπου η κατάσταση του συστήματος δεν είναι επακριβώς γνωστή. Ένα τέτοιο παράδειγμα είναι μια συλλογή ατόμων σε ένα κελί ατομικών ατμών, όπου τα άτομα αλληλεπιδρούν μεταξύ τους μέσω κρούσεων, οι οποίες όποτε συμβαίνουν αλλάζουν τις κυματοσυναρτήσεις των αλληλεπιδρώντων ατόμων. Πρακτικά σε ένα τέτοιο περιβάλλον η κατάσταση του κάθε ατόμου δεν είναι γνωστή. Σε τέτοιες συνθήκες ο φορμαλισμός του πίνακα πυκνότητας (τελεστής πυκνότητας, πίνακας πυκνότητας) μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να περιγράψει το σύστημα.

Έστω $p(s)$ η πιθανότητα το σύστημα να βρίσκεται στην κατάσταση s . Τα στοιχεία του πίνακα πυκνότητας ορίζονται ως [Boyd 2003]

$$\rho_{nm} = \sum_s p(s) C_m^{s*} C_n^s \quad (1.4.5)$$



Θεωρητική περιγραφή

όπου οι δείκτες n και m καλύπτουν όλες τις ενεργειακές ιδιοκατάστασεις του συστήματος. Τα στοιχεία του πίνακα πυκνότητας έχουν την ακόλουθη φυσική σημασία: Τα διαγώνια στοιχεία ρ_{nn} δίνουν το κλάσμα των συστημάτων που είναι στην ιδιοκατάσταση n ενώ τα μη-διαγώνια στοιχεία ρ_{nm} εκφράζουν τη συσχέτιση μεταξύ των ιδιοκαταστάσεων n και m , με την έννοια ότι $\rho_{nm} \neq 0$ μόνο όταν το σύστημα θα είναι σε μια σύμφωνη υπέρθεση των n και m .

Στα πλαίσια του φορμαλισμού του πίνακα πυκνότητας η αναμενόμενη τιμή ενός φυσικού μεγέθους A του συστήματος δίνεται από

$$\langle \bar{A} \rangle = \sum_{nm} \rho_{nm} A_{mn} \quad (1.4.6)$$

όπου η γραμμή πάνω από το A δηλώνει τον μέσο όρο ενός στατιστικού συνόλου, δηλαδή τον μέσο όρο επί όλων των δυνατών καταστάσεων του συστήματος. Εισάγοντας τον τελεστή ίχνους, $tr \tilde{M} = \sum_n M_{nn}$ η (1.4.6) γράφεται:

$$\langle \bar{A} \rangle = tr(\tilde{\rho} \tilde{A}) \quad (1.4.7)$$

Για να καθοριστεί πως μια αναμενόμενη τιμή εξελίσσεται στον χρόνο, αρκεί να προσδιοριστεί πως εξελίσσεται με τον χρόνο ο πίνακας πυκνότητας. Με απευθείας παραγωγή της (1.4.5) γίνεται

$$\dot{\rho}_{nm} = \sum_s \frac{dp(s)}{dt} C_m^{s*} C_n^s + \sum_s p(s) C_m^{s*} \frac{dC_n^s}{dt} + \frac{dC_m^{s*}}{dt} C_n^s \quad (1.4.8)$$

Στην περίπτωση που το $p(s)$ δεν μεταβάλλεται με το χρόνο, ο πρώτος όρος στο δεξί μέλος της (1.4.8) μηδενίζεται. Ο δεύτερος όρος, χρησιμοποιώντας την εξίσωση του Schrödinger (1.4.3) και εισάγοντας την (1.4.5), γίνεται:

$$\dot{\rho}_{nm} = \frac{i}{\hbar} \sum_v (\rho_{nv} H_{vm} - H_{nv} \rho_{vm})$$

Η άθροιση επάνω στο v στην προηγούμενη έκφραση οδηγεί στο αποτέλεσμα:

$$\dot{\rho}_{nm} = \frac{i}{\hbar} (\tilde{\rho} \tilde{H} - \tilde{H} \tilde{\rho})_{nm} = \frac{-i}{\hbar} [\tilde{H}, \tilde{\rho}]_{nm} \quad (1.4.9)$$

Η εξ. (1.4.9) περιγράφει πως εξελίσσεται στον χρόνο ο πίνακας πυκνότητας σαν συνέπεια των αλληλεπιδράσεων που περιλαμβάνονται στην Χαμιλτονιανή. Παρόλα αυτά, υπάρχουν φαινόμενα, όπως π.χ. κρούσεις, τα οποία μπορούν να οδηγήσουν σε μια αλλαγή της κατάστασης του συστήματος και άρα σε μια μη-μηδενική τιμή του $dp(s)/dt$. Τα φαινόμενα



αυτά συμπεριλαμβάνονται στον φορμαλισμό προσθέτοντας όρους απόσβεσης στην εξ. (1.4.9).

Για τα μη-διαγώνια στοιχεία του πίνακα πυκνότητας η (1.4.9) γράφεται:

$$\dot{\rho}_{nm} = \frac{-i}{\hbar} [\tilde{H}, \tilde{\rho}]_{nm} - \gamma_{nm} (\rho_{nm} - \rho_{nm}^{eq}).$$

Ο δεύτερος όρος στο δεξί μέλος είναι ένας φαινομενολογικός όρος ο οποίος υποδηλώνει ότι το ρ_{nm} τείνει προς την τιμή ισορροπίας του ρ_{nm}^{eq} με ένα ρυθμό $\gamma_{nm} = \gamma_{mn}$. Επιπλέον, υποθέτουμε ότι

$$\rho_{nm}^{eq} = 0 \quad \text{για } n \neq m$$

διότι σε συνθήκες θερμοδυναμικής ισορροπίας οι διεγερμένες καταστάσεις του συστήματος μπορεί να περιέχουν πληθυσμό ($\rho_{nm}^{eq} \neq 0$), αλλά η θερμική διέγερση δεν μπορεί να παράγει καμία συσχέτιση ατομικών ιδιοκαταστάσεων.

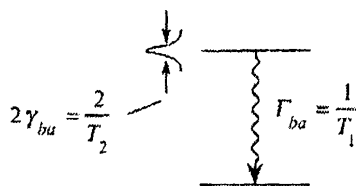
Για τα διαγώνια στοιχεία, λαμβάνοντας υπόψη την δυνατότητα αποδιέγερσης του πληθυσμού από υψηλότερα ενεργειακά επίπεδα σε χαμηλότερα, θα ισχύει:

$$\dot{\rho}_{nn} = \frac{-i}{\hbar} [\tilde{H}, \tilde{\rho}]_{nn} + \sum_{E_m > E_n} \Gamma_{nm} \rho_{mm} - \sum_{E_m < E_n} \Gamma_{mn} \rho_{nn} \quad (1.4.10)$$

όπου το Γ_{nm} δίνει τον ρυθμό ανά άτομο με τον οποίο πληθυσμός αποδιεγείρεται από το επίπεδο m στο επίπεδο n .

1.4.2 Εξισώσεις κίνησης πίνακα πυκνότητας για ένα κλειστό άτομο δύο-επιπέδων

Η υπό συζήτηση αλληλεπίδραση απεικονίζεται στο Σχ. 1.4.1, με το υψηλότερα διεγερμένο επίπεδο b να αποδιεγείρεται μέσω αυθόρμητης εκπομπής στο χαμηλότερο επίπεδο a με ρυθμό Γ_{ba} οπότε ο χρόνος ζωής του επιπέδου b είναι $T_1 = 1/\Gamma_{ba}$. Το σύστημα χαρακτηρίζεται κλειστό γιατί όλος ο πληθυσμός από το υψηλότερο επίπεδο καταλήγει στο χαμηλότερο.



Σχήμα 1.4.1: Διαδικασίες αποδιέγερσης του «κλειστού» συστήματος δύο-επιπέδων. Με $2\gamma_{ba}$ συμβολίζεται το εύρος της γραμμής μετάβασης

Θεωρητική περιγραφή

Εισάγοντας την Χαμιλτονιανή στην (1.4.9), λαμβάνοντας υπόψη πως σε ένα άτομο δύο-επιπέδων οι δείκτες n , m και ν μπορούν να πάρουν μόνο τις τιμές a ή b και προσθέτοντας όρους που εκφράζουν αποδιέγερση, οι αντίστοιχες εξισώσεις δίνονται από [Boyd 2003]:

$$\dot{\rho}_{ba} = -\left(i\omega_{ba} - \frac{1}{T_2}\right)\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}V_{ba}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (1.4.11\alpha)$$

$$\dot{\rho}_{bb} = -\frac{\rho_{bb}}{T_1} - \frac{i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}) \quad (1.4.11\beta)$$

$$\dot{\rho}_{aa} = \frac{\rho_{bb}}{T_1} + \frac{i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}) \quad (1.4.11\gamma)$$

Δεν χρειάζεται ξεχωριστή εξίσωση κίνησης για το ρ_{ab} εξαιτίας της σχέσης $\rho_{ab} = \rho_{ba}^*$. Από τις (1.4.11β)-(1.4.11γ) είναι φανερό πως $\dot{\rho}_{bb} + \dot{\rho}_{aa} = 0$, το οποίο δείχνει πως ο συνολικός πληθυσμός $\rho_{bb} + \rho_{aa}$ είναι μια διατηρούμενη ποσότητα. Από τον ορισμό του πίνακα πυκνότητας είναι γνωστό ότι τα διαγώνια στοιχεία του $\tilde{\rho}$ εκφράζουν πιθανότητα κατάληψης μιας κατάστασης και άρα θα ισχύει

$$\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1 \quad (1.4.12)$$

Από τις (1.4.11γ) και (1.4.11β) συνεπάγεται η:

$$\frac{d}{dt}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) = -\frac{(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{eq}}{T_1} - \frac{2i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}) \quad (1.4.13)$$

όπου έχει χρησιμοποιηθεί η (1.4.12) και το γεγονός ότι σε θερμική ισορροπία ισχύει

$$(\rho_{bb} - \rho_{aa})^{eq} = -1.$$

Απουσία εφαρμοζόμενου ηλεκτρικού πεδίου, δηλ. για $V_{ba} = 0$, η λύση της (1.4.13) είναι

$$\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t) = (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{eq} + \left\{ \rho_{bb}(0) - \rho_{aa}(0) \right\} - (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{eq} \left\} e^{-t/T_1}.$$

Η εξίσωση αυτή δείχνει ότι η μεταβολή της αντιστροφής πληθυσμού από την αρχική τιμή της στην τιμή ισορροπίας συμβαίνει σε χρονικό διάστημα της τάξης του T_1 .

Η λύση της (1.4.11α) για $V_{ba} = 0$ είναι της μορφής

$$\rho_{ba}(t) = \rho_{ba}(0)e^{-(i\omega_{ba} + 1/T_2)t}.$$

Το αποτέλεσμα αυτό ερμηνεύεται καλύτερα λαμβάνοντας υπόψη την αναμενόμενη τιμή της επαγόμενης ηλεκτρικής διπολικής ροπής



$$\langle \bar{\mu}(t) \rangle = \mu_{ab} \rho_{ba}(t) + \mu_{ba} \rho_{ab}(t) = [\mu_{ab} \rho_{ba}(0) e^{-i\omega_{ba}t} + c.c.] e^{-t/T_2}$$

Η παραπάνω έκφραση δείχνει ότι η διπολική ροπή ταλαντώνεται με συχνότητα ω_{ba} και η τιμή της μηδενίζεται σε χρονικό διάστημα της τάξης του T_2 .

Στην προσέγγιση της ηλεκτρικής διπολικής αλληλεπίδρασης, και για την περίπτωση όπου $V_{ba} \neq 0$, η Χαμιλτονιανή της αλληλεπίδρασης είναι

$$V_{ba} = -\mu_{ba} (E e^{-i\omega t} + E^* e^{i\omega t}) \quad (1.4.14)$$

Οι εξισώσεις (1.4.11α) και (1.4.13) δεν μπορούν να λυθούν επακριβώς για το V_{ba} που δίνεται από την (1.4.14). Παρόλα αυτά μπορούν να λυθούν εφαρμόζοντας την αποκαλούμενη «Προσέγγιση περιστρεφόμενου διανύσματος» (Rotating Wave Approximation (RWA)). Όταν $\omega \approx \omega_{ba}$, ο όρος του V_{ba} που ταλαντώνεται ως $e^{-i\omega t}$ παίζει σημαντικότερο ρόλο στην έκφραση του ρ_{ba} σε σχέση με τον όρο που ταλαντώνεται ως $e^{i\omega t}$ [Boyd 2003]. Έτσι η (1.4.14) μπορεί να γραφεί

$$V_{ba} = -\mu_{ba} E e^{-i\omega t}.$$

Στην προσέγγιση αυτή, οι (1.4.11α) και (1.4.13) γίνονται:

$$\frac{d}{dt} \rho_{ba} = -\left(i\omega_{ba} + \frac{1}{T_2} \right) \rho_{ba} - \frac{i}{\hbar} \mu_{ba} E e^{-i\omega t} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (1.4.15)$$

$$\frac{d}{dt} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) = -\frac{(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{eq}}{T_1} + \frac{2i}{\hbar} (\mu_{ba} E e^{-i\omega t} \rho_{ab} - \mu_{ba} E^* e^{i\omega t} \rho_{ba}) \quad (1.4.16)$$

Εισάγοντας ακολούθως την αργά μεταβαλλόμενη μεταβλητή σ_{ba}

$$\rho_{ba} = \sigma_{ba} e^{-i\omega t}$$

οι (1.4.15)-(1.4.16) γράφονται

$$\frac{d}{dt} \sigma_{ba} = \left(\left[i(\omega - \omega_{ba}) - \frac{1}{T_2} \right] \right) \sigma_{ba} - \frac{i}{\hbar} \mu_{ba} E (\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (1.4.17)$$

$$\frac{d}{dt} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) = -\frac{(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{eq}}{T_1} + \frac{2i}{\hbar} (\mu_{ba} E \sigma_{ab} - \mu_{ba} E^* \sigma_{ba}) \quad (1.4.18)$$

όπου το μέγεθος $\omega - \omega_{ab} = \Delta$ ορίζεται ως αποσυντονισμός (detuning) και $\Omega_{ba} = \mu_{ba} E / \hbar$ ορίζεται ως συχνότητα Rabi.

Θεωρητική περιγραφή

Η αναλυτική επίλυση των παραπάνω εξισώσεων είναι εφικτή μόνο για σταθερού πλάτους πεδία και σε λίγες ειδικές περιπτώσεις για παλμικά πεδία. Εν γένει, απαιτείται αριθμητική επίλυση ακόμα και για σύστημα 2 επιπέδων.

Οι εξισώσεις αυτές επιδέχονται γενίκευση σε σύστημα περισσότερων των δύο καταστάσεων περιλαμβάνοντας και πολυφωτονικές μεταβάσεις μεταξύ αυτών των καταστάσεων. Παρέχουν σωστή περιγραφή της δυναμικής όταν υπάρχουν συντονιστικές πολυφωτονικές μεταβάσεις και επιτρέπουν την σωστή περιγραφή φαινομένων κορεσμού (saturation), δυναμικής μετατόπισης Stark (AC Stark shifting), διαχωρισμού Stark (AC Stark splitting), διεύρυνσης λόγω αλληλεπίδρασης με το πεδίο (power broadening) κλπ.



ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2. ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΟ ΜΕΡΟΣ

2.1. Εισαγωγή

Η παρούσα πειραματική μελέτη πραγματοποιήθηκε στο Κέντρο Εφαρμογών Laser του Εργαστηρίου Ατομικής και Μοριακής Φυσικής του Τμήματος Φυσικής του Πανεπιστημίου Ιωαννίνων.

Σκοπός της εργασίας είναι η μελέτη του πολυφωτονικού απλού και διπλού ιονισμού των ατόμων Mg, Ca και Sr, της ομάδας των Αλκαλικών Γαιών, μέσω διέγερσης αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων με ns παλμούς laser και μέτριες εντάσεις ($<10^{12}$ W/cm²). Ιδιαίτερη έμφαση δίνεται στη διέγερση των $np^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων [$n = 3, 4, 5$ αντίστοιχα για Mg, Ca, Sr], που βρίσκονται λίγο πάνω από τα αντίστοιχα πρώτα κατώφλια ιονισμού, εμφανίζουν έντονα φαινόμενα ηλεκτρονιακού συσχετισμού και έχουν σημαντικά μεγαλύτερο ενεργειακό εύρος σε σχέση, π.χ., με Rydberg καταστάσεις.

Για την πειραματική μελέτη του φαινομένου χρησιμοποιείται διάταξη ανίχνευσης ιόντων σε περιβάλλον ατομικής δέσμης και διάταξη ανίχνευσης φθορισμού σε κελί παραγωγής ατμών (Mg, Ca, Sr). Στο περιβάλλον ατομικής δέσμης τα παραγόμενα ιόντα ανιχνεύονται μέσω ενός φασματογράφου μάζας τύπου ελεύθερου χρόνου πτήσης (Time Of Flight - TOF) εφοδιασμένου με ανιχνευτικό σύστημα πολυκαναλικών πλακιδίων (multi-channel plates (MCPs)), ενώ στο κελί παραγωγής ατμών ο φθορισμός ανιχνεύεται μέσω μονοχρωμάτορα εφοδιασμένου με φωτοπολλαπλασιαστή.

Η άρτια ομοτιμία (parity) των $np^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων προϋποθέτει ότι από την επίσης άρτια $ns^2 \ ^1S_0$ βασική κατάσταση [$n = 3, 4, 5$ αντίστοιχα για Mg, Ca, Sr] μπορούν να διεγερθούν μέσω διεργασίας η οποία δεν αλλάζει την ομοτιμία, κάτι που εξασφαλίζεται με την απορρόφηση άρτιου αριθμού φωτονίων. Στην παρούσα πειραματική μελέτη οι $np^2 \ ^1S_0$ διεγείρονται με απορρόφηση τεσσάρων φωτονίων. Ένα σημαντικό πλεονέκτημα της τετραφωτονικής διέγερσης των συγκεκριμένων αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων τόσο για το Μαγνήσιο όσο και για τα Ασβέστιο και Στρόντιο είναι ότι τα φωτόνια που απαιτούνται

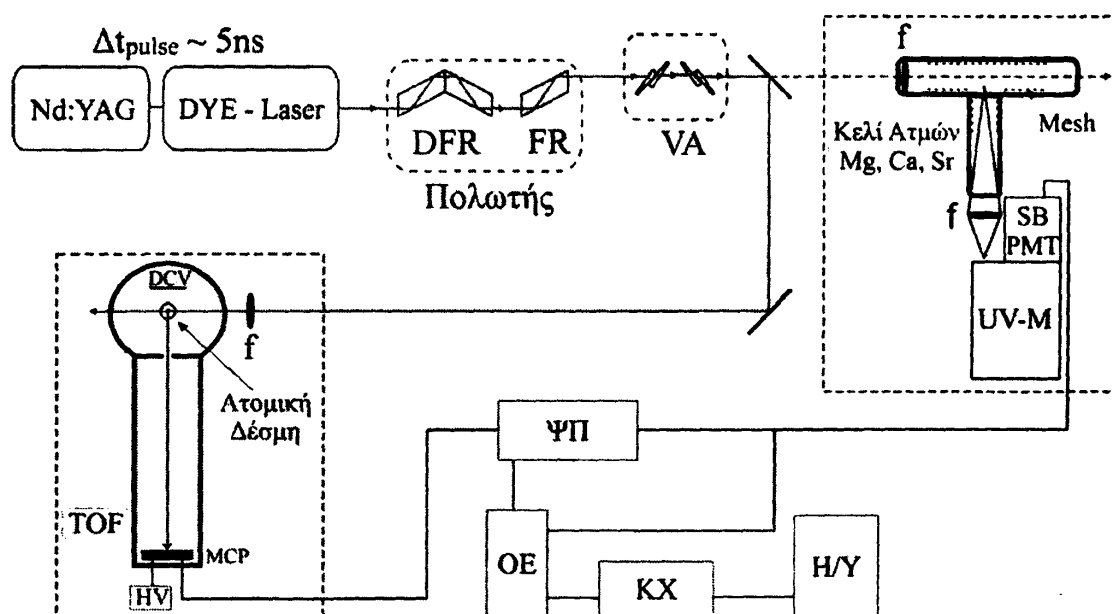


Πειραματικό μέρος

ανήκουν στο ορατό φάσμα και είναι εύκολα διαθέσιμα με τα υπάρχοντα εμπορικά συστήματα laser. Αντίθετα η δυσκολία στην τετραφωτονική απορρόφηση έγκειται στην μικρή ενεργό διατομή της μετάβασης καθιστώντας έτσι αναγκαία τη σχετικά μεγάλη ένταση laser (αύξηση της πυκνότητας φωτονίων) στο χώρο της αλληλεπίδρασης, κάτι που επιτυγχάνεται με τη μικρή χρονική διάρκεια του παλμού laser (~ 5 ns), αύξηση της ενέργειας των παλμών φωτός και τη χρήση φακών σχετικά μικρών εστιακών αποστάσεων, π.χ. $f = 10$ cm.

2.2 Πειραματική διάταξη

Η πειραματική διάταξη απεικονίζεται στο Σχ. (2.1). Η γραμμικά πολωμένη δέσμη laser κατευθύνεται και εστιάζεται είτε σε ένα πείραμα ατομικής δέσμης είτε σε ένα πείραμα κελιού ατμών. Η πόλωση της δέσμης laser αλλάζει μέσω



Σχήμα 2.1 Σχηματικό διάγραμμα της πειραματικής διάταξης όπου η παλμική ακτινοβολία (5ns) που παράγεται στο σύστημα Nd:YAG Dye-Laser κατευθύνεται και εστιάζεται είτε σε ένα πείραμα ατομικής δέσμης είτε σε ένα κελί ατμών. **TOF**: Φασματογράφος μάζας **DCV**: DC τάση απώθησης ιόντων **HV**: Τροφοδοτικό υψηλής τάσης για την λειτουργία των MCPs **MCP**: Πολυκαναλικός πολλαπλασιαστής ηλεκτρονίων **DFR – FR**: Διπλό και απλό πρίσμα Fresnel **VA**: Διάταξη μείωσης ενέργειας παλμού **PMT**: Φωτοπολλαπλασιαστής (για το άτομο του Mg χρησιμοποιήθηκε φωτοπολλαπλασιαστής εξαιρετικά χαμηλής ευαισθησίας στο ορατό φως) **UV-M**: Μονοχρωμάτορας ευαίσθητος στο υπεριώδες **ΨΠ**: Ψηφιακός παλμογράφος **OE**: Ολοκληρωτικός ενισχυτής με πύλη, **ΚΧ**: Καταγραφικό χαρτιού **H/Y**: Προσωπικός υπολογιστής.

ενός συστήματος οπτικών που αποτελείται από ένα διπλό πρίσμα Fresnel (που λειτουργεί ως πλακίδιο $\lambda/2$) ακολουθούμενο από ένα απλό πρίσμα Fresnel (Σχ. 2.1). Περιστρέφοντας το διπλό πρίσμα Fresnel κατά 22.5° σε σχέση με την πόλωση του φωτός και διατηρώντας το απλό πρίσμα Fresnel παράλληλο με την πόλωση του laser, η πόλωση μετατρέπεται από γραμμική σε κυκλική και αντίστροφα δίχως να υπάρχει χωρική μετατόπιση της δέσμης φωτός ή μεταβολή της ενέργειας του παλμού laser. Η ρύθμιση της ενέργειας του παλμού επιτυγχάνεται παρεμβάλλοντας στην πορεία της δέσμης διάταξη μείωσης ενέργειας (Newport Model 735 -5, VA στο Σχ. 2.1), η οποία δεν επιφέρει χωρική μετατόπισή της δέσμης, ενώ η ενέργεια του παλμού μετράται με ένα ψηφιακό ενεργόμετρο (joule meter) (Orphir Model PD300). Η δέσμη laser εστιάζεται στο χώρο αλληλεπίδρασης χρησιμοποιώντας φακούς εστιακής απόστασης $f = 10/11.2\text{cm}$. Η ένταση της ακτινοβολίας για Γκαουσιανές δέσμες υπολογίζεται σύμφωνα με τον τύπο [Siegman 1986]

$$I = \frac{1}{(1.22)^2 \pi \lambda^2} \frac{E}{\Delta t} \left(\frac{d}{f} \right)^2$$

όπου λ το μήκος κύματος του laser σε cm, E (σε mJ) και Δt (σε s) η ενέργεια και το χρονικό εύρος αντίστοιχα του παλμού laser, d η διάμετρος της ανεστίαστης δέσμης laser και f η εστιακή απόσταση του φακού.

2.2.1 Σύστημα laser

Η ακτινοβολία που χρησιμοποιείται και στις δύο πειραματικές διατάξεις παράγεται σε ένα laser χρωστικής (Lambda Physik ScanMate 2EC-400) το οποίο αντλείται από ένα Nd:YAG laser (Quantel Brilliant BW). Το Nd:YAG laser παράγει παλμούς χρονικής διάρκειας $\sim 5\text{ns}$, μήκους κύματος 1064nm , με μέγιστη ενέργεια παλμού $\sim 850\text{mJ}$ και συχνότητα λειτουργίας 10Hz . Με τη χρήση κατάλληλων κρυστάλλων παραγωγής αρμονικών επιλέγεται η δεύτερη αρμονική στα 532nm ή η τρίτη στα 355nm με μέγιστη ενέργεια παλμού 400mJ και 170mJ αντίστοιχα. Η εξερχόμενη από το Nd:YAG ακτινοβολία αντλεί οπτικά το laser χρωστικής το οποίο παράγει παλμούς διάρκειας $\sim 5\text{ns}$ και ανάλογα με τη χρωστική ουσία προσφέρει τη δυνατότητα επιλογής και παραγωγής οποιουδήποτε μήκους κύματος γραμμικά πολωμένης ακτινοβολίας (θεμελιώδης) στο ορατό φάσμα ($\lambda_{\text{vis}} = 400\text{-}700\text{nm}$). Παράλληλα με τη χρήση κρυστάλλων διπλασιασμού συχνότητας (τύπου BBO I, II ή III) παράγεται υπεριώδης

Πειραματικό μέρος

ακτινοβολία (UV) (δεύτερη αρμονική της θεμελιώδους) με μήκη κύματος ($\lambda_{UV} \sim 200 - 400$ nm), γραμμικά πολωμένη κάθετα όμως σε σχέση με το επίπεδο πόλωση της θεμελιώδους. Ο διαχωρισμός της δεύτερης αρμονικής (υπεριώδης) από την θεμελιώδη ακτινοβολία (ορατό) επιτυγχάνεται με τη διέλευση της διχρωματικής δέσμης laser μέσω διάταξης πρισμάτων τύπου Pellin – Broca τα οποία διατηρούν αναλλοίωτη τη διεύθυνση της υπεριώδους ακτινοβολίας με την αλλαγή του μήκους κύματος. Για τις ανάγκες της πειραματικής μας μελέτης οι χρωστικές ουσίες που χρησιμοποιούνται είναι οι παρακάτω:

(α) για το Μαγνήσιο, η χρωστική ουσία Rhodamin 610 (Exciton) παρέχοντας ακτινοβολία στην περιοχή 584 – 596 nm με μέγιστη ενέργεια παλμού ~ 30 mJ,

(β) για το Ασβέστιο, η χρωστική ουσία Pyridin 1 (LC 7100 Lambda Physik) παρέχοντας ακτινοβολία στην περιοχή 674 – 686 nm με μέγιστη ενέργεια παλμού ~ 20 mJ, και

(γ) για το Στρόντιο η χρωστική ουσία Pyridin 3 (LC 7300 Lambda Physik) παρέχοντας ακτινοβολία laser στην περιοχή 715 – 745 nm με μέγιστη ενέργεια παλμού ~ 20 mJ.

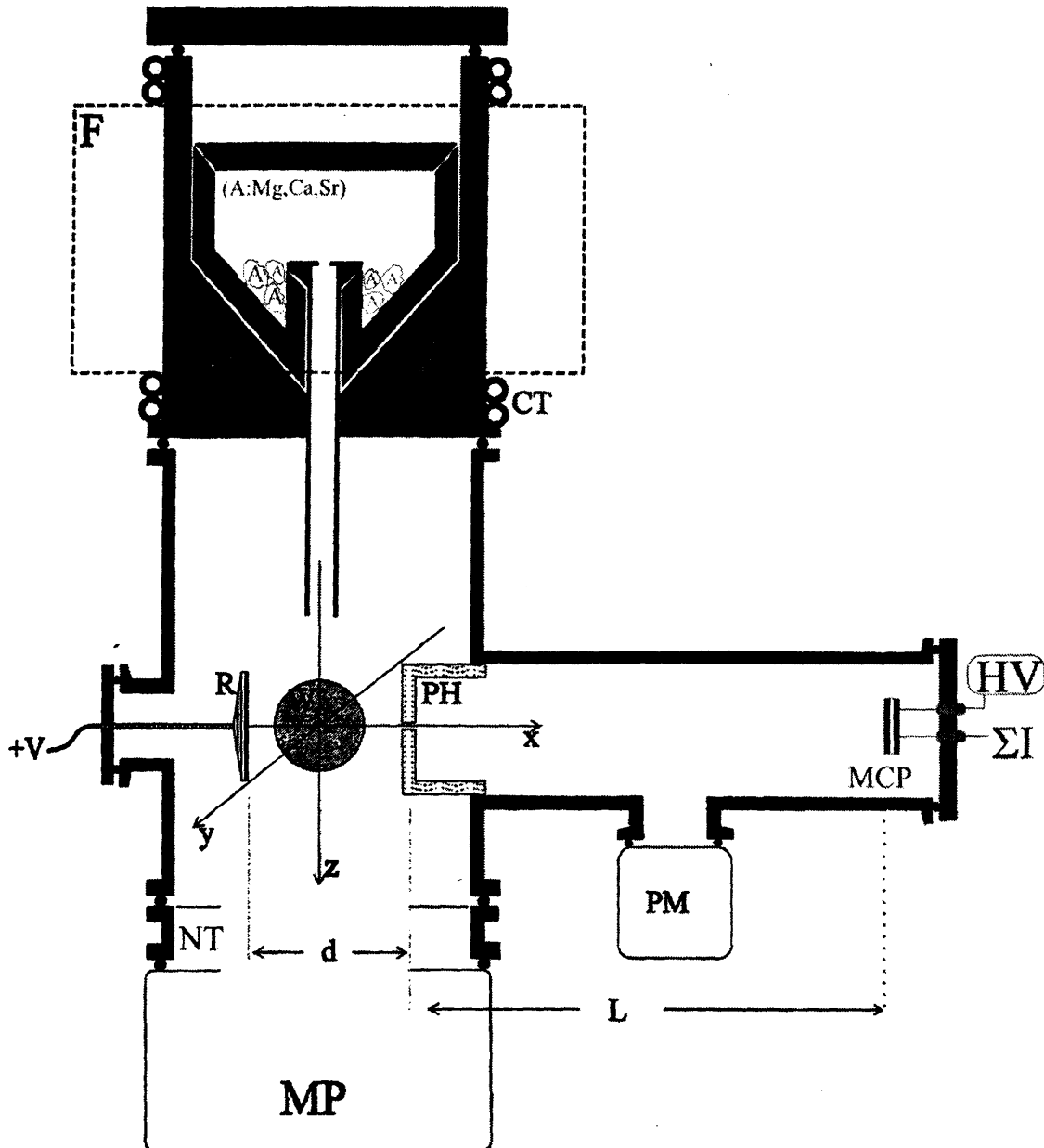
Το σύστημα laser προσφέρει τη δυνατότητα ρύθμισης του μήκους κύματος της ακτινοβολίας με ακρίβεια 0.001nm. Το ενεργειακό εύρος είναι 0.1cm^{-1} ενώ η ενισχυμένη αυθόρμητη εκπομπή (Amplified Spontaneous Emission – ASE) διατηρείται σε χαμηλά επίπεδα, $\sim 1.5\%$, σε σχέση με τη μέγιστη ενέργεια του παλμού. Το παραπάνω επιτυγχάνεται ρυθμίζοντας κατάλληλα τη συγκέντρωση της χρωστικής ουσίας στον ταλαντωτή και στον ενισχυτή του laser χρωστικής.

2.2.2 Διάταξη ατομική δέσμης – Φασματογράφος μάζας

Η χρήση ατομικής δέσμης σε πειράματα πολυφωτονικής διέγερσης και ιονισμού παρουσιάζει αρκετά πλεονεκτήματα. Τα σημαντικότερα από αυτά είναι (i) η μείωση του φαινομένου Doppler (διαπλάτυνση των φασματικών γραμμών) και (ii) η εξάλειψη των φαινομένων κρούσεων μεταξύ των ατόμων της ατομικής δέσμης. Το τελευταίο επιτρέπει (α) το σωστό καθορισμό της βασικής κατάστασης των ατόμων για την αλληλεπίδρασή τους με τη δέσμη laser και (β) σε ένα ενεργειακό επίπεδο χαρακτηρισμένο με ένα αριθμό ολικής στροφορμής J , αποτρέπει τη μίξη των ενεργειακών του υπο-επιπέδων με διαφορετικά m_J , επιτρέποντας έτσι την κανονική εφαρμογή των κανόνων επιλογής σε συνάρτηση με την πόλωση του φωτός. Στο Σχ. 2.2 σχεδιάζεται η διάταξη παραγωγής της ατομικής δέσμης και ανίχνευσης ιόντων (φασματογράφος μάζας). Το σύστημα άντλησης αποτελείται από μία περιστροφική αντλία



και μία μοριακή(turbo) αντλία (Pfeiffer TPC 270) με ταχύτητα άντλησης 270 lt/min, ενώ ο θάλαμος είναι εφοδιασμένος και με παγίδα υγρού αζώτου η οποία λόγω της χαμηλής της θερμοκρασίας «παγιδεύει» σωματίδια από το να καταλήξουν στα ευαίσθητα πτερύγια της μοριακής αντλίας. Το κενό που επιτυγχάνεται είναι της τάξης



Σχήμα 2.2: Διάταξη ατομικής δέσμης με φασματογράφο μάζας τύπου ελεύθερου χρόνου πτήσης για την ανίχνευση ιόντων. **MP:** Μοριακή αντλία, **F:** Φούρνος, **CT:** Σωληνώσεις νερού ψύξης, **NT:** Παγίδα αζώτου, **PM:** Μανόμετρο ιονισμού, **R:** Πλακίδιο απώθησης ιόντων, **W:** Παράθυρο εισόδου laser, **PH:** Γειωμένο πλακίδιο, **MCP:** Πολυκαναλικός ανιχνευτής, **HV:** Τροφοδοτικό υψηλής τάσης, **ΣΙ:** Σήμα ιονισμού

Πειραματικό μέρος

του $\sim 10^{-6}$ mbar. Οι ατμοί Mg (Aldrich 99.98 %), Ca (Aldrich 99.00 %), Sr (Aldrich 99.50%) παράγονται σε ένα φούρνο από ανοξειδωτο χάλυβα, που βρίσκεται στο επάνω μέρος του θαλάμου, ο οποίος τροφοδοτείται μέσω ηλεκτρονικού κυκλώματος ελέγχου θερμοκρασίας και προστασίας. Τα σημεία επαφής του φούρνου με την υπόλοιπη διάταξη ψύχονται με κλειστό κύκλωμα ψύξης νερού. Ο φούρνος λειτουργεί κάτω από τα εκάστοτε σημεία τήξης των Mg, Ca, Sr και συγκεκριμένα η θερμοκρασία λειτουργίας για το Mg είναι 580 – 600 °C, για το Ca 680 – 700 °C ενώ για το Sr είναι 600 – 620 °C. Όπως φαίνεται και στο Σχ.(2.2) οι ατμοί που παράγονται στο χώρο εξάχνωσης κατευθύνονται στον χώρο αλληλεπίδρασης μέσω μιας οπής διαμέτρου 0.5 mm που βρίσκεται στο ένα άκρο ενός σωλήνα από ανοξειδωτο χάλυβα διαμέτρου 5 mm και μήκους 10 cm. Περίπου 3 cm κάτω και προς την κατεύθυνση ρεύματος των ατμών η ατομική δέσμη και η δέσμη laser τέμνονται κάθετα μεταξύ τους. Η ατομική πυκνότητα σε εκείνο το σημείο εκτιμάται από γεωμετρικούς υπολογισμούς ότι είναι $\sim 10^8$ άτομα/cm³ [Nesmeyanov 1963].

Τα ιόντα που παράγονται κατά την αλληλεπίδραση ατόμων-ακτινοβολίας ανιχνεύονται σε διεύθυνση κάθετη στη δέσμη laser και στην ατομική δέσμη (Σχ. 2.2), ενώ διαχωρίζονται ανάλογα με το λόγο μάζα-προς-φορτίο (m/q) χρησιμοποιώντας ένα φασματογράφο μάζας τύπου χρόνου πτήσης (Time-of-Flight). Η διάταξη του φασματογράφου μάζας αποτελείται από ένα χαλύβδινο κυκλικό πλακίδιο (repeller) στο οποίο εφαρμόζεται σταθερή τάση $V_{rep} = + (300 - 500)$ Volts απωθώντας τα ιόντα προς ένα χάλκινο γειωμένο πλακίδιο με μία κυκλική οπή διαμέτρου 2 mm στο κέντρο του. Μετά τη διέλευσή τους από την οπή τα ιόντα ταξιδεύουν ελεύθερα από πεδία προς τον ανιχνευτή για ~ 20 cm μέσα σε ένα γειωμένο ατσάλινο κυλινδρικό σωλήνα (Σχ. 2.2).

Τα ιόντα που δημιουργούνται στο χώρο παραγωγής επιταχύνονται λόγω του σταθερού ηλεκτρικού πεδίου προς τον χώρο ανίχνευσης περνώντας μέσα από την οπή του χάλκινου πλακιδίου. Εισερχόμενα στο γειωμένο σωλήνα ταξιδεύουν ελεύθερα με το χρόνο $t_{ολ}$, που μεσολαβεί από τη στιγμή της δημιουργίας των ιόντων μέχρι τη χρονική στιγμή ανίχνευσής τους από τον πολυκαναλικό πολλαπλασιαστή ηλεκτρονίων (MultiChannel Plates-MCPs, Comstock CP 602), να είναι το άθροισμα του χρόνου πτήσης t_1 στο χώρο που υφίσταται το ηλεκτρικό πεδίο και του χρόνου πτήσης t_2 στον ελεύθερο από πεδίο χώρο (Σχ. 2.2) Με απλές εξισώσεις κινηματικής και αγνοώντας την αρχική ταχύτητα των ιόντων βρίσκεται ότι :



$$t_{ολ} = t_1 + t_2 = \sqrt{\frac{2x}{\alpha}} + \frac{L}{\sqrt{2\alpha d}} \quad (2.1)$$

όπου

$\alpha = \frac{V_{rep}}{d} \cdot \frac{q}{m}$: επιτάχυνση των ιόντων στο χώρο υπό την επίδραση του ηλεκτρικού πεδίου

x : απόσταση σημείου παραγωγής ιόντων από το χάλκινο γειωμένο πλακίδιο

d : απόσταση repeller από το χάλκινο γειωμένο πλακίδιο

L : μήκος διαδρομής ελεύθερης πτήσης

q : πολλαπλότητα φορτίου ιόντων

m : μάζα ιόντων

Μετρώντας την τάση σε Volts, τις αποστάσεις σε m και το φορτίο σε στοιχειώδης μονάδες φορτίου e , η (2.1) με απλές πράξεις γίνεται

$$t_{ολ} \approx \frac{(\sqrt{2dx} + L)}{\sqrt{V}} \sqrt{\frac{AB}{q}} \times 10^{-4} \quad (2.2)$$

όπου AB το ατομικό βάρος.

Από την παραπάνω σχέση συμπεραίνουμε ότι ο συνολικός χρόνος πτήσης που απαιτείται για τα ιόντα να φτάσουν στον ανιχνευτή από τη χρονική στιγμή δημιουργίας τους είναι ανάλογος της τετραγωνικής ρίζας του λόγου m/q . Συνεπώς, είναι μεγαλύτερος για ιόντα με μεγαλύτερη μάζα σε σχέση με ιόντα μικρότερης μάζας και ίδιας πολλαπλότητας φορτίου. Αντίστοιχα, ο χρόνος άφιξης στον ανιχνευτή για ιόντα ίδιας μάζας είναι μικρότερος για ιόντα με μεγαλύτερη πολλαπλότητα φορτίου σε σχέση με ιόντα μικρότερης πολλαπλότητας φορτίου.

Ενδεικτικά, με διαστάσεις $d \approx 2\text{cm}$ και $L \approx 25\text{cm}$ και $V = + (300 - 500)\text{Volts}$ βρίσκουμε χρόνους πτήσης, $t_{ολ}^{Mg^+} \approx 7.6 \mu\text{s}$, $t_{ολ}^{Ca^{2+}} \approx 5.4 \mu\text{s}$, $t_{ολ}^{Sr^+} \approx 1.3 \mu\text{s}$.

Η διακριτική ικανότητα του φασματογράφου μάζας ορίζεται ως $m/\Delta m$. Διαφορίζοντας την εξίσωση (2.2) προκύπτει πως

$$m/\Delta m = t/\Delta t$$

όπου Δt είναι το διπλάσιο του χρονικού εύρους της φασματικής κορυφής (FWHM). Οι παράγοντες που επηρεάζουν τη διακριτική ικανότητα είναι η διασπορά στις αρχικές θέσεις των ιόντων Δx , οι αρχικές κινητικές ενέργειες των ιόντων κυρίως λόγω αρχικής θερμικής κίνησης των ατόμων και τα φορτία χώρου που δημιουργούνται κατά την αλληλεπίδραση

Πειραματικό μέρος

ατόμων – ακτινοβολίας. Η διακριτική ικανότητα του συστήματός μας που προκύπτει είναι $R \approx 117$ για το $^{24}\text{Mg}^+$, $R \approx 176$ για το $^{40}\text{Ca}^+$ και $R \approx 219$ για το $^{88}\text{Sr}^+$.

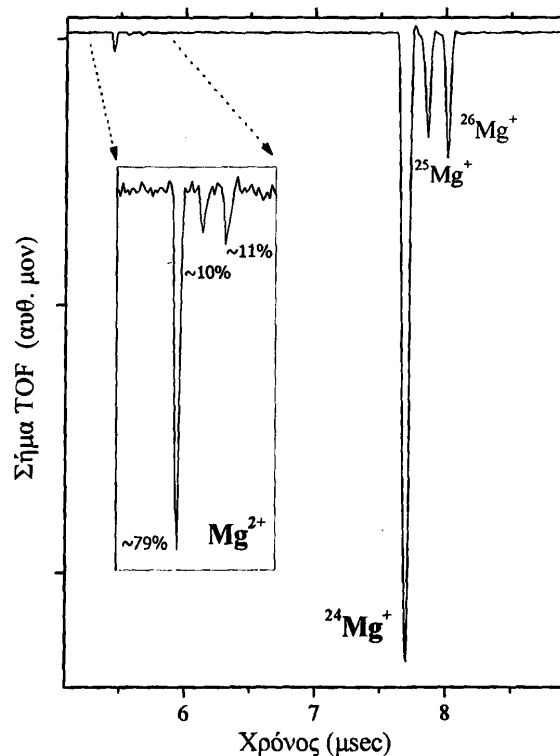
Ο φασματογράφος μάζας τύπου χρόνου-πτήσης είναι ικανός να διαχωρίσει όλα τα απλά και διπλά ιονισμένα ισότοπα του Μαγνησίου $^{24,25,26}\text{Mg}^+$, $^{24,25,26}\text{Mg}^{2+}$, καθώς και τα ισότοπα του Ασβεστίου και του Στροντίου που βρίσκονται σε φυσική αφθονία μεγαλύτερη του 1%, $^{40,42,44}\text{Ca}^+$ - $^{40,42,44}\text{Ca}^{2+}$, $^{86,87,88}\text{Sr}^+$ - $^{86,87,88}\text{Sr}^{2+}$. Το σήμα της εξόδου του ανιχνευτικού συστήματος (Σχ. 2.1), για ένα συγκεκριμένο ιόν, παρακολουθείται μέσω ψηφιακού παλμογράφου (LeCroy 9310) και οδηγείται για επεξεργασία σε ένα ολοκληρωτικό ενισχυτή με πύλη (Stanford Research Systems SR 250). Τέλος, το επεξεργασμένο σήμα καταλήγει σε ένα καταγραφικό χαρτιού (Yokogawa LR 4120) και σε ένα προσωπικό υπολογιστή όπου και αποθηκεύονται τα δεδομένα σε ηλεκτρονική μορφή. Τα φαινόμενα που οφείλονται στα φορτία χώρου στην περιοχή χαμηλής ατομικής πυκνότητας (10^8 άτομα/cm³) όπου και καταγράφονται οι πειραματικές μετρήσεις θεωρούνται ασθενή. Παρ' όλα αυτά δεν είναι εντελώς αμελητέα όπως αποδεικνύεται από την μικρή διαπλάτυνση στο πλάτος της κορυφής A^+ (όπου A: Mg, Ca, Sr) στο σύστημα TOF, με την αύξηση της ενέργειας του παλμού laser. Από την άλλη πλευρά όμως περαιτέρω μείωση της ατομικής πυκνότητας έχει ως αποτέλεσμα πολύ μικρά επίπεδα σήματος A^{2+} .

2.2.2.1 Μαγνήσιο

Έπειτα από κάθε νέα γέμιση του φούρνου με Mg, στο σήμα TOF εμφανίζεται μια μικρή κορυφή, που οφείλεται στη παρουσία απλά φορτισμένων ιόντων ^{23}Na στο χώρο αλληλεπίδρασης, η οποία διατηρείται – μειωμένη – για περίπου δύο ημέρες λειτουργίας του πειράματος ώσπου και τελικά εξαφανίζεται. Όλες οι μετρήσεις που παρουσιάζονται στην εργασία αυτή καταγράφονται υπό συνθήκες έλλειψης $^{23}\text{Na}^+$. Ωστόσο, τα φάσματα μάζας του TOF δείχνουν μια μικρή επιπρόσθετη ύπαρξη ιόντων H^+ και $^{12}\text{C}^+$, πιθανή προέλευση των οποίων ίσως είναι τα ζεστά μέρη του θαλάμου ή υδρογονανθράκων που βρίσκονται στην περιοχή αλληλεπίδρασης. Πιο σημαντική είναι η παρουσία των απλά φορτισμένων ιόντων άνθρακα διότι έχουν τον ίδιο λόγο μάζας-προς-φορτίο με το κυριότερο ισότοπο $^{24}\text{Mg}^{2+}$ και επομένως είναι αναγκαία η λήψη μετρήσεων για τον προσδιορισμό της συνεισφοράς τους στο σήμα των διπλά φορτισμένων ιόντων Mg, συνεισφορά η οποία θα πρέπει είτε να εξαλειφθεί είτε τουλάχιστον να υπολογιστεί. Πρώτα, καταγράφεται η εξάρτηση του σήματος του $^{12}\text{C}^+$



συναρτήσει του μήκους κύματος του laser κάτω υπό συνθήκες όπου δεν ανιχνεύονται απλά και διπλά φορτισμένα ιόντα μαγνησίου. Το φάσμα που καταγράφεται δεν παρουσιάζει δομή και αποτελείται από ένα σταθερό υπόβαθρο. Δεύτερον, σημειώνεται ότι η λειτουργία της παγίδας αζώτου εξαλείφει τα σήματα H^+ και $^{12}C^+$ σε χαμηλές θερμοκρασίες ενώ τα μειώνει σημαντικά στις υψηλότερες στις οποίες καταγράφονται τα πειραματικά φάσματα που παρουσιάζονται στη διατριβή αυτή. Τρίτον, παρατηρείται ότι κάτω από πολλές και διαφορετικές συνθήκες απουσίας Mg^+-Mg^{2+} ο λόγος H^+/C^+ είναι πάντα ~ 0.6 . Το δεδομένο αυτό οδηγεί στην εκτίμηση της ποσότητας του $^{12}C^+$ που εμφανίζεται στα φάσματα του TOF με λόγο $m/q = 12$. Η συνεισφορά βρέθηκε να είναι μικρότερη από 3%. Παρ' όλα αυτά, οι μετρήσεις της γραμμής που αντιστοιχεί στο $^{24}Mg^{2+}$ διορθώθηκαν με αυτόν τον παράγοντα. Από την άλλη πλευρά δε χρειάζεται καμία διόρθωση για την κορυφή που αντιστοιχεί στο $^{25}Mg^{2+}$ ισότοπο της οποίας ο λόγος m/q είναι ίσος με 12.5, τιμή η οποία δεν αντιστοιχεί σε κανένα φυσικό στοιχείο μιας και δεν υπάρχει στοιχείο με μάζα ημιακέραιο αριθμό. Πέραν τούτου, έπειτα και από την προαναφερθείσα μικρή διόρθωση τα τρία ισότοπα $^{24,25,26}Mg^{2+}$ (όπως επίσης και τα $^{24,25,26}Mg^+$) παρουσιάζουν την γνωστή ισοτοπική φυσική αφθονία (79%, 10% και 11% αντίστοιχα) [Filis 1985] όπως φαίνεται και στο Σχ.(2.3).

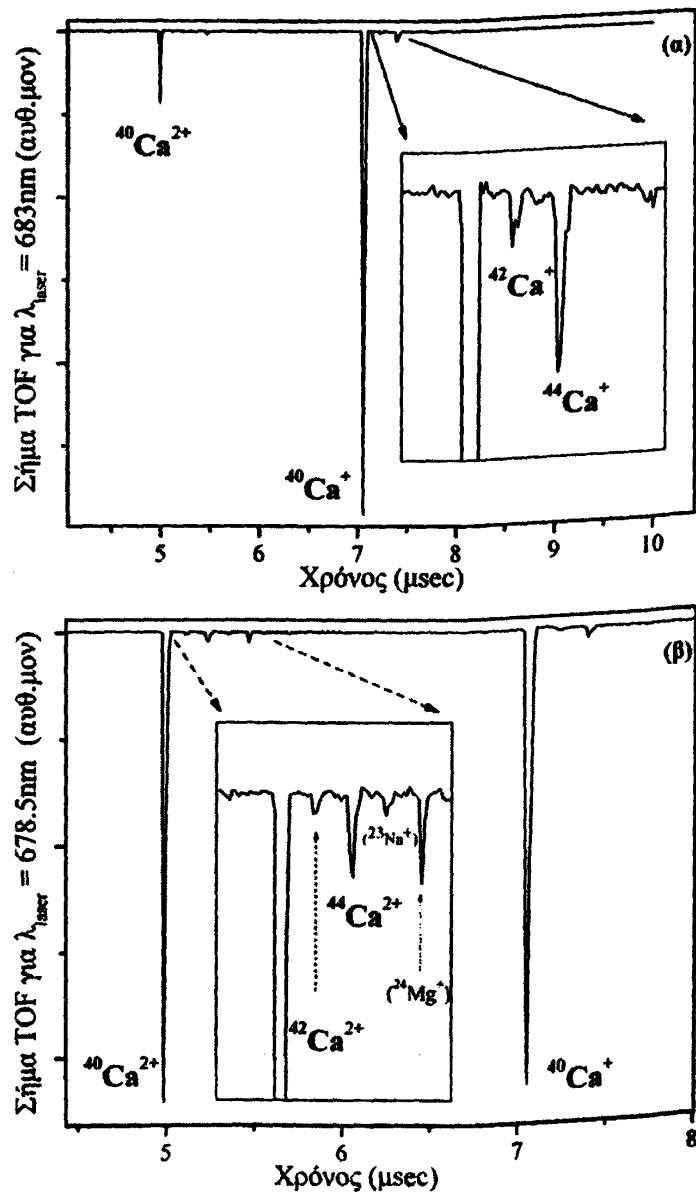


Σχήμα 2.3 Τυπικό φάσμα μάζας TOF για το Mg (υπό συνθήκες έλλειψης Na) για $\lambda_{\text{laser}} = 588\text{nm}$ και ένταση laser $I \sim 9 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$.

Πειραματικό μέρος

2.2.2.2 Ασβέστιο

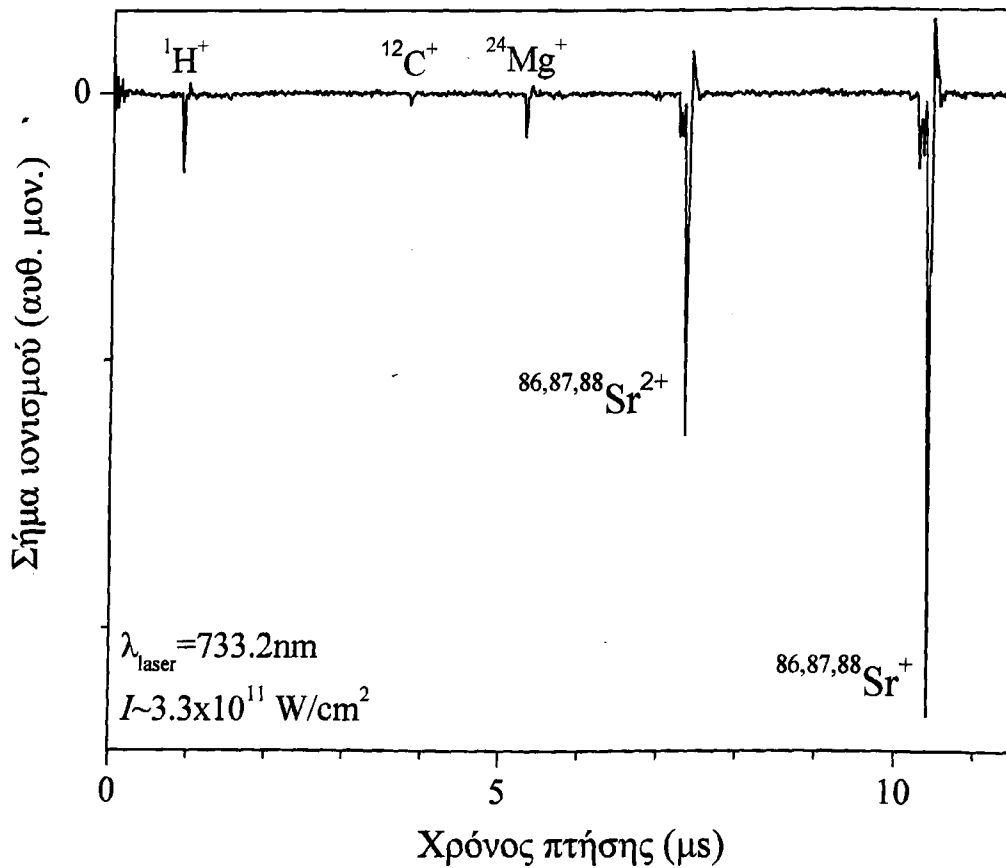
Στα φάσματα μάζας που καταγράφονται στο TOF (Σχ. 2.4 (α-β)) διακρίνονται καθαρά και στη φυσική τους αφθονία τα ισότοπα του Ασβεστίου $^{40,42,44}\text{Ca}^+$, $^{40,42,44}\text{Ca}^{2+}$ Σχ. (2.4), των οποίων οι λόγοι m/q δεν συμπίπτουν με κανενός άλλου στοιχείου, διευκολύνοντας έτσι την λήψη των πειραματικών μετρήσεων. Αξιοσημείωτη είναι η συμπεριφορά του Σχ. 2.4 (β) όπου το σήμα του απλά και διπλά φορτισμένου ιόντος για το κύριο ισότοπο ^{40}Ca παρουσιάζεται ισοδύναμο.



Σχήμα 2.4 Τυπικά φάσματα μάζας TOF για το Ca για λ_{laser} (α) 683.0nm και (β) 678.5nm και ένταση laser $I \sim 5 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$.

2.2.2.3 Στρόντιο

Έπειτα από κάθε γέμιση του φούρνου με Στρόντιο, παρουσιάζεται στα φάσματα μάζας του TOF και μια μικρή κορυφή $^{44}\text{Ca}^+$ (φυσικής αφθονίας 2.06%) η οποία αποδίδεται σε άτομα Ασβεστίου που έχουν παραμείνει στο φούρνο έπειτα από το καθάρισμά του μετά το πέρας της πειραματικής μελέτης του Ασβεστίου και πριν την εισαγωγή του δείγματος Στροντίου. Ο λόγος m/q του $^{44}\text{Ca}^+$ είναι ο ίδιος με του κυριότερου ισοτόπου $^{88}\text{Sr}^{2+}$ από την κορυφή του οποίου θα συλληθεί το σήμα ιονισμού του διπλά φορτισμένου Στροντίου. Παρατηρείται πως η κορυφή του $^{44}\text{Ca}^+$ μειώνεται συνεχώς έως ότου έπειτα από την πάροδο δύο πειραματικών ημερών εξαφανίζεται ενώ και η κορυφή $^{40}\text{Ca}^+$ που αντιστοιχεί στο κυριότερο ισότοπο του Ασβεστίου (96.97%) είναι μόλις ανιχνεύσιμη. Όλες οι μετρήσεις που παρουσιάζονται στην εργασία αυτή έχουν ληφθεί εν απουσία ατόμων Ασβεστίου με τα ισότοπα $^{86,87,88}\text{Sr}^+$, $^{86,87,88}\text{Sr}^{2+}$ να παρουσιάζουν την γνωστή φυσική τους αφθονία (9.86%, 7.02% και 82.56% αντίστοιχα) όπως παρατηρείται και στο Σχ.(2.5).



Σχήμα 2.5 Τυπικό φάσμα μάζας TOF για το Sr.

Πειραματικό μέρος

2.2.3 Κελί Ατμών

Για τα πειράματα ανίχνευσης φθορισμού (Σχ. 2.1), χρησιμοποιείται ένας κυλινδρικός θάλαμος από χαλαζία σχήματος-T ο οποίος αντλείται από μια περιστροφική αντλία και μια μοριακή turbo αντλία (Leybold TURBOVAC 151) ταχύτητας 150 λίτρων/λεπτό. Η έξοδος του laser χρωστικής εστιάζεται στο θάλαμο στον οποίο το Mg (Ca ή Sr) υφίσταται συνεχή εξάχνωση. Ο φακός με εστιακή απόσταση $f = 10\text{cm}$ (Mg) ή 11.2cm (Ca, Sr) βρίσκεται στο εσωτερικό του γυάλινου θαλάμου. Η πυκνότητα των ατμών προσδιορίζεται μετρώντας τη θερμοκρασία του κελιού μέσω ενός θερμοστοιχείου που βρίσκεται σε εξωτερική επαφή με το κέντρο του κελιού. Η επικάλυψη με άτομα Μαγνησίου (Ασβεστίου ή Στροντίου) των παραθύρων από χαλαζία αποφεύγεται με τη χρήση ενός κυλινδρικού μεταλλικού πλέγματος από ανοξείδωτο χάλυβα (100 mesh) και με την χρήση ενδιάμεσου αερίου (Helium) πίεσης $\sim 3\text{-}7\text{ torr}$. Υπό αυτές τις συνθήκες τα πειραματικά δεδομένα αναπαράγονται για δύο-τρεις πειραματικές ημέρες. Έπειτα το κελί πρέπει να καθαριστεί και να ξαναγεμίσει με νέα κομμάτια μετάλλου (Mg, Ca, Sr).

Στο κελί παραγωγής ατμών (Σχ. 2.1) ο φθορισμός συλλέγεται κάθετα σε σχέση με τη διεύθυνση της δέσμης laser και αναλύεται μέσω ενός μονοχρωμάτορα (McPherson 218). Στην πειραματική μελέτη για το άτομο του Μαγνησίου, ο μονοχρωμάτορας είναι εφοδιασμένος με φωτοπολλαπλασιαστή EMI (model RFIB214FV) εξαιρετικά χαμηλής ευαισθησίας στο ορατό φως, ενώ για τα άτομα των Ασβεστίου – Στροντίου, ο μονοχρωμάτορας είναι εφοδιασμένος με φωτοπολλαπλασιαστή EMI ευαίσθητου στο ορατό φως (model 62565). Στην περίπτωση του Μαγνησίου, για να αποφευχθεί πλήρως η είσοδος σκεδαζόμενου φωτός στο φωτοπολλαπλασιαστή τοποθετήθηκε επιπλέον μπροστά στο μονοχρωμάτορα ένα κατάλληλο φίλτρο αποκοπής συχνοτήτων του ορατού φάσματος. Το σήμα του φωτοπολλαπλασιαστή στην περίπτωση του Μαγνησίου ενισχύεται (Ortec 485 model) γιατί η απόσταση μεταξύ των δύο υπό ανίχνευση γραμμών φθορισμού είναι πολύ κοντά στα όρια της διακριτικής ικανότητας του μονοχρωμάτορα, καθιστώντας αναγκαία την χρήση πολύ μικρών σχισμών εισόδου και εξόδου του φωτός στο μονοχρωμάτορα ώστε να επιτευχθεί ο πλήρης διαχωρισμός τους. Σε κάθε περίπτωση, το σήμα φθορισμού οδηγείται σε ένα ολοκληρωτικό ενισχυτή με πύλη και η έξοδος του υπολογισμένου μέσου όρου καταγράφεται σε ένα καταγραφικό χαρτιού και αποθηκεύεται σε ένα προσωπικό υπολογιστή.

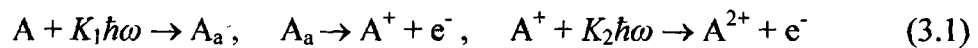


ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3. ΠΑΡΟΥΣΙΑΣΗ ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΩΝ - ΑΝΑΛΥΣΗ

3.1 Μηχανισμοί παραγωγής απλά και διπλά φορτισμένων ιόντων

Πριν προχωρήσουμε στην ανάλυση των πειραματικών δεδομένων και η θεωρητική τους ερμηνεία, κρίνεται σκόπιμο να αναφερθούν μερικά εισαγωγικά σχόλια όσον αφορά τους μηχανισμούς παραγωγής πολλαπλά φορτισμένων ιόντων και πιο συγκεκριμένα, διπλά φορτισμένων ιόντων.

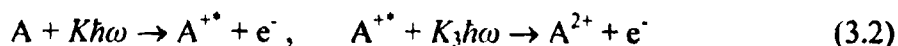
Η πρώτη διαδικασία είναι η λεγόμενη διαδικασία διαδοχικού ιονισμού κατά την οποία αρχικά μόνο ένα ηλεκτρόνιο αποσπάται από το άτομο σχηματίζοντας το απλά φορτισμένο ιόν, με το δεύτερο ηλεκτρόνιο να αποσπάται επακόλουθα με τον ιονισμό του ιόντος παράγοντας το διπλά φορτισμένο ιόν. Στην περίπτωση αυτή, το ιόν παραμένει στη βασική του κατάσταση ενώ και τα δύο ηλεκτρόνια απελευθερώνονται κατά τη διάρκεια του ίδιου παλμού laser. Το γεγονός ότι τα πολυηλεκτρονικά άτομα έχουν πλήθος από αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις πάνω από το πρώτο δυναμικό ιονισμού επηρεάζει το σχηματισμό διπλά φορτισμένων ιόντων. Έτσι μπορεί να επιτευχθεί η συντονιστική διέγερση μιας αυτοϊονιζόμενης κατάστασης (A_a στο Σχ 3.1.1α). Εάν το πλάτος αυτοϊονισμού της κατάστασης αυτής είναι πολύ μεγαλύτερο από το πλάτος ιονισμού της, τότε θα αποδιεγερθεί μέσω αυτοϊονισμού, οδηγώντας στο σχηματισμό ιόντων στη βασική κατάσταση. Μια τέτοια διαδικασία απεικονίζεται από το δρόμο διέγερσης (I) του Σχ 3.1.1α.



Διπλά φορτισμένα ιόντα παράγονται και μέσω μιας διεγερμένης κατάστασης του απλά φορτισμένου ιόντος A^{+*} . Ένα ιόν σε μια διεγερμένη του κατάσταση μπορεί να δημιουργηθεί από τον ιονισμό του ατόμου στην περίπτωση όπου η ενέργεια που απορροφάται από το άτομο (σε ένα εξωτερικό πεδίο laser) είναι πολύ μεγαλύτερη από το δυναμικό ιονισμού του ατόμου, με την περίσσεια ενέργειας $\Delta E = K\hbar\omega - E_i$ να μην μετατρέπεται όλη σε κινητική ενέργεια του ενός ηλεκτρονίου αλλά μέρος της να μεταφέρεται και στο ιόν. Σαν κανόνας, μια μεγάλη ενέργεια ΔE – σε σχέση με το δυναμικό ιονισμού – μπορεί να πραγματοποιηθεί με την απορρόφηση φωτονίων μέσα στο ενεργειακό συνεχές. Στην περίπτωση αυτή ένα άτομο απορροφά $K (>K_1)$ φωτόνια, με τον ελάχιστο αναγκαίο αριθμό που απαιτείται για να ιονιστεί

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

το άτομο να δίνεται από $\langle E_i/\hbar\omega + 1 \rangle$, όπου E_i είναι η ενέργεια ιονισμού του ατόμου. Μια τέτοια διαδικασία περιγράφεται από το δρόμο διέγερσης (II) του Σχ 3.1.1α



Πρέπει να σημειωθεί ότι το πρώτο βήμα της διαδικασίας αυτής, κατά την οποία δύο ηλεκτρόνια που έχουν απορροφήσει $K (>K_1)$ φωτόνια και έχουν αποκτήσει κινητικές ενέργειες $K\hbar\omega - E_i \approx (K - K_1)\hbar\omega$, έχει ως αποτέλεσμα τη δημιουργία πληθυσμού σε μια διεγερμένη ενεργειακή κατάσταση του ιόντος (A^{*+}) όταν ένα από αυτά τα δύο ηλεκτρόνια αποδεσμευτεί. Η αλληλεπίδραση Coulomb μεταξύ των δύο ηλεκτρονίων είναι ενεργή σε όλο το πρώτο βήμα της αντίδρασης (3.2). Αυτό σημαίνει ότι από την αρχή λαμβάνει χώρα η διέγερση των δύο ηλεκτρονίων η οποία ακολουθείται από την μετάβαση του πρώτου ηλεκτρονίου στο συνεχές και τη μετάβαση του δεύτερου ηλεκτρονίου σε μια διακριτή διεγερμένη ενεργειακή κατάσταση του ιόντος A^{*+} . Σε όλες τις περιπτώσεις όπου σχηματίζεται ιόν σε κάποια διεγερμένη του κατάσταση υπάρχει ένα ανταγωνιστικό κανάλι αποδιέγερσης της διεγερμένης κατάστασης προς τη βασική ιοντική κατάσταση. Οι χρόνοι ζωής των πρώτων διεγερμένων καταστάσεων του ιόντος είναι της ίδιας τάξης με τις πρώτες διεγερμένες ατομικές καταστάσεις [Radzig 1986] δηλ. $\sim 10^{-8}$ s.

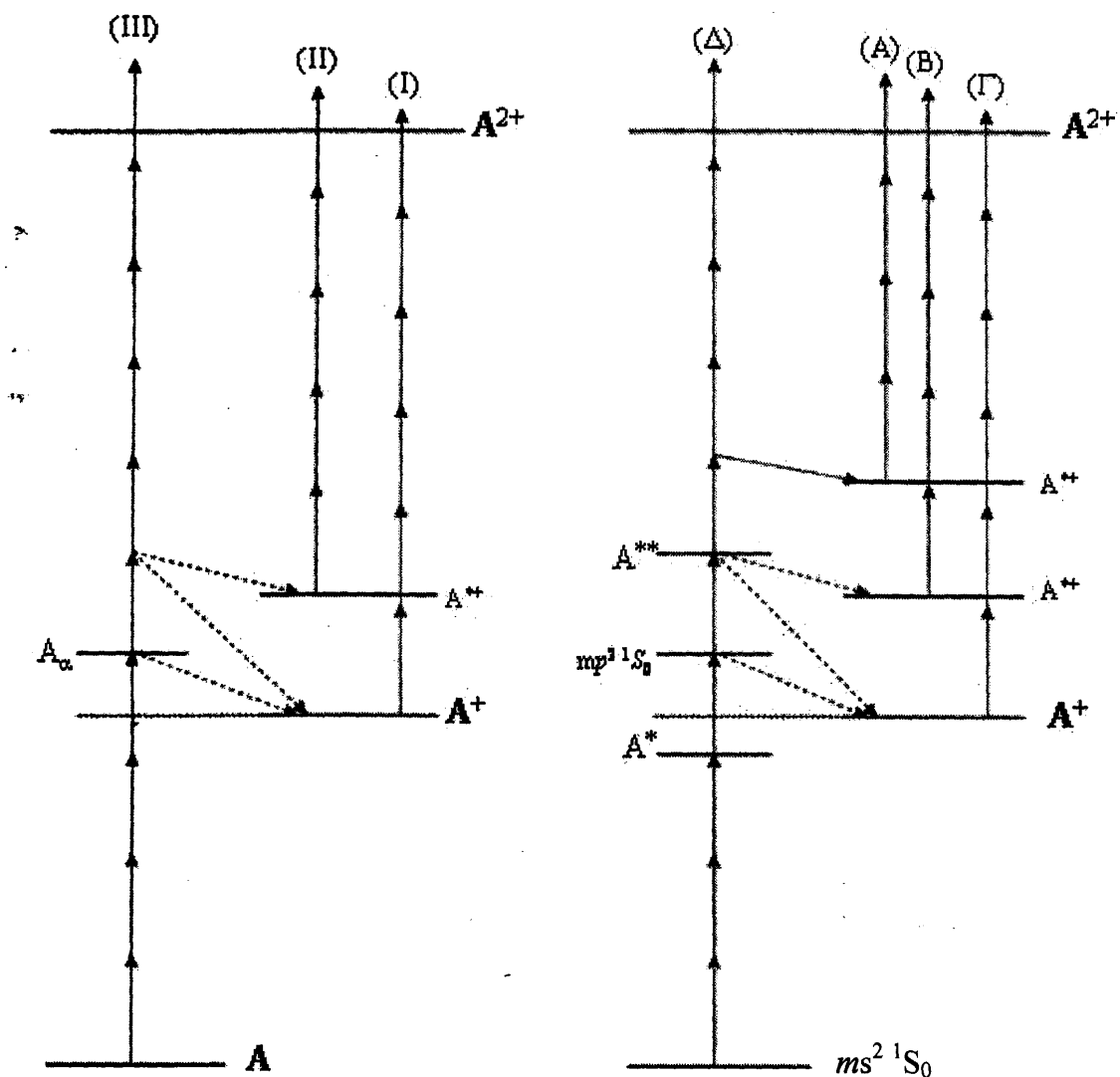
Η δεύτερη διαδικασία είναι ο αποκαλούμενος απευθείας ιονισμός όπου τα δύο ηλεκτρόνια σθένους απομακρύνονται ταυτόχρονα από το άτομο (δρόμος III στο Σχ 3.1.1(α)). Η εξίσωση που περιγράφει τη διαδικασία αυτή είναι



Στο Σχ. 3.1.1β απεικονίζεται ένα απλοποιημένο διάγραμμα των μηχανισμών διέγερσης που εμπλέκονται στην παρούσα εργασία. Το ενεργειακό διάγραμμα που αφορά την διέγερση του κάθε ατόμου (Mg, Ca, Sr) θα αναλυθεί διεξοδικότερα και ξεχωριστά στις επόμενες παραγράφους. Το βασικό κοινό τους χαρακτηριστικό είναι η τετραφωτονική διέγερση από τη $ms^2 \ ^1S_0$ βασική κατάσταση του ατόμου ($m=3,4,5$ για Mg,Ca,Sr) των $mp^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων και η μονοφωτονική σύζευξη των τελευταίων αφενός μεν με δέσμιες διεγερμένες καταστάσεις του ατόμου 1P_1 συμμετρίας (A^* στο Σχ 3.1.1(β)) αφετέρου δε με υψηλότερα διεγερμένες αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις κατάλληλης συμμετρίας (A^{**} στο Σχ. 3.1.1(β)). Οι συζεύξεις αυτές οδηγούν το σύστημα στην απορρόφηση αριθμού φωτονίων μεγαλύτερου από τον ελάχιστο αναγκαίο αριθμό που απαιτείται για να ιονιστεί το άτομο με αποτέλεσμα τη δημιουργία πληθυσμού στις πρώτες διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις και τον



περαιτέρω ιονισμό των τελευταίων προς την παραγωγή διπλά φορτισμένων ιόντων (δρόμοι A και B στο Σχ 3.1.1(β)). Πληθυσμός δημιουργείται και στην βασική κατάσταση του ιόντος από όπου διπλά φορτισμένα ιόντα μπορούν να σχηματιστούν μέσω του δρόμου Γ στο Σχ 3.1.1(β).



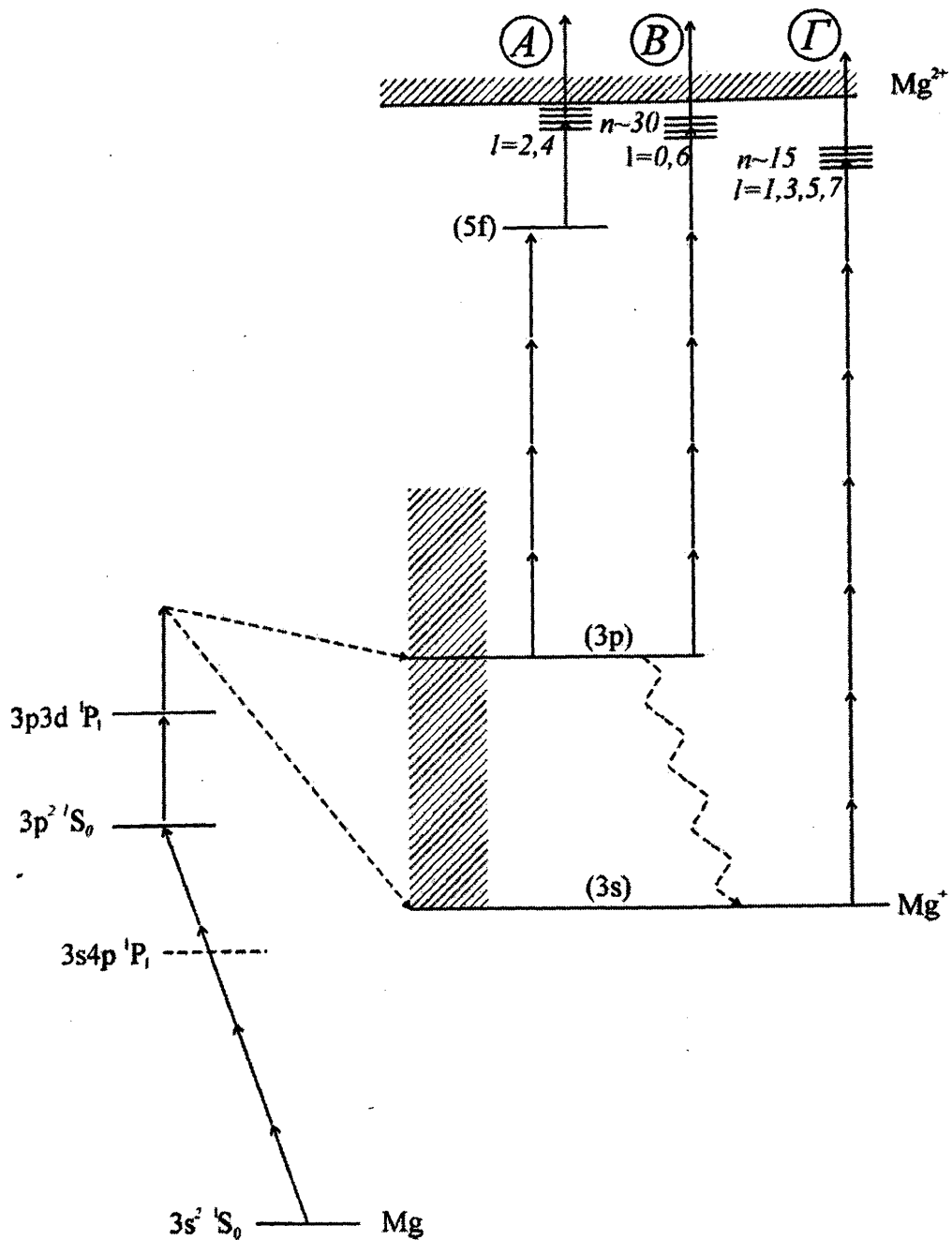
Σχήμα 3.1.1: (α) Τυπικό ενεργειακό διάγραμμα μηχανισμών παραγωγής διπλά φορτισμένων ιόντων μέσω αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων A^* , (β) Τυπικό ενεργειακό διάγραμμα επιπέδων που εμπλέκονται στην παρούσα πειραματική μελέτη

3.2 Μαγνήσιο

3.2.1 Διάγραμμα ενεργειακών επιπέδων του Μαγνησίου

Στο Σχ. 3.2.1.1 απεικονίζεται το ενεργειακό διάγραμμα επιπέδων του $Mg - Mg^+$ και οι μηχανισμοί παραγωγής απλά και διπλά φορτισμένων ιόντων για φωτόνιο μήκους κύματος $\sim 588\text{nm}$. Οι καταστάσεις που παρουσιάζονται είτε βρίσκονται κοντά σε συντονισμό με απορρόφηση συγκεκριμένου αριθμού φωτονίων είτε βρέθηκαν από το θεωρητικό μοντέλο ότι διαδραματίζουν σημαντικό ρόλο στη δυναμική της διέγερσης. Από την $3s^2 \ ^1S_0$ βασική κατάσταση του Mg με απορρόφηση τεσσάρων φωτονίων διεγείρεται η $3p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενη κατάσταση ($E \sim 68275\text{cm}^{-1}$, $\Delta E \sim 280\text{cm}^{-1}$). Η $3p^2 \ ^1S_0$ βρίσκεται σε ισχυρή επαγόμενη-από-το-πεδίο-laser μονοφωτονική σύζευξη τόσο με τη χαμηλότερα ενεργειακά $3s4p \ ^1P_1$ δέσμη κατάσταση όσο και με την υψηλότερα διπλά διεγερμένη $3p3d \ ^1P_1$ αυτοϊονιζόμενη κατάσταση. Το ατομικό σύστημα μέσω αυτού του σχήματος κλιμακωτής διέγερσης οδηγείται στην απορρόφηση δύο ATI φωτονίων. Κατά την αποδιέγερσή του δημιουργείται πληθυσμός στα πρώτα διεγερμένα $3p_{1/2,3/2}$ επίπεδα του ιόντος και στην $3s_{1/2}$ βασική κατάσταση του Mg^+ . Οι πιθανοί δρόμοι διέγερσης (A, B και Γ στο Σχ. 3.2.1.1) που οδηγούν στο διαδοχικό διπλό ιονισμό έχουν ως αρχικό επίπεδο είτε τα $3p_i$ (δρόμοι A, B) είτε τη βασική κατάσταση του ιόντος (δρόμος Γ). Ο δρόμος A αφορά διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού με το τέταρτο φωτόνιο να είναι σε συντονισμό με τα υψηλότερα ενεργειακά $5f$ επίπεδα και το πέμπτο να απορροφάται από ένα πλήθος υψηλά διεγερμένων καταστάσεων Rydberg με $24 \leq n \leq 30$ και αριθμό τροχιακής στροφορμής $l = 2$ και 4 (επίπεδα d, g). Ο δρόμος B είναι υπεύθυνος για τον σχηματισμό Mg^{2+} σε υψηλές εντάσεις και αποδίδεται σε διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού από τα ιοντικά επίπεδα $3p_i$ του Mg^+ με το πέμπτο φωτόνιο να είναι σε συντονισμό με ένα διαφορετικό πλήθος υψηλά διεγερμένων καταστάσεων Rydberg με $24 \leq n \leq 30$ και $l = 0$ και 6 (δρόμος B). Ο τρίτος πιθανός δρόμος διέγερσης, Γ, διεγείρει τον πληθυσμό της βασικής κατάστασης $3s_{1/2}$ του ιόντος μέσω διαδικασίας οκταφωτονικού ιονισμού με το έβδομο φωτόνιο σε συντονισμό με ένα πλήθος υψηλά διεγερμένων καταστάσεων Rydberg με κύριο κβαντικό αριθμό $n \sim 15$ και αριθμό τροχιακής στροφορμής $l = 1, 3, 5, 7$.





Σχήμα 3.2.1.1: Ενεργειακό διάγραμμα επιπέδων Mg – Mg⁺ και μηχανισμοί παραγωγής διπλά φορτισμένων ιόντων (δρόμοι A, B και Γ) για φωτόνιο μήκους κύματος ~588.0nm.

3.2.2 Θεωρητικό μοντέλο για απλό και διπλό ιονισμό του Mg

Για να ερμηνευτούν τα πειραματικά δεδομένα αναπτύχθηκε θεωρητικό μοντέλο, με επαρκή λεπτομέρεια ώστε να περιγράψει τη δυναμική του ατόμου του Mg και του ιόντος του Mg⁺ όταν ακτινοβολούνται από παλμούς laser. Το σύνολο των δυναμικών εξισώσεων, που



Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

φαίνεται παρακάτω, συνδυάζει έξι εξισώσεις [Εξ. (1) - (6)], που αφορούν στοιχεία του πίνακα πυκνότητας για το άτομο του Mg, με τρεις εξισώσεις ρυθμού για την χρονική εξέλιξη του Mg^+ [(7) - (9)]. Θα δοθεί σύντομη επεξήγηση της σημασίας των διαφόρων όρων των εξισώσεων και ποσοτική επεξήγηση των συνεισφορών τους στη δυναμική, όπου χρειάζεται, με τη βοήθεια του λεπτομερούς σχήματος διέγερσης που απεικονίζεται στο Σχ. 3.2.2.1

$$\dot{\sigma}_{11} = -(\gamma_{1i}^{(4)} + \gamma_{1b}^{(4)})\sigma_{11} + 2 \operatorname{Im} \left[\Omega_{12}^{(4)} \left(1 - \frac{i}{q_2^{(4)}} \right) \sigma_{21} \right], \quad (1)$$

$$\dot{\sigma}_{22} = -\Gamma_2 \sigma_{22} - 2 \operatorname{Im} \left[\Omega_{12}^{(4)} \left(1 + \frac{i}{q_2^{(4)}} \right) \sigma_{21} - \Omega_{23}^{(1)} \sigma_{32} \right], \quad (2)$$

$$\dot{\sigma}_{33} = -(\gamma_{3i}^{(1)} + \Gamma_3) \sigma_{33} - 2 \operatorname{Im} [\Omega_{23}^{(1)} \sigma_{32}], \quad (3)$$

$$\dot{\sigma}_{21} = \left(i(\Delta_1 + S_1) - \frac{1}{2}(\gamma_{1i}^{(4)} + \gamma_{1b}^{(4)} + \Gamma_2) \right) \sigma_{21} - \quad (4)$$

$$i\Omega_{12}^{(4)} \left[\left(1 - \frac{i}{q_2^{(4)}} \right) \sigma_{11} - \left(1 + \frac{i}{q_2^{(4)}} \right) \sigma_{22} \right] - i\Omega_{23}^{(1)} \sigma_{31},$$

$$\dot{\sigma}_{31} = \left(i(\Delta_1 + S_1 + \Delta_2) - \frac{1}{2}(\gamma_{1i}^{(4)} + \gamma_{1b}^{(4)} + \gamma_{3i}^{(1)} + \Gamma_3) \right) \sigma_{31} - \quad (5)$$

$$i\Omega_{12}^{(4)} \left(1 + \frac{i}{q_2^{(4)}} \right) \sigma_{32} - i\Omega_{23}^{(1)} \sigma_{21},$$

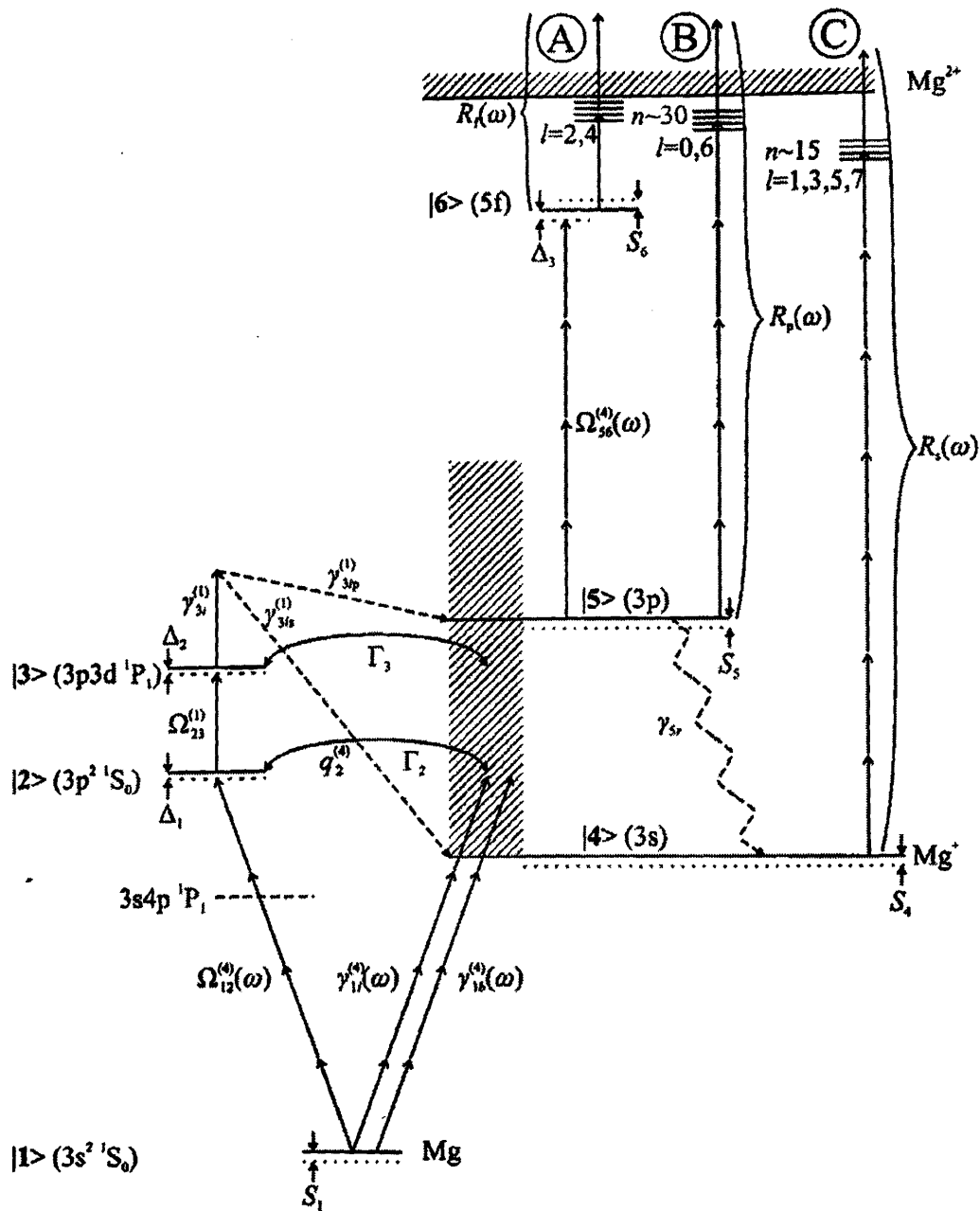
$$\dot{\sigma}_{32} = \left(i\Delta_2 - \frac{1}{2}(\gamma_{3i}^{(1)} + \Gamma_3 + \Gamma_2) \right) \sigma_{32} + i\Omega_{12}^{(4)} \left(1 + \frac{i}{q_2^{(4)}} \right) \sigma_{31} - i\Omega_{23}^{(1)} (\sigma_{22} - \sigma_{33}), \quad (6)$$

$$\dot{\sigma}_{44} = (\gamma_{1i}^{(4)} + \gamma_{1b}^{(4)})\sigma_{11} + \Gamma_2 \sigma_{22} + (\Gamma_3 + \gamma_{3i}^{(1)})\sigma_{33} + 4 \frac{\Omega_{12}^{(4)}}{q_2^{(4)}} \operatorname{Re}(\sigma_{21}) + \gamma_{5r} \sigma_{55} - R_s \sigma_{44}, \quad (7)$$

$$\dot{\sigma}_{55} = \gamma_{3ip}^{(1)} \sigma_{33} - (\gamma_{5r} + R_s + \Omega_{56}^{(4)}) \sigma_{55}, \quad (8)$$

$$\dot{\sigma}_{66} = \Omega_{56}^{(4)} \sigma_{55} - R_f \sigma_{66}, \quad (9)$$





Σχήμα 3.2.2.1: Απλοποιημένο ενεργειακό διάγραμμα του Mg (όχι υπό κλίμακα), απεικονίζοντας τις ατομικές και ιοντικές καταστάσεις και τις παραμέτρους που συμπεριλαμβάνονται στο θεωρητικό μοντέλο. Τα σύμβολα επεξηγούνται στο κείμενο.

Οι εξισώσεις (1) - (6) είναι οι εξισώσεις πίνακα πυκνότητας που κυβερνούν την χρονική εξέλιξη των καταστάσεων $|1\rangle = |3s^2 \ ^1S_0\rangle$, $|2\rangle = |3p^2 \ ^1S_0\rangle$ και $|3\rangle = |3p3d \ ^1P_1\rangle$ του Mg υπό την επίδραση του πεδίου laser του οποίου η ένταση δίνεται από την $I(t) = I_{\max} f(t)$. Το σχήμα του παλμού θεωρείται ότι έχει την μορφή $f(t) = \sec h^2(1.76t / \tau_l)$, με $\tau_l = 5\text{ns}$ να είναι το FWHM (Full Width at Half Maximum), ή ισοδύναμα, η διάρκεια του παλμού. Οι

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

εξισώσεις (1) – (3) περιγράφουν τη χρονική εξέλιξη των πληθυσμών των καταστάσεων αυτών ενώ οι υπόλοιπες αναφέρονται στα αντίστοιχα μη-διαγώνια στοιχεία του πίνακα πυκνότητας. Οι καταστάσεις $|2\rangle$ και $|3\rangle$ είναι και οι δύο αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις (AK), με την πρώτη να αποδιεγείρεται στο εκφυλισμένο συνεχές $3ses\ ^1S_0$ ενώ η τελευταία στο $3sep\ ^1P_1$. Τα πλάτη αυτοϊονισμού τους συμβολίζονται με Γ_2 και Γ_3 αντίστοιχα (βλ. επίσης το Σχ. 3.2.2.1, με τις τιμές τους να δίνονται στον Πίνακα I).

ΠΙΝΑΚΑΣ I: Αποτελέσματα υπολογισμών για τις παραμέτρους του Mg που χρησιμοποιούνται στο μοντέλο του πίνακα πυκνότητας [Εξ. (1)-(6)]. Η ένταση I εκφράζεται σε W/cm^2 και οι μετατοπίσεις, οι συχνότητες Rabi και τα πλάτη ιονισμού σε rad/s .

S_1	Γ_2	Γ_3	$\Omega_{23}^{(1)}$	$\gamma_{3i}^{(1)}$	$\gamma_{3is}^{(1)}$	$\gamma_{3ip}^{(1)}$
$-25.3I$	5.4×10^{13}	5.4×10^{12}	$77.6I^{1/2}$	$27.673I$	$3 \times 10^{-3}I$	$27.670I$
λ (nm)	$\Omega_{12}^{(4)}/I^A$	$\gamma_{1i}^{(4)}/I^A$	$\gamma_{1b}^{(4)}/I^A$			
584.5	4.0×10^{-13}	3.7×10^{-40}	5.1×10^{-39}			
587.5	5.4×10^{-13}	6.2×10^{-40}	7.1×10^{-39}			
590.0	6.6×10^{-13}	8.9×10^{-40}	1.0×10^{-39}			
592.5	6.6×10^{-13}	2.2×10^{-40}	1.5×10^{-39}			
595.0	9.4×10^{-13}	3.8×10^{-40}	2.6×10^{-39}			

Οι συντονισμοί αναπαρίστανται ως ημιδέσμιες καταστάσεις εμπεδωμένες στο γειτονικό εκφυλισμένο συνεχές [Lambropoulos 1981] και η αναπαράσταση αυτή οδηγεί φυσιολογικά στην παραγωγή των θέσεων τους, των πλατών αυτοϊονισμού τους, των παραμέτρων- q του Fano και των διπολικών συζεύξεων, στα πλαίσια του φορμαλισμού πίνακα πυκνότητας. Η αναπαράσταση αυτή είναι επίσης συμβατή με την προσέγγιση αλληλεπίδρασης-διατάξεων που εμπλέκεται στον υπολογισμό των παραμέτρων. Μια σύντομη περιγραφή της μεθόδου θα δοθεί παρακάτω. Η βασική κατάσταση είναι συζευγμένη με τέσσερα φωτόνια με το ημιέσμο μέρος της κατάστασης $3p^2\ ^1S_0$, με την σύζευξη να αναπαρίσταται με την τετραφωτονική συχνότητα Rabi, $\Omega_{12}^{(4)}$. Η διέγερση του εκφυλισμένου συνεχούς ($3ses\ ^1S_0$) αναπαρίσταται με $\gamma_{ii}^{(4)}$. Η συμβολή των δύο δρόμων διέγερσης εκφράζεται μέσω της τετραφωτονικής παραμέτρου- q του Fano $q_2^{(4)}$. Ο ορισμός και των τριών αυτών παραμέτρων είναι



γενικοποίηση των αντίστοιχων διφωτονικών που δίνονται στην εργασία των Karapanagioti *et al* [Karapanagioti 1996]. Οι ατομικές παράμετροι οριοθετούνται από τη γνωστή σχέση $q_2^{(4)} = 2\Omega_{12}^{(4)}(\Gamma_2\gamma_{1i}^{(4)})^{-1/2}$. Η επιπρόσθετη αποδιέγερση στο $3s4p\ ^1D_2$ συνεχές υποβάθρου συμβολίζεται με $\gamma_{1b}^{(4)}$. Η $3s4p\ ^1P_1$ δέσμια κατάσταση είναι κοντά σε τριφωτονικό συντονισμό, σε όλη την περιοχή μηκών κύματος υπό ανίχνευση της πειραματικής μας μελέτης (584 – 596 nm), με την ελάχιστη ενεργειακή απόσταση από τη συνθήκη συντονισμού (αποσυντονισμός) να είναι $\sim 1000\text{ cm}^{-1}$. Παρόλο που υπό τις μέτριες σχετικά εμπλεκόμενες εντάσεις laser η κατάσταση αυτή δεν έχει πληθυσμό, εντούτοις επιφέρει μια μη-αμελητέα εξάρτηση από το μήκος κύματος σε όλες τις πιθανότητες τετραφωτονικής διέγερσης από τη βασική κατάσταση. Έτσι, αρχικά υπολογίσαμε, για πέντε τιμές του μήκους κύματος μέσα στην περιοχή υπό διερεύνηση, τις τιμές των τετραφωτονικών διπολικών συζεύξεων (δίνονται μαζί με τις υπολογισμένες τιμές για τις συζεύξεις, στον Πίνακα I). Οι τιμές για τα υπόλοιπα μήκη κύματος στην περιοχή των 584-596nm εξάγονται με γραμμική αναγωγή στις πέντε υπολογισθείσες τιμές. Η προσέγγιση αυτή έχει χρησιμοποιηθεί με επιτυχία σε προηγούμενη μελέτη του ίδιου συστήματος, μολονότι σε λίγο διαφορετικό σχήμα διέγερσης [Karapanagioti 1996]. Ο αποσυντονισμός από τον ακριβή τετραφωτονικό συντονισμό συμβολίζεται με $\Delta = 4\omega - (\omega_2 - \omega_1)$, όπου ω_1 και ω_2 οι –απουσία πεδίου– ενεργειακές θέσεις των καταστάσεων $|1\rangle$ και $|2\rangle$ αντίστοιχα. Η μικρή αρνητική μετατόπιση AC Stark της βασικής κατάστασης, S_1 , έχει επίσης ληφθεί υπόψη, και η αριθμητική της τιμή δίνεται στον Πίνακα I.

Οι καταστάσεις $|2\rangle$ και $|3\rangle$ είναι συζευγμένες μέσω μονοφωτονικής μετάβασης και ο αντίστοιχος αποσυντονισμός είναι $\Delta = \omega - (\omega_3 - \omega_2)$. Αφού η $|3\rangle$ είναι πολύ στενή (το πλάτος αυτοϊονισμού της είναι περίπου 25 cm^{-1} , βλ. και Πίνακα I) θεωρήθηκε ως δέσμια κατάσταση όσον αφορά τη διπολική της σύζευξη με την κατάσταση $|2\rangle$, κάτι που σημαίνει ότι αγνοήθηκε κάθε σύζευξη συνεχούς-συνεχούς μεταξύ των δύο καταστάσεων [Karapanagioti 1996]. Παρόλα αυτά, το πλάτος αυτοϊονισμού της συμπεριλήφθηκε σαν ένα κανάλι αποδιέγερσης το οποίο συνεισφέρει στην παραγωγή ιόντων Mg^+ ($3s$). Επιπρόσθετα, συμπεριλήφθηκε η μονοφωτονική απορρόφηση από την $|3\rangle$ μέσω του ολικού πλάτους ιονισμού $\gamma_{3i}^{(1)}$. Το πλάτος αυτό είναι αποτέλεσμα της άθροισης των δύο συνεισφορών: $\gamma_{3is}^{(1)}$, το πλάτος ιονισμού στα $3sel\ ^1S_0$ και 1D_2 συνεχή και $\gamma_{3ip}^{(1)}$, το πλάτος ιονισμού στα $3pel\ ^1S_0$ και

¹D₂. Όλα τα κανάλια του συνεχούς που είναι επιτρεπτά σύμφωνα με τους κανόνες συμμετρίας έχουν συμπεριληφθεί στους υπολογισμούς. Από τις τιμές που αναφέρονται στον Πίνακα I εξάγεται το συμπέρασμα ότι ο ιονισμός στο 3pεl συνεχές είναι ο κυρίαρχος, επαγόμενος από laser, μηχανισμός αποδιέγερσης από την κατάσταση |3⟩. Επιπλέον, για τις υψηλότερες τιμές έντασης που επιτεύχθηκαν στα πειράματα, αυτή η ακτινοβολητική αποδιέγερση συναγωνίζεται με την αυτοϊονιζόμενη αποδιέγερση της κατάστασης |3⟩. Ο δρόμος της διέγερσης-αποδιέγερσης από την |2⟩ στα συνεχή 3pεl μέσω της |3⟩ απαιτεί την απορρόφηση δύο φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού και είναι η μόνη πηγή δημιουργίας πληθυσμού στη 3p διεγερμένη κατάσταση του Mg⁺. Αυτό είναι αποφασιστικής σημασίας για την παραγωγή του Mg²⁺, όπως θα αναλυθεί στις επόμενες παραγράφους. Θα πρέπει επίσης να σημειωθεί πως οι επαγόμενες-από-laser ενεργειακές μετατοπίσεις των καταστάσεων |2⟩ και |3⟩ σε σχέση με τις αδιατάραχτες από πεδίο θέσεις τους εξαρτώνται από την μονοφωτονική τους σύζευξη και δεν είναι αναγκαία ίδια με τις μετατοπίσεις AC Stark ή με τις ενεργειακές μετατοπίσεις λόγω της προκαλούμενης από το ισχυρό πεδίο της ακτινοβολίας ταλαντωτικής κίνησης των ηλεκτρονίων που ισοδυναμεί με την απόκτηση από αυτά μιας θετικής δυναμικής ενέργειας (ponderomotive energy).

Οι εξισώσεις (7)-(9) περιγράφουν, στα πλαίσια ενός μοντέλου εξισώσεων ρυθμού, τη χρονική εξέλιξη της πολυφωτονικής διέγερσης του Mg⁺ και τον επακόλουθο ιονισμό του για την παραγωγή του Mg²⁺. Οι ιοντικές καταστάσεις που συμπεριλαμβάνονται στο μοντέλο είναι οι |4⟩ = |3s⟩, |5⟩ = |3p⟩ και |6⟩ = |5f⟩. Οι τρεις πρώτοι όροι στο δεξί μέλος της Εξ. (7) και ο πρώτος όρος στο δεξί μέλος της Εξ. (8) είναι οι όροι που περιγράφουν την παραγωγή πληθυσμού στις 3s και 3p ιοντικές καταστάσεις αντίστοιχα, εμπεριέχοντας όλους τους μηχανισμούς αυτοϊονισμού και ακτινοβολητικής αποδιέγερσης του ουδέτερου ατόμου που παράγει τα ιόντα Mg σε οποιαδήποτε από τις δύο καταστάσεις. Η αυθόρμητη αποδιέγερση της 3p στην 3s έχει επίσης ληφθεί υπόψη μέσω του όρου γ_s , [Ansbacher 1989]. Στα πλαίσια του μοντέλου εξίσωσης ρυθμών, το οποίο υιοθετήθηκε για να απλοποιηθεί η περιγραφή της πολύπλοκης πολυφωτονικής δυναμικής του ιόντος του Mg και να καταστεί υπολογιστικά εύχρηστη, καθορίστηκαν τρεις δρόμοι διέγερσης-ιονισμού που ονομάστηκαν Α, Β και Γ (βλ. Σχ. 3.2.2.1 για μια αναλυτική γραφική περιγραφή και των τριών). Ο δρόμος Γ αντιστοιχεί στη



διέγερση της 3s βασικής ιοντικής κατάστασης, μέσω διαδικασίας οκταφωτονικού ιονισμού με επταφωτονική απορρόφηση κοντά σε συντονισμό. Ο αντίστοιχος ρυθμός ορίζεται ως

$$R_s(\omega) = \sum_{n'l'} \left[\Omega_{s \rightarrow n'l'}^{(7)} (\Delta_{s \rightarrow n'l'} = 0) \right]^2 \frac{\frac{1}{2} \gamma_{n'l'}^{(1)}}{(\Delta_{s \rightarrow n'l'} + S_4 - S_{pond})^2 + \frac{1}{4} (\gamma_{n'l'}^{(1)})^2}$$

και υπεισέρχεται στον τελευταίο όρο στο δεξί μέλος της Εξ. (7). Είναι το άθροισμα 20 όρων, με τον καθένα από αυτούς να έχει την τυπική μορφή μιας εξίσωσης ρυθμού από μια δέσμια αρχική κατάσταση (την 3s στην προκειμένη περίπτωση) σε μια μετατοπισμένη ενεργειακά λόγω φαινομένου AC Stark τελική κατάσταση ιονισμού (οποιαδήποτε από το σετ των 20, δηλωμένες ως $n'l''$) [Dai 1986]. Οι παράμετροι που είναι αναγκαίες για να καθορισθεί ο ρυθμός είναι η επταφωτονική συχνότητα Rabi $\Omega_{s \rightarrow n'l'}^{(7)} (\Delta_{s \rightarrow n'l'} = 0)$ στην κατάσταση $n'l''$, το πλάτος ιονισμού, $\gamma_{n'l'}^{(1)}$, και μετατόπιση λόγω ενέργειας ταλάντωσης πεδίου, S_{pond} , της κατάστασης αυτής, ο αποσυντονισμός της από τον επταφωτονικό συντονισμό, $\Delta_{s \rightarrow n'l'} = 7\omega - (\omega_{n'l'} - \omega_{3s})$, και η μετατόπιση AC Stark S_4 , της 3s. Οι υπολογισμένες τιμές των παραμέτρων αυτών (με την εξαίρεση της μετατόπισης λόγω ενέργειας ταλάντωσης πεδίου) δίνονται στον Πίνακα II.

Η μετατόπιση λόγω ενέργειας ταλάντωσης πεδίου είναι η ίδια για όλες τις υψηλά διεγερμένες Rydberg καταστάσεις $n'l''$ ($12 < n'' < 16$, $l'' = 1, 3, 5, 7$) που συμπεριλαμβάνονται στον υπολογισμό για τον ρυθμό R_s [van Druten 1994]. Οι καταστάσεις αυτές επιλέχθηκαν επειδή για τα μήκη κύματος και εντάσεις που χρησιμοποιούνται στα πειράματα, μετατοπίζονται εντός και εκτός του επταφωτονικού συντονισμού κατά τη διάρκεια του παλμού και γι' αυτό θεωρούνται ότι είναι αυτές που συνεισφέρουν περισσότερο στο σήμα διπλού ιονισμού. Για να εφαρμοστεί αυτό το κριτήριο επιλογής των καταστάσεων, έχουν ληφθεί υπόψη τόσο η μετατόπιση AC Stark της 3s βασικής κατάστασης του ιόντος όσο και η μετατόπιση λόγω ενέργειας ταλάντωσης πεδίου των καταστάσεων Rydberg. Οι δρόμοι B και A, ξεκινούν και οι δύο από τη διεγερμένη κατάσταση 3p του Mg^+ . Ο δρόμος B είναι μια διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού με το πέμπτο φωτόνιο κοντά σε συντονισμό ενώ ο δρόμος A είναι διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού μέσω τετραφωτονικών μεταβάσεων σε συντονισμό με τις 5f και ομάδας καταστάσεων Rydberg που διεγείρονται με ένα φωτόνιο κοντά σε συντονισμό από την 5f.

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

Για τον υπολογισμό του ρυθμού $R_p(\omega)$ (που αντιστοιχεί στο δρόμο B) επιλέχθηκε αριθμός καταστάσεων συμμετρίας $l = 0, 6$ (δίνονται στην υποσημείωση γ του Πίνακα II) που προσεγγίζονται με πέντε φωτόνια από την $3p$ οι οποίες μετατοπίζονται μέσω του πενταφωτονικού συντονισμού περίπου στο μέγιστο της έντασης του παλμού για τις υψηλότερες εμπλεκόμενες πειραματικές εντάσεις ($9 \times 10^{11} \text{ W / cm}^2$). Ο ρυθμός αυτός εκφράζεται ως

$$R_p(\omega) = 2 \sum_{nl} \frac{[\Omega_{p \rightarrow nl}^{(5)}(\omega)]^2}{\gamma_{nl}}$$

ΠΙΝΑΚΑΣ II. Υπολογισμένες παράμετροι του Mg^+ που χρησιμοποιήθηκαν στο μοντέλο εξίσωσης ρυθμών [εξ. (7) – (9)]. Η ένταση I εκφράζεται σε W/cm^2 ενώ οι ενεργειακές μετατοπίσεις, οι συχνότητες R_{nl} , οι ακτινοβολητικοί και οι ρυθμοί ιονισμού σε rad/s .

		Mg^+					
S_4	S_5	$S_6(\omega)^a$	$\Omega_{36}^{(4)}(\Delta_3=0)$	γ_{3p}^b			
-79.0I	-10.3I	259.7I → -3.2I	$-28.8 \times 10^{-13}I^2$	2.857×10^8			
λ (nm)	R_p/I^c	$\pi^2 I^d$	$R_5(\omega)$ $\Omega_{5 \rightarrow 3p}^{(7)}(\Delta_2 \rightarrow \omega_{3p} = 0)/I^{7/2}$	$\gamma_{3p}^{(1)}/I$	$n^e I^d$	$R_f(\omega)$ $\Omega_{f \rightarrow n}^{(1)}(\Delta_f \rightarrow n^e = 0)/I^{1/2}$	$\gamma_{n,l}^{(1)}/I$
584.5	2.0×10^{-38}	12p	-2.7×10^{-33}	3.79	24d	3.7×10^6	0.78
587.5	1.2×10^{-38}	12f	1.0×10^{-33}	4.54	24g	10.3×10^6	0.32
590.0	3.4×10^{-39}	12h	-1.2×10^{-33}	1.15	25d	-3.5×10^6	0.69
592.5	1.9×10^{-39}	12k	-7.3×10^{-36}	8.02	25g	-9.0×10^6	0.28
595.0	4.5×10^{-40}	13p	2.8×10^{-33}	2.90	26d	3.2×10^6	0.61
		13f	1.2×10^{-33}	3.54	26g	7.9×10^6	0.25
		13h	1.3×10^{-33}	9.17	27d	-3.0×10^6	0.55
		13k	7.1×10^{-36}	7.03	27g	-7.0×10^6	0.22
		14p	-3.0×10^{-33}	2.24	28d	2.9×10^6	0.49
		14f	-1.5×10^{-33}	2.84	28g	6.1×10^6	0.20
		14h	1.0×10^{-33}	0.74	29d	-2.7×10^6	0.44
		14k	-6.9×10^{-36}	0.06	29g	-5.3×10^6	0.18
		15p	3.0×10^{-33}	1.84	30d	2.6×10^6	0.40
		15f	1.8×10^{-33}	2.30	30g	4.6×10^6	0.16
		15h	6.8×10^{-34}	0.61			
		15k	6.6×10^{-36}	0.05			
		16p	-3.6×10^{-33}	1.50			
		16f	-2.19×10^{-33}	1.89			
		16h	-7.0×10^{-34}	0.50			
		16k	6.3×10^{-36}	0.05			

^a Δίνονται οι μέγιστες και οι ελάχιστες τιμές. Το $S_6(\omega)^a$ είναι υπολογισμένο για 10 διαφορετικά μήκη κύματος στο εύρος 584.5-595.0 nm.

^b Υπολογισμένα από τις πειραματικές τιμές χρόνου ζωής [Ansbacher 1989]

^c Υπολογισμένα για $l=18, 24, 52, (l=0)$ και $l=17, 23, 51, (l=6)$ καταστάσεις που αντιστοιχούν σε συντονιστική διέγερση [Εξ. (11)] για 595, 590 και 585 nm αντίστοιχα.

^d Οι πειραματικές θέσεις των ενεργειακών επιπέδων είναι από την αναφορ. [NIST Mg II].

Για διαφορετικά μήκη κύματος στην υπό ανίχνευση πειραματική περιοχή, πάρα πολλά διαφορετικά μέρη των αντίστοιχων σειρών Rydberg εκπληρώνουν την συνθήκη συντονισμού



καθιστώντας τους υπολογισμούς ιδιαίτερα απαιτητικούς. Για το λόγο αυτό περιορίστηκαν σε πέντε συγκεκριμένες τιμές μήκους κύματος (που επίσης δίνονται στον Πίνακα II). Για τα άλλα μήκη κύματος οι τιμές του $R_p(\omega)$ εξάγονται με γραμμική αναγωγή στις πιο πάνω πέντε υπολογισμένες τιμές και ακολούθως χρησιμοποιούνται στο χρονοεξαρτώμενο υπολογισμό. Αυτός ο εξαρτώμενος από το μήκος κύματος ρυθμός διέγερσης θα πρέπει να θεωρηθεί σα μια μέση ποσότητα η οποία λαμβάνει υπόψη τις πιο σημαντικές συνεισφορές στην παραγωγή διπλού ιόντος μέσω του δρόμου B. Ο δρόμος A, εκφράζεται σε δύο βήματα. Πρώτα, η 5f είναι κοντά σε συντονισμό για διέγερση από την 3p με το ρυθμό να δίνεται από την παρακάτω έκφραση:

$$\Omega_{56}^{(4)}(\omega) = [\Omega_{56}^{(4)}(\Delta_3 = 0)]^2 \frac{\frac{1}{2} R_f(\omega)}{[\Delta_3 + S_5 - S_6(\omega)]^2 + \frac{1}{4} [R_f(\omega)]^2},$$

όπου $\Omega_{56}^{(4)}(\Delta_3 = 0)$ είναι η τετραφωτονική συχνότητα Rabi σε συντονισμό από την 3p στην 5f (δίνεται στον Πίνακα II), $\Delta_3 = 4\omega - (\omega_{5f} - \omega_{3p})$ είναι η ελεύθερη από πεδίο μετατόπιση από το συντονισμό και S_5, S_6 είναι οι μετατοπίσεις AC Stark των 3p και 5f, αντίστοιχα. Ο υπολογισμός της S_5 είναι άμεσος και εκτελείται εφαρμόζοντας το συνήθη ορισμό αυτής της ποσότητας (βλ. παράρτημα αναφοράς [van Druten 1994]) για $\lambda=590$ nm (στο μέσο της περιοχής υπό ανίχνευση) επειδή είναι ασθενώς εξαρτώμενος από το μήκος κύματος. Ο υπολογισμός της S_6 είναι πιο περίπλοκος. Αυτή η επαγόμενη από το πεδίο laser μετατόπιση κυριαρχείται από τη μονοφωτονική κοντά σε συντονισμό σύζευξη της 5f με τις καταστάσεις Rydberg $n'l'$ ($24 < n' < 30, l' = 2, 4$). Μιας και αυτές οι καταστάσεις έχουν συμπεριληφθεί μόνο έμμεσα στην δυναμική του ιόντος, μέσω της συνεισφοράς τους στον ενεργό διφωτονικό ρυθμό ιονισμού R_f , για να ληφθεί υπόψη η συνεισφορά τους στην επαγόμενη από laser μετατόπιση της 5f, υπολογίστηκε η S_6 ως μετατόπιση AC Stark για δέκα ισαπέχουσες τιμές του μήκους κύματος που κυμαίνονταν στην περιοχή από 585 nm έως 595 nm. Με αυτόν τον τρόπο, αποκτήθηκε μια ποσότητα ισχυρά εξαρτώμενη από το μήκος κύματος (όπως μπορεί να εξαχθεί και από τις ακραίες τιμές που δίνονται στον Πίνακα II) που ακολούθως χρησιμοποιείται στο σύστημα εξισώσεων ρυθμών. Ο ρυθμός ιονισμού της 5f μέσω διφωτονικής διαδικασίας με το πρώτο φωτόνιο κοντά σε συντονισμό δίνεται από

$$R_f(\omega) = \sum_{n'l'} [\Omega_{f \rightarrow n'l'}^{(1)}(\Delta_{f \rightarrow n'l'} = 0)]^2 \times \frac{\frac{1}{2} \gamma_{n'l'}^{(1)}}{[\Delta_{f \rightarrow n'l'} + S_6(\omega) - S_{pond}]^2 + \frac{1}{4} (\gamma_{n'l'}^{(1)})^2},$$

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

όπου $\Omega_{f \rightarrow n'l}^{(1)}$ ($\Delta_{f \rightarrow n'l} = 0$) είναι η μονοφωτονική συχνότητα Rabi από την $5f$ στη $n'l'$ κατάσταση Rydberg, $\Delta_{f \rightarrow n'l} = \omega - (\omega_{n'l'} - \omega_{5f})$ είναι η αντίστοιχη αποσυντόνιση και $\gamma_{n'l}^{(1)}$ είναι το πλάτος ιονισμού της $n'l'$ κατάστασης Rydberg. Η ταυτότητα των καταστάσεων αυτών και οι τιμές των αντίστοιχων παραμέτρων τους δίνονται στον Πίνακα II. Οι καταστάσεις που συμπεριλαμβάνονται στον υπολογισμό είναι αυτές που κατά τη διάρκεια του παλμού laser είναι μετατοπισμένες λόγω ενέργειας ταλάντωσης του πεδίου λόγω μονοφωτονικού συντονισμού με τη μετατοπισμένη $5f$. Με αυτές τις παρατηρήσεις ολοκληρώνεται η παρουσίαση του συστήματος των δυναμικών εξισώσεων.

Για κάθε μήκος κύματος οι Εξ. (1)–(9) ολοκληρώνονται ταυτόχρονα ως προς το χρόνο από $t_{in} = -2 t_l$ έως $t_{fin} = 2 t_l$ με το μέγιστο του παλμού laser να αντιστοιχεί για $t = 0$. Το συνολικό σήμα Mg^+ υπολογίζεται ως $N_+ = (\sigma_{22} + \sigma_{33} + \sigma_{44} + \sigma_{55} + \sigma_{66})_{t \rightarrow \infty}$, δηλ. σαν το άθροισμα των πληθυσμών των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων και των πληθυσμών που παραμένουν στις τρεις ιοντικές καταστάσεις με το πέρας του παλμού. Το μεγάλο όριο χρόνου υποδηλώνει ότι όλος ο πληθυσμός στις αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις θα αποδιεγερθεί γρήγορα μετά το πέρας του παλμού και θα συλλεχθεί ως σήμα Mg^+ . Ομοίως, κάθε ανακατανομή πληθυσμού μεταξύ των ιοντικών καταστάσεων, εξαιτίας της αυθόρμητης αποδιέγερσης των υψηλότερα ενεργειακά καταστάσεων στη βασική κατάσταση, δε θα επηρεάσει το καταγραφόμενο σήμα του απλά φορτισμένου ιόντος. Το σήμα Mg^{2+} υπολογίζεται ως $N_{2+} = 1 - N_+ - (\sigma_{11})_{t \rightarrow \infty}$ ή εναλλακτικά και ισοδύναμα ως $N_{2+} = N_{2+}^s + N_{2+}^p + N_{2+}^f$. Η πρώτη ισότητα είναι αποτέλεσμα της προφανούς υπόθεσης ότι το σύστημα είναι κλειστό στα πλαίσια του διαδοχικής διέγερσης μοντέλου μας και ότι στο τέλος του παλμού ο πληθυσμός που δεν έχει ιονιστεί (είτε απλά είτε διπλά) θα παραμείνει στη βασική κατάσταση. Η τελευταία έκφραση έγκειται στη λογική υπόθεση ότι για τις πειραματικές εντάσεις που καταγράφεται παραγωγή διπλά φορτισμένων ιόντων, είναι κορεσμένος ο μονοφωτονικός ιονισμός από την τελευταία ομάδα καταστάσεων Rydberg που εμπλέκονται στους δρόμους A, B και Γ και άρα όταν το σύστημα διεγείρεται στη περιοχή των καταστάσεων αυτών τότε σίγουρα ιονίζεται. Συνεπώς η συνεισφορά καθενός από τους τρεις δρόμους στην απόδοση διπλού ιονισμού μπορεί να εκφραστεί ως

$$N_{2+}^f = \int_{t_l} R_f \sigma_{66} dt, \quad N_{2+}^p = \int_{t_l} R_p \sigma_{55} dt, \quad N_{2+}^s = \int_{t_l} R_s \sigma_{44} dt,$$



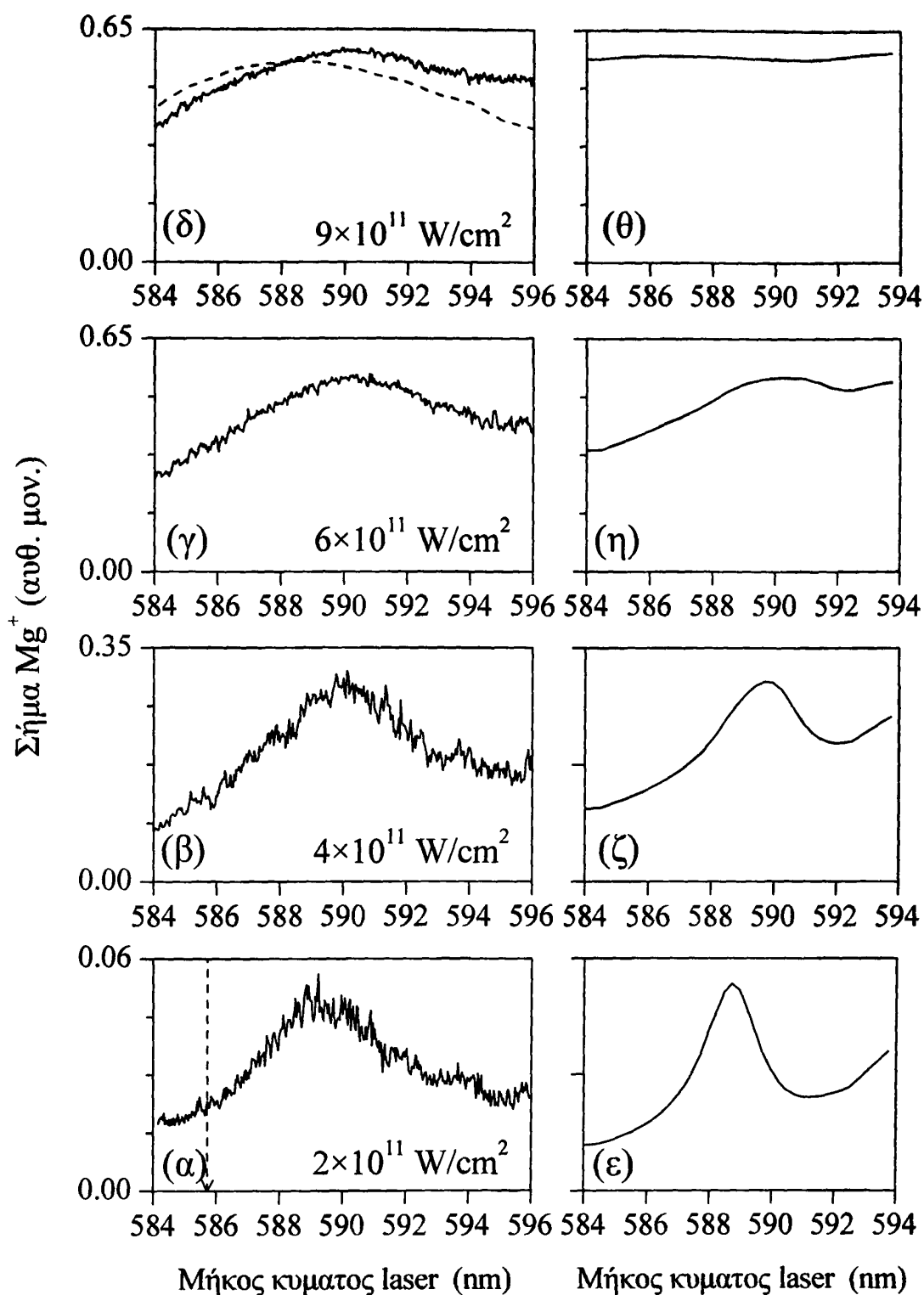
Η ολοκλήρωση εκτείνεται στο ίδιο χρονικό διάστημα όπως και η λύση της ομάδας των δυναμικών εξισώσεων. Και οι δύο εκφράσεις για τον υπολογισμό της απόδοσης του διπλού ιονισμού έχουν χρησιμοποιηθεί στο μοντέλο και έχουν επαληθευθεί αριθμητικά. Τέλος, η απόδοση φθορισμού από τα διεγερμένα επίπεδα $3p$ προς τη βασική κατάσταση $3s$ του ιόντος, που χρησιμοποιήθηκε σαν πειραματική ανίχνευση του πληθυσμού της $3p$, υπολογίστηκε ως

$$N_{fluor} = \int \gamma_{sr} \sigma_{ss} dt.$$

3.2.3 Παραγωγή ιόντων Mg^+

Στα σχήματα 3.2.3.1(α)–(δ) παρουσιάζονται χαρακτηριστικά φάσματα για το Mg^+ συναρτήσει του μήκους κύματος της ακτινοβολίας laser στην περιοχή της $3s^2 \ ^1S_0 + 4\hbar\omega \rightarrow 3p^2 \ ^1S_0$ μετάβασης, από 584nm έως 596nm, για τέσσερις εντάσεις πεδίου laser. Πιο συγκεκριμένα, το φάσμα του Σχ. 3.2.3.1(α) έχει καταγραφεί με την ελάχιστη δυνατή ένταση που μπορούσε να παραχθεί σήμα ιονισμού Mg^+ ικανό προς καταγραφή, το Σχ. 3.2.3.1(δ) έχει καταγραφεί με την μέγιστη διαθέσιμη ένταση laser υπό τις πειραματικές μας συνθήκες ενώ τα υπόλοιπα φάσματα καταγράφηκαν με ενδιάμεσες εντάσεις laser. Με το μαύρο κάθετο διακεκομμένο βέλος υποδεικνύεται η ενεργειακά αδιατάραχτη θέση της $3p^2 \ ^1S_0$ ($68\,275\text{ cm}^{-1}$, $\lambda \sim 585.7\text{ nm}$) σύμφωνα με τα διαθέσιμα φασματοσκοπικά δεδομένα [NIST Mg I, Bonnano 1986, Shao 1993] αλλά και με μετρήσεις που καταγράφηκαν από την πειραματική μας ομάδα με πειράματα διφωτονικού ιονισμού με χαμηλή ένταση laser.

Από τα πειραματικά φάσματα καθίσταται φανερή η μετατόπιση του μεγίστου της κορυφής του συντονισμού σε σχέση με την ενεργειακά αδιατάραχτη θέση της $3p^2 \ ^1S_0$ ακόμα και για τις χαμηλότερες εντάσεις laser ($2 \times 10^{11}\text{ W/cm}^2$). Όσο η ένταση της ακτινοβολίας laser αυξάνει, το μέγιστο του συντονισμού μετατοπίζεται προς μεγαλύτερα μήκη κύματος, ενώ για εντάσεις μεγαλύτερες από $\sim 5 \times 10^{11}\text{ W/cm}^2$ η μετατόπιση αυτή αποκτά την μέγιστή της τιμή. Για τις μεγαλύτερες εντάσεις laser η συνεισφορά του υποβάθρου ιονισμού γίνεται εξίσου σημαντική με το συντονιστικό σήμα οδηγώντας στη διαπλάτυνση της φασματικής γραμμής και σε φάσμα χωρίς δομή, καθαρή ένδειξη κορεσμού. Επιπλέον, είναι αξιοσημείωτη η παρατήρηση ότι το σήμα υποβάθρου είναι μεγαλύτερο στην κόκκινη πλευρά του συντονισμού (μεγαλύτερα μήκη κύματος) παρόλο που η ενέργεια του παλμού laser είναι χαμηλότερη σε αυτή την περιοχή. Το αυξημένο αυτό σήμα ιονισμού υποβάθρου οφείλεται



Σχήμα 3.2.3.1 Πειραματικά (α-δ) και αντίστοιχα θεωρητικά (ε-θ) φάσματα Mg^+ για διάφορες εντάσεις laser. Η κάθετη διακεκομμένη γραμμή στο (α) υποδεικνύει τη θέση του μήκους κύματος για την αδιατάρακτη μετάβαση $4s^2 \ ^1S_0 + 4\hbar\omega \rightarrow 5p^2 \ ^1S_0$. Στο (δ) με διακεκομμένη γραμμή έχει σχεδιαστεί η γραφική παράσταση της ενέργειας του παλμού laser ως συνάρτηση του μήκους κύματος.

στην ουρά μιας τετραφωτονικής διαδικασίας ιονισμού από την βασική κατάσταση $3s^2 \ ^1S_0$ με το τρίτο φωτόνιο να είναι κοντά-σε-συντονισμό με τη $3s4p \ ^1P_1$ δέσμια κατάσταση (49346.7cm^{-1} , $\lambda \sim 607.8 \text{ nm}$). Αγνοώντας τη μετατόπιση λόγω φαινομένων AC Stark, και για την υπό μελέτη περιοχή μηκών κύματος το τρίτο φωτόνιο βρίσκεται να απέχει ενεργειακά από συντονισμό με την δέσμια κατάσταση $3s4p \ ^1P_1$, κατά $\Delta \sim 1000 \text{ cm}^{-1}$, ενεργειακή απόσταση που θεωρείται σχετικά μεγάλη. Παράλληλα όμως η μετάβαση αυτή θεωρείται πολύ ισχυρή [Bondar 1990] και για υψηλές εντάσεις η ουρά της επηρεάζει το φάσμα ιονισμού και για μήκη κύματος πολύ μακριά από την κορυφή της. Γενικά, η σχετικά μεγάλη μετατόπιση της τετραφωτονικής μετάβασης $3s^2 \ ^1S_0 - 3p^2 \ ^1S_0$ και η μορφή των φασμάτων ιονισμού είναι σε συμφωνία με τα πειραματικά αποτελέσματα της ομάδας των van Druten *et al* [van Druten 1994] που καταγράφηκαν στην ίδια περιοχή μηκών κύματος όπως και της παρούσας εργασίας αλλά για παλμούς laser διάρκειας 1ps. Οι van Druten *et al* δεν ήταν οι πρώτοι που μελέτησαν τον απλό και διπλό ιονισμό του Mg μέσω τετραφωτονικού μονοχρωματικού ιονισμού της $3p^2 \ ^1S_0$. Πρώτοι είχαν παρουσιάσει τα αποτελέσματά τους μερικά χρόνια πριν οι Hou *et al* [Hou 1990] οι οποίοι χρησιμοποιώντας παλμούς laser διάρκειας 30ps και ανιχνεύοντας ενέργειες ηλεκτρονίων, ισχυρίστηκαν ότι παρατήρησαν απορρόφηση 5 και 6 φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού αφήνοντας ανοιχτό και πολύ πιθανό το ενδεχόμενο του απευθείας διπλού ιονισμού. Οι van Druten *et al* για να διερευνήσουν την πιθανότητα αυτή επέλεξαν τη μελέτη του ίδιου σχήματος διέγερσης, συλλέγοντας τόσο ηλεκτρόνια όσο και ιόντα, μειώνοντας όμως τη διάρκεια του παλμού laser (1ps). Παρά τις προσπάθειές τους όμως δεν στάθηκε δυνατή η επαλήθευση της απορρόφησης 5 και 6 φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού μολονότι οι εμπλεκόμενοι παλμοί laser ήταν μικρότερης διάρκειας από των Hou *et al* ευνοώντας θεωρητικά την παρατήρηση του φαινομένου. Αντίθετα, απέδωσαν με επιφύλαξη την παρατήρηση των σχετικών κορυφών στα φάσματα των Hou *et al* σε προσμίξεις Νατρίου στο χώρο αλληλεπίδρασης. Παρόμοιο παρασιτικό σήμα λόγω ύπαρξης Na παρατήρησαν και οι van Druten *et al* το οποίο τους εμπόδιζε να ποσοτικοποιήσουν τις μετρήσεις τους. Επιπλέον, το θεωρητικό μοντέλο που παρουσίασαν για την ερμηνεία της μεγάλης ενεργειακής μετατόπισης στα πειραματικά φάσματά τους της $3p^2 \ ^1S_0$ από την αδιατάραχτη θέση της λάμβανε υπόψη μόνο την επίδραση της ponderomotive ενέργειας.

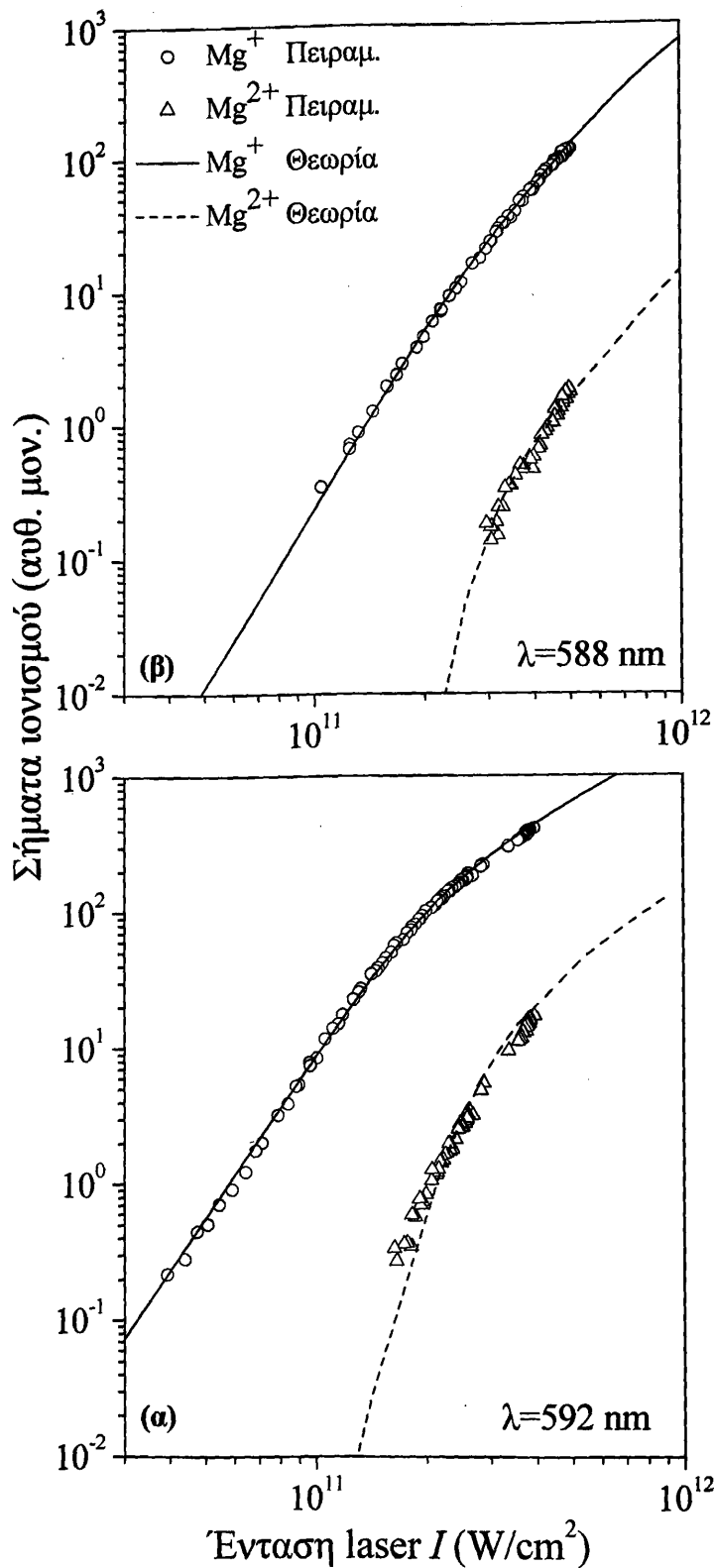
Στα Σχ. 3.2.3.1 (ε)–(θ) παρουσιάζονται τα αποτελέσματα του θεωρητικού μοντέλου, για τις αντίστοιχες εντάσεις με τα πειραματικά φάσματα. Είναι φανερό πως οι θεωρητικοί

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

υπολογισμοί αναπαράγουν με επαρκή ακρίβεια τη μεγάλη μετατόπιση της αυτοϊονιζόμενης κατάστασης $3p^2 \ ^1S_0$ (που οφείλεται στην ισχυρή της μονοφωτονική ακτινοβολητική σύζευξη με την $3p3d \ ^1P_1$) για όλες τις εντάσεις laser και την σταθεροποίησή της για τις μεγαλύτερες από αυτές όπως ακριβώς διαπιστώνεται στα πειραματικά φάσματα. Δεν μπορούμε όμως να ισχυριστούμε το ίδιο και για το εύρος ιονισμού το οποίο αναπαράγεται μόνο για τις υψηλότερες εντάσεις. Επιπρόσθετα, για τις χαμηλές εντάσεις το μοντέλο προβλέπει μεγαλύτερο σήμα υποβάθρου ιονισμού στην περιοχή των «ερυθρών» μηκών κύματος του συντονισμού σε αντίθεση με τα πειραματικά φάσματα. Αυτό συμβαίνει παρόλο που η μετάβαση σε συντονισμό $3s^2 \ ^1S_0 + 3h\omega \rightarrow 3s4p \ ^1P_1$ λαμβάνεται έμμεσα υπόψη στο θεωρητικό μοντέλο. Στις υψηλές εντάσεις όμως τα θεωρητικά φάσματα βρίσκονται σε πολύ καλή συμφωνία με τα πειραματικά. Επιπλέον, παρατηρούμε πως το θεωρητικό μοντέλο για την υψηλότερη ένταση προβλέπει το σήμα ιονισμού να είναι κορεσμένο με μια μικρή πτώση γύρω στα 591nm, γεγονός που πιθανώς αποδίδεται στην παραγωγή (γι' αυτές τις εντάσεις και μήκη κύματος) Mg^{2+} .

Στα Σχ. 3.2.3.2 (α),(β) απεικονίζεται η εξάρτηση της απόδοσης του σήματος ιονισμού του Mg^+ συναρτήσει της έντασης του πεδίου laser. Οι μετρήσεις αφορούν δύο επιλεγμένα μήκη κύματος, 588nm και 592nm. Το πρώτο μήκος κύματος είναι σχετικά κοντά στην αδιατάραχτη ενεργειακά θέση της $3p^2 \ ^1S_0$ ενώ το τελευταίο κείται κοντά στην μετατοπισμένη θέση του συντονισμού για τις μεγαλύτερες εντάσεις που επιτεύχθηκαν σε αυτή την πειραματική μελέτη. Οι μετρήσεις του Σχ. 3.2.3.2(α) καταγράφηκαν χρησιμοποιώντας φακό εστιακής απόστασης $f = 10 \text{ cm}$ ενώ αυτές του Σχ. 3.2.3.2(β) με $f=15\text{cm}$. Όπως είναι εύκολα αντιληπτό από τις γραφικές παραστάσεις η εξάρτηση του σήματος ιονισμού από την ένταση του laser ξεκινά να είναι γραμμική για σχετικά χαμηλές εντάσεις και καταλήγει να είναι μη-γραμμική (κορεσμένη) για τις μεγαλύτερες, με το σημείο αλλαγής κλίσης να υποδεικνύει την ένταση κορεσμού της μετάβασης. Η προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης I^{K_+} στις γραμμικές περιοχές των πειραματικών δεδομένων παράγει για όλα τα μήκη κύματος τάξη μη-γραμμικότητας $K_+ \approx 4$. Πιο συγκεκριμένα, για τα δεδομένα που παρουσιάζονται εδώ οι προσαρμοσμένες τιμές είναι $K_+ = 4.09 \pm 0.03$ για τα 592 nm και $K_+ = 3.98 \pm 0.03$ για τα 588 nm. Αυτή η τιμή της τάξης μη-γραμμικότητας είναι αναμενόμενη για μια διαδικασία τετραφωτονικού ιονισμού, και είναι η ίδια για όλα τα λ. Το κορεσμένο μέρος της γραφικής παράστασης δεν είναι παράλληλο προς τον άξονα της έντασης αλλά αντίθετα





Σχήμα 3.2.3.2 Πειραματική και θεωρητική γραφική παράσταση απλού και διπλού ιονισμού συναρτήσει της έντασης του laser. (a) Μήκος κύματος laser $\lambda=588\text{nm}$; συγκλίνων φακός εστιακής απόστασης $f=10\text{cm}$, (b) Μήκος κύματος laser $\lambda=592\text{nm}$; συγκλίνων φακός εστιακής απόστασης $f=15\text{cm}$

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

έχει μια κλίση ολοένα μειούμενη και περίπου ίση με 3/2. Το φαινόμενο αυτό είναι καλά μελετημένο στη βιβλιογραφία και αναμενόμενο για Γκαουσιανές δέσμες, οφείλεται δε στην αύξηση του εστιακού όγκου με την αύξηση της έντασης [Ammosov 1991]. Για να μπορέσει η θεωρία να αναπαράγει τα πειραματικά αποτελέσματα ήταν αναγκαία η χωρική ολοκλήρωση του σήματος Mg^+ που προκύπτει από το θεωρητικό υπολογισμό ως προς τον όγκο αλληλεπίδρασης. Η τάξη μη-γραμμικότητας του μη-κορεσμένου μέρους της γραφικής παράστασης είναι ανεξάρτητη της μεθόδου αυτής.

Οι χωρικά ολοκληρωμένοι ιοντικοί πληθυσμοί τότε δίνονται από

$$\langle N \rangle_{r,z} \propto \int_0^{I_{\max}} N(I) K(I, I_{\max}) dI$$

όπου η συνάρτηση

$$K(I, I_{\max}) \equiv \frac{dV(I, I_{\max})}{dI} = \frac{2I + I_{\max}}{I^2} \left(\frac{I_{\max} - I}{I} \right)^{1/2}$$

εφαρμόζεται αυστηρώς μόνο για Γκαουσιανές δέσμες laser [Gibson 1994]. Είναι φανερό πως οι θεωρητικές καμπύλες αναπαράγουν επιτυχώς τα πειραματικά ευρήματα. Η μόνη μετατροπή που χρειάστηκε να γίνει για την ταύτιση των θεωρητικών τιμών με τις πειραματικές είναι η απαραίτητη εκλογή κλίμακας για τον άξονα του σήματος ιονισμού. Όσον αφορά τον άξονα των εντάσεων, για τα δεδομένα που καταγράφηκαν με τον φακό $f = 15$ cm δε χρειάστηκε καμία μετατροπή αναλογίας. Για τα δεδομένα όμως που καταγράφηκαν με τον φακό $f = 10$ cm ο πολλαπλασιαστικός παράγοντας αναλογίας βρέθηκε να είναι ίσος με 2.8. Αυτό πρακτικά σημαίνει πως η ένταση κορεσμού I_{sat} υπολογίστηκε να είναι 2.8 φορές μεγαλύτερη από την πειραματική. Τέτοιοι παράγοντες αναλογίας όμως θεωρούνται φυσιολογικοί για πολυφωτονικές διαδικασίες ιονισμού με βάση την διεθνή βιβλιογραφία [Xenakis 1999, Karapanagioti 1996]. Εφόσον οι υπολογισμοί δεν χρειάστηκαν καμία μετατροπή για τα δεδομένα με τον $f = 15$ cm, οδηγούμαστε στο συμπέρασμα πως υπεύθυνα για το αποτέλεσμα αυτό που προκύπτει είναι τα φαινόμενα συγκέντρωσης φορτίων χώρου λόγω συνθηκών πιο έντονης εστίασης. Η επίδρασή τους αναμένεται να είναι πιο σημαντική όταν χρησιμοποιούνται φακοί μικρής εστιακής απόστασης λόγω της μεγαλύτερης συγκέντρωσης φορτισμένων σωματιδίων σε μικρότερο όγκο. Τα παραπάνω υποστηρίζονται τόσο από πειραματικές όσο και από θεωρητικές μελέτες που προβλέπουν και αναμένουν



λόγω τέτοιων φαινομένων μείωση της έντασης κορεσμού σε αντίθεση με την τάξη μη-γραμμικότητας που την αφήνουν ανεπηρέαστη [Bowe 1998].

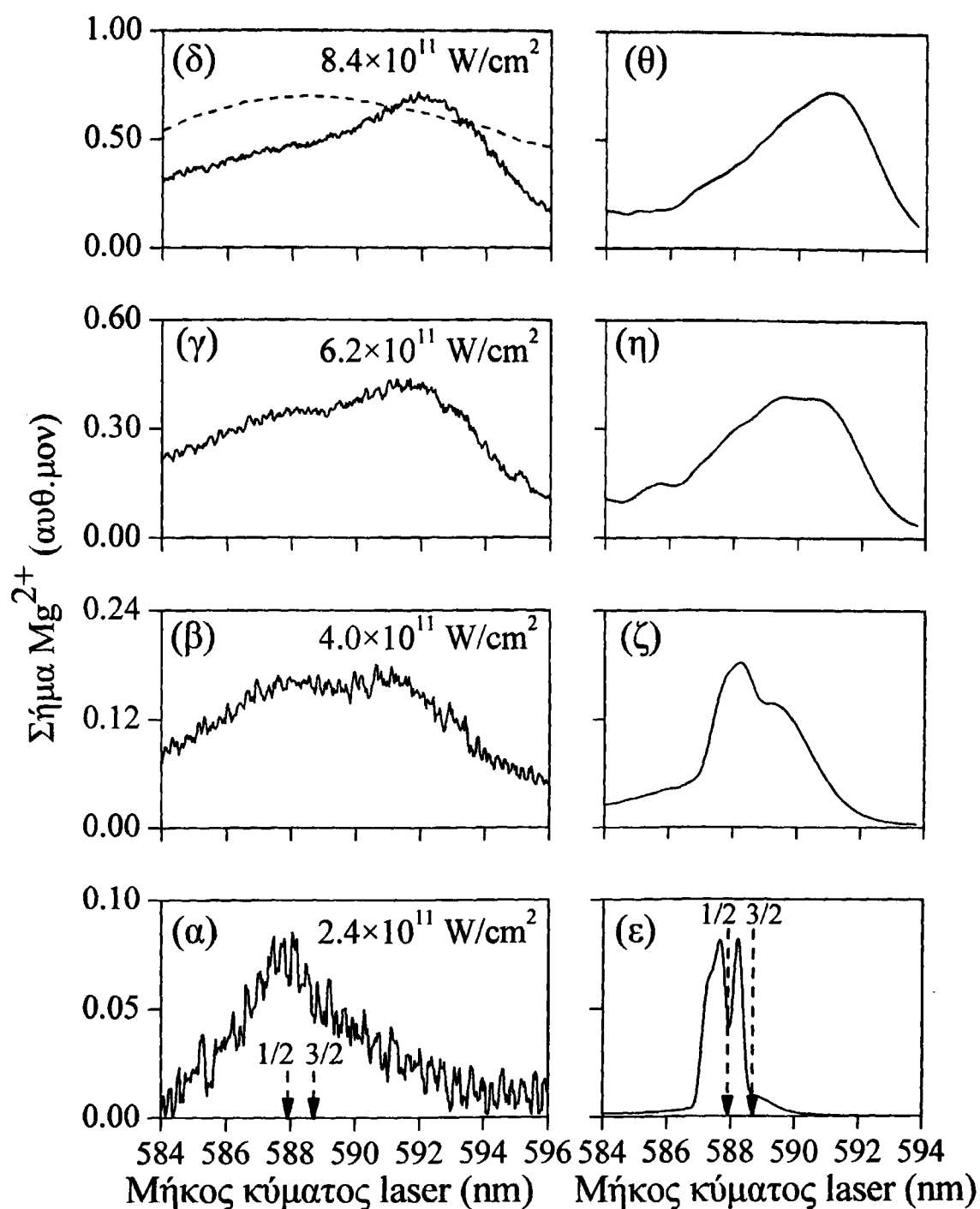
3.2.4 Παραγωγή ιόντων Mg^{2+}

Η εξάρτηση της απόδοσης του διπλά ιονισμένου Mg συναρτήσει του μήκους κύματος και για διάφορες εντάσεις της δέσμης laser παρουσιάζεται στα Σχ. 3.2.4.1 (α)–(θ), όπου στις γραφικές παραστάσεις (α)–(δ) παρουσιάζονται τα πειραματικά φάσματα Mg^{2+} (που καταγράφονται ταυτόχρονα με τα φάσματα του Mg^+) ενώ στα (ε)–(θ) φαίνονται τα αποτελέσματα των θεωρητικών υπολογισμών για τις αντίστοιχες εντάσεις.

Πιο συγκεκριμένα όσον αφορά τα πειραματικά φάσματα του Σχ. 3.2.4.1, το φάσμα (α) έχει αποκτηθεί με την ελάχιστη δυνατή ένταση για την οποία υπήρχε σήμα Mg^{2+} ικανό προς καταγραφή, τα φάσματα (β) και (γ) με συνεχώς αυξανόμενη ένταση ενώ το φάσμα (δ) καταγράφεται για τη μέγιστη δυνατή διαθέσιμη ένταση υπό τις πειραματικές μας συνθήκες. Η παρατήρηση των φασμάτων αποκαλύπτει μια ασυμμετρία στα προφίλ τους. Στις υψηλές εντάσεις το σήμα Mg^{2+} μεγιστοποιείται γύρω στα 592nm με την ύπαρξη μιας μακριάς ουράς στην περιοχή «μπλε» μηκών κύματος της κορυφής. Όσο η ένταση μειώνεται παρατηρούμε μείωση της κορυφής που αντιστοιχεί στα 592nm καθώς και μια μικρή μετατόπιση της προς την «μπλε» περιοχή, ενώ ξεκινά να εμφανίζεται μια κορυφή στα ~588nm, έως ότου για ενδιάμεσες εντάσεις οι δύο κορυφές γίνονται ισοδύναμες. Στο φάσμα που αντιστοιχεί στην ελάχιστη ένταση είναι φανερό ότι κυριαρχεί η κορυφή στα 588nm ενώ η ουρά του φάσματος είναι πλέον προς την «κόκκινη» περιοχή της κορυφής. Οι γραμμές είναι προφανές ότι αντιστοιχούν σε δύο ξεχωριστούς μηχανισμούς παραγωγής διπλά φορτισμένων ιόντων Mg στην περιοχή μήκους κύματος υπό μελέτη, με τον καθένα να κυριαρχεί σε διαφορετικές εντάσεις.

Στην προσπάθεια να βρεθεί η προέλευση της κορυφής στα 588nm, σημειώνεται πως το μέγιστο είναι ελάχιστα μετατοπισμένο προς την μπλε περιοχή σε σχέση με τις τετραφωτονικές ιοντικές μεταβάσεις $3p_{1/2,3/2} - 5f_{5/2,7/2}$ του Mg^+ . Συνεπώς η κορυφή στα 588nm αποδίδεται σε μια διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού (δρόμος A) από τα επίπεδα $3p_{1/2,3/2}$ του Mg^+ με το τέταρτο φωτόνιο να είναι σε συντονισμό με τα $5f_{5/2,7/2}$ επίπεδα και το πέμπτο να απορροφάται μέσω ενός πλήθους υψηλά διεγερμένων καταστάσεων Rydberg με





Σχήμα 3.2.4.1: Πειραματικά (α-δ) και αντίστοιχα θεωρητικά (ε-θ) φάσματα Mg^{2+} καταγεγραμμένα για διάφορες εντάσεις laser. Οι κάθετες διακεκομμένες γραμμές στο (α) υποδεικνύουν τις θέσεις του μήκους κύματος για την αδιατάρακτες μεταβάσεις $3p_{1/2,3/2} + 4\hbar\omega \rightarrow 5f_j$ του Mg^+ . Στο (δ) με διακεκομμένη γραμμή έχει σχεδιαστεί η γραφική παράσταση της ενέργειας του παλμού του laser συναρτήσει του μήκους κύματος.

$24 \leq n \leq 30$ και αριθμό τροχιακής στροφορμής $l = 2$ και 4 (επίπεδα d, g). Λαμβάνοντας υπόψη την ανάλυση του ανιχνευτικού μας συστήματος και τη λεπτή υφή των ενεργειακών επιπέδων $5f_j$ (0.06 cm^{-1}) [NIST Mg I] μόνο δύο γραμμές αναμένεται να εμφανισθούν στο φάσμα, μία με αρχική την $3p_{1/2}$ κατάσταση και μία με την $3p_{3/2}$, με τις αδιατάραχτες θέσεις των γραμμών αυτών να υποδεικνύονται στο Σχ. 3.2.4.1(α) με δύο κάθετα διακεκομμένα βέλη. Στο πειραματικό φάσμα όμως εμφανίζεται μία μόνο γραμμή με σχετικά μεγάλο πλάτος. Αυτό μπορεί να αποδοθεί στην επίδραση που έχει το συνεχές (DC) ηλεκτρικό πεδίο που εφαρμόζεται στη διάταξη TOF (για να απωθήσει τα ιόντα προς τον χώρο ανίχνευσης και συλλογής) στη μετατόπιση και σπάσιμο σε διάφορες ενέργειες των υψηλά διεγερμένων καταστάσεων Rydberg στις οποίες μπορεί να διεγερθεί με ένα φωτόνιο η $5f$ κατάσταση.

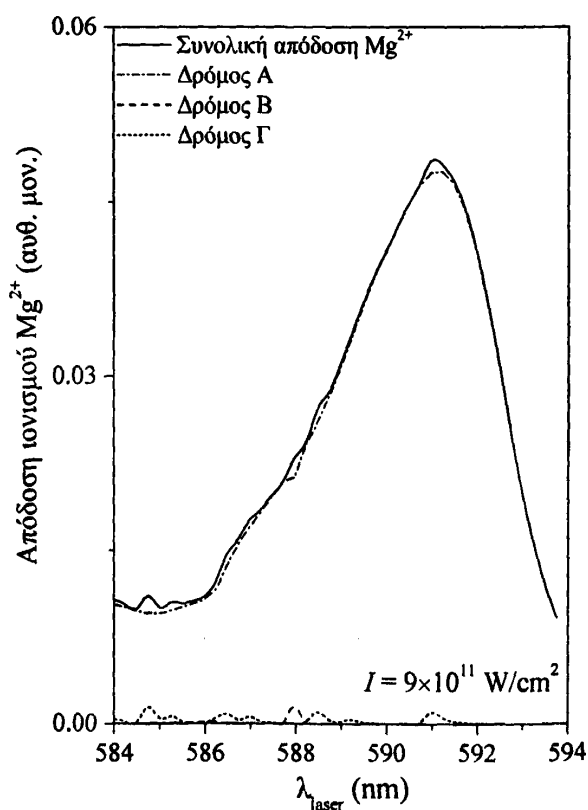
Ο άλλος μηχανισμός, ο οποίος είναι υπεύθυνος για τον σχηματισμό Mg^{2+} σε υψηλές εντάσεις, αποδίδεται σε διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού από τα $3p_{1/2,3/2}$ ιοντικά επίπεδα του Mg^+ με το πέμπτο φωτόνιο σε συντονισμό με ένα διαφορετικό πλέγμα υψηλά διεγερμένων καταστάσεων Rydberg με $24 \leq n \leq 30$ με $l = 0$ και 6 (δρόμος B Σχ. 3.2.2.1). Οι καταστάσεις αυτές δεν μπορούν να είναι σε μονοφωτονική σύζευξη με τα επίπεδα $5f_j$ του Mg^+ .

Στα Σχ. 3.2.4.1 (ε)–(θ) παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των θεωρητικών υπολογισμών για τα αντίστοιχα πειραματικά φάσματα. Για το φάσμα που καταγράφεται με την χαμηλότερη ένταση υπάρχει ικανοποιητική συμφωνία μεταξύ πειράματος και θεωρίας. Εφόσον στον θεωρητικό υπολογισμό δεν υπεισέρχεται το σταθερό ηλεκτρικό πεδίο (DC) εμφανίζονται μερικές ξεκάθαρες και ισχυρές γραμμές συντονισμών γύρω τα 588nm που αποδίδονται στην διαδικασία ιονισμού μέσω του δρόμου A. Επιπρόσθετα, εμφανίζεται μια μικρή και φαρδιά κορυφή στην κόκκινη περιοχή αυτών των συντονισμών (η οποία αντιστοιχεί στην ουρά της κόκκινης περιοχής του πειραματικού φάσματος του Σχ. 3.2.4.1(α)) που αποδίδεται στην διαδικασία ιονισμού μέσω του δρόμου B. Στο Σχ. 3.2.4.1(ζ) η συνεισφορά στον σχηματισμό Mg^{2+} μέσω της $3p \rightarrow 4\hbar\omega \rightarrow 5f$ ιοντικής μετάβασης είναι ακόμα ισχυρότερη, συνεπώς η θεωρία προβλέπει μικρότερο ρυθμό αύξησης με την ένταση της συνεισφοράς του δρόμου B στο παραγόμενο σήμα Mg^{2+} σε σχέση με τα πειραματικά αποτελέσματα. Για τις υψηλότερες εντάσεις τα φάσματα που προκύπτουν από τους θεωρητικούς υπολογισμούς συμφωνούν πολύ καλά με τα αντίστοιχα πειραματικά.

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

Τα δύο παραπάνω σενάρια που αφορούν τους μηχανισμούς παραγωγής διπλά φορτισμένων ιόντων Mg προτείνουν την δημιουργία πληθυσμού στα διεγερμένα $3p_{1/2,3/2}$ ιοντικά επίπεδα του Mg^+ , κάτι που με τη σειρά του υπονοεί την απορρόφηση δύο φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού του ατόμου του Mg. Η δημιουργία διεγερμένων ιόντων Mg^+ επιβεβαιώνεται με την συμπληρωματική μελέτη φθορισμού που θα παρουσιαστεί στην επόμενη ενότητα.

Υπάρχει κι ένας τρίτος μηχανισμός σχηματισμού Mg^{2+} , μια διαδικασία 8-φωτονικού ιονισμού από την βασική ιοντική κατάσταση $3s$ του Mg^+ με το έβδομο φωτόνιο σε συντονισμό με ένα πλήθος υψηλά διεγερμένων καταστάσεων Rydberg με κύριο κβαντικό αριθμό $n \sim 15$ και αριθμό τροχιακής στροφορμής $l = 1,3,5,7$ (δρόμος Γ, Σχ. 3.2.2.1). Ο δρόμος αυτός όμως, ακόμα και για τις υψηλότερες εντάσεις που επιτεύχθηκαν σε αυτή την πειραματική μελέτη συνεισφέρει ελάχιστα στην παραγωγή διπλά φορτισμένων ιόντων Mg. Αυτό συμπεραίνεται ξεκάθαρα και από το Σχ. 3.2.4.2 όπου απεικονίζεται η συνεισφορά ξεχωριστά των τριών δρόμων A, B και Γ καθώς και η συνολική απόδοση διπλού ιονισμού συναρτήσει του μήκους κύματος, για την μέγιστη ένταση.



Σχήμα 3.2.4.2: Θεωρητική ολική και μερική απόδοση ιονισμού Mg^{2+} συναρτήσει του μήκους κύματος του laser για μέγιστη ένταση laser. Το ολικό σήμα Mg^{2+} είναι κανονικοποιημένο στη μονάδα.



Αν και οι δύο μηχανισμοί A και B μοιράζονται τα ίδια αρχικά ενεργειακά επίπεδα, κυριαρχούν σε διαφορετικές εντάσεις laser, γιατί όμως? Φως στο ερώτημα αυτό δίνει η παρακολούθηση και μελέτη του πληθυσμού που δημιουργείται στα αρχικά αυτά επίπεδα, $3p_i$, συναρτήσει του μήκους κύματος και της έντασης του laser. Αποδεικνύεται πως το μέγιστο του αριθμού των ατόμων που διεγείρεται στα $3p_i$, ως συνάρτηση του μήκους κύματος, ακολουθεί την μετατόπιση του μεγίστου του συντονισμού της $3p^2 \ ^1S_0$. Ο δρόμος B (Σχ. 4.2.1), δεν έχει άμεση εξάρτηση από το μήκος κύματος της ακτινοβολίας και αναμένεται να παρουσιάζει πιο αδύναμη πιθανότητα ιονισμού, ενώ γίνεται σημαντικός στις υψηλές εντάσεις, κάτι που αποδίδεται στο γεγονός πως το μέγιστό στα ~ 592 nm συνδέεται άμεσα με το μέγιστο που παρουσιάζει ο πληθυσμός στα επίπεδα $3p_i$ σε αυτό το μήκος κύματος. Όσο η ένταση μειώνεται, το μέγιστο του πληθυσμού μετατοπίζεται προς μικρότερα μήκη κύματος κοντά στην περιοχή του συντονισμού $3p-4h\nu \rightarrow 5f$ με αποτέλεσμα την κυριαρχία του δρόμου A στην συνεισφορά στο σήμα απόδοσης διπλού ιονισμού.

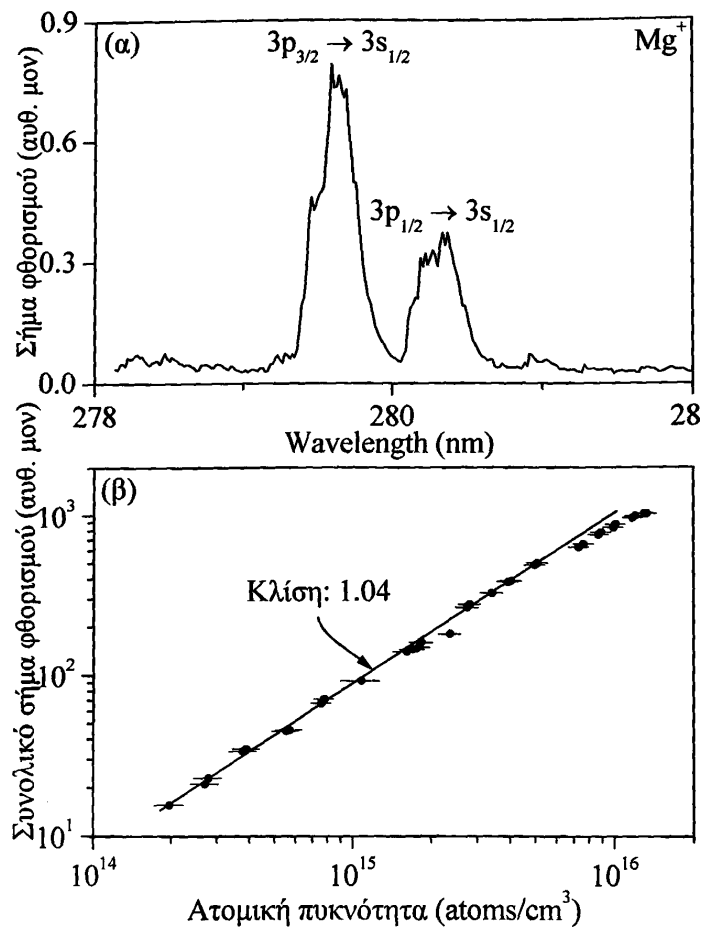
Στα Σχ. 3.2.3.2 (α) – (β) παρουσιάζεται η εξάρτηση της απόδοσης του διπλού ιονισμού Mg^{2+} συναρτήσει της έντασης της ακτινοβολίας laser. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων αυτών είναι σε συμφωνία με τον συλλογισμό που αναπτύχθηκε πιο πάνω. Η προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης $I^{K_{2+}}$ στα πειραματικά δεδομένα παράγει κλίση $K_{2+} \sim 4.5$ για τα 588 nm (δρόμος A Σχ. 3.2.2.1) και $K_{2+} \sim 5.1$ για τα 592 nm (δρόμος B, Σχ. 4.2.1). Για όλα τα μήκη κύματος μεγαλύτερα από 589 nm η κλίση K_{2+} βρέθηκε να κυμαίνεται από 5.1 – 5.6 (± 0.1). Οι θεωρητικοί υπολογισμοί οι οποίοι επαληθεύουν πολύ καλά τις πειραματικές μετρήσεις προβλέπουν για τις εντάσεις υπό συζήτηση πως το σήμα διπλού ιονισμού Mg^{2+} παρουσιάζει κορεσμό, συνεπώς οι κλίσεις που προσδιορίστηκαν από τις πειραματικές μετρήσεις δεν έχουν άμεσο νόημα. Για να επιτευχθεί το ταίριασμα των θεωρητικών με των πειραματικών καμπυλών χρησιμοποιήθηκαν οι ίδιοι πολλαπλασιαστικοί παράγοντες μετατροπής κλίμακας με αυτές των καμπυλών του Mg^+ . Η θεωρία προβλέπει πως ο παρατηρούμενος κορεσμός είναι αποτέλεσμα του ιονισμού όλων των ατόμων Mg και ιόντων Mg^+ μέσα στον χώρο αλληλεπίδρασης. Η μελέτη των Σχ. 3.2.3.2 (α)– (β) επαληθεύει την πρόβλεψη αυτή και αποκαλύπτει πως τα διπλά φορτισμένα ιόντα Mg σχηματίζονται μόλις στο ξεκίνημα του κορεσμού του σήματος του Mg^+ .

3.2.5 Πειραματική επαλήθευση δημιουργίας Mg^+ σε διεγερμένες καταστάσεις: Μελέτη φθορισμού

Για να μπορέσουμε να επιβεβαιώσουμε τα παραπάνω σενάρια που προτάθηκαν για τον σχηματισμό διπλά φορτισμένων ιόντων Mg προχωρήσαμε στη διεξαγωγή συμπληρωματικού πειράματος ανίχνευσης φθορισμού που εκπέμπεται κατά την αποδιέγερση διεγερμένων ατόμων από τα $3p_{1/2,3/2}$ ιοντικά επίπεδα του Mg^+ στην $3s_{1/2}$ βασική κατάσταση του ιόντος. Ο εκπεμπόμενος φθορισμός αναλύθηκε και ανιχνεύθηκε με τη βοήθεια UV-μονοχρωμάτορα εξοπλισμένου με φωτοπολλαπλασιαστή ευαίσθητου στην ακτινοβολία UV. Αρχικά, πραγματοποιήθηκαν διαδοχικές σάρωσεις σε ολόκληρη την περιοχή λειτουργίας του UV-μονοχρωμάτορα/φωτοπολλαπλασιαστή (200–400 nm) για διαφορετικά αλλά σταθερά, σε κάθε σάρωση, μήκη κύματος της ακτινοβολίας laser. Σε αυτή την περιοχή και για την μέγιστη ευαισθησία του ανιχνευτικού συστήματος βρέθηκαν μόνο δύο γραμμές που αντιστοιχούν στις μεταβάσεις $3p_{1/2,3/2} - 3s_{1/2}$ του Mg^+ . Μια τυπική σάρωση του μονοχρωμάτορα με τις δύο γραμμές απεικονίζεται στο Σχ. 4.2.5.1 (α). Αυτή είναι η ξεκάθαρη απόδειξη ότι κατά την διάρκεια του παλμού laser δημιουργείται πληθυσμός στα διεγερμένα ιοντικά επίπεδα $3p_i$ του Mg^+ .

Στην συνέχεια, δόθηκε έμφαση στη διερεύνηση του μηχανισμού μέσω του οποίου σχηματίζεται πληθυσμός στα επίπεδα $3p_i$ του Mg^+ και στην αναλυτική μελέτη της ισχυρής μονοφωτονικής σύζευξης μεταξύ των διπλά διεγερμένων καταστάσεων $3p^2 \ ^1S_0$ και $3p3d \ ^1P_1$. Εφόσον δεν υπήρχαν ενδείξεις ύπαρξης άλλων γραμμών στην περιοχή λειτουργίας, αφαιρέθηκε ο μονοχρωμάτορας και αντικαταστάθηκε με ένα φίλτρο-UV το οποίο εμποδίζει το ορατό φως να εισέλθει στο φωτοπολλαπλασιαστή. Σε καθένα από τα παραπάνω βήματα, δηλ. με ή χωρίς μονοχρωμάτορα, για να αποκλείσουμε τυχόν φαινόμενα κρούσεων λόγω της μεγάλης ατομικής πυκνότητας στο κελί (10^{14} – 10^{16} άτομα/cm³), καταγράφηκε η εξάρτηση του σήματος του φωτοπολλαπλασιαστή από την πυκνότητα του Mg. Τα αποτελέσματα φαίνονται στην γραφική παράσταση του Σχ. 3.2.5.1(β) όπου παρατηρούμε ότι η εξάρτηση είναι γραμμική εκτός από την περιοχή για πυκνότητες $>7 \times 10^{16}$ άτομα/cm³ όπου εμφανίζεται απόκλιση από την γραμμικότητα. Για τον λόγο αυτό όλες οι μετρήσεις που αποκτήθηκαν και παρουσιάζονται εδώ έχουν καταγραφεί στο γραμμικό μέρος της γραφικής παράσταση του Σχ. 3.2.5.1(β).





Σχήμα 3.2.5.1: (α) Τυπική σάρωση του μονοχρωμάτορα στην περιοχή των αποδιεγέρσεων $3p_{1/2,3/2} \rightarrow 3s_{1/2}$ του Mg^+ για σταθερό μήκος κύματος laser (590nm) και ένταση laser ($8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$). (β) Συνολικός φθορισμός συναρτήσει της ατομικής πυκνότητας Mg. Η συμπαγής γραμμή αντιστοιχεί στην προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης στο γραμμικό μέρος της γραφικής παράστασης.

Ο συνολικός πλέον φθορισμός καταγράφηκε συναρτήσει του μήκους κύματος του laser και για διάφορες εντάσεις. Για ορισμένες από αυτές, η εξάρτηση του συνολικού φθορισμού απεικονίζεται στα Σχ. 3.2.5.2 (α)–(γ). Είναι φανερή η μετατόπιση του μεγίστου των φασμάτων, προς την «κόκκινη» περιοχή σε σχέση με την αδιατάραχτη θέση της $3s^2 \ ^1S_0 + 4h\nu \rightarrow 3p^2 \ ^1S_0$ μετάβασης. Η εικόνα που παρουσιάζεται στα φάσματα αυτά είναι παρόμοια με αυτά του Mg^+ , με μερικές διαφορές οι οποίες εστιάζονται στα (i) εδώ η μετατόπιση είναι ελαφρά μεγαλύτερη για τις αντίστοιχες εντάσεις και επιπλέον η μετατόπιση φτάνει σε κορεσμό σε μεγαλύτερες εντάσεις, (ii) είναι φανερή η απουσία σημαντικού σήματος υποβάθρου, κάτι που είναι αναμενόμενο μιας και ο τετραφωτονικός ιονισμός, που παράγει

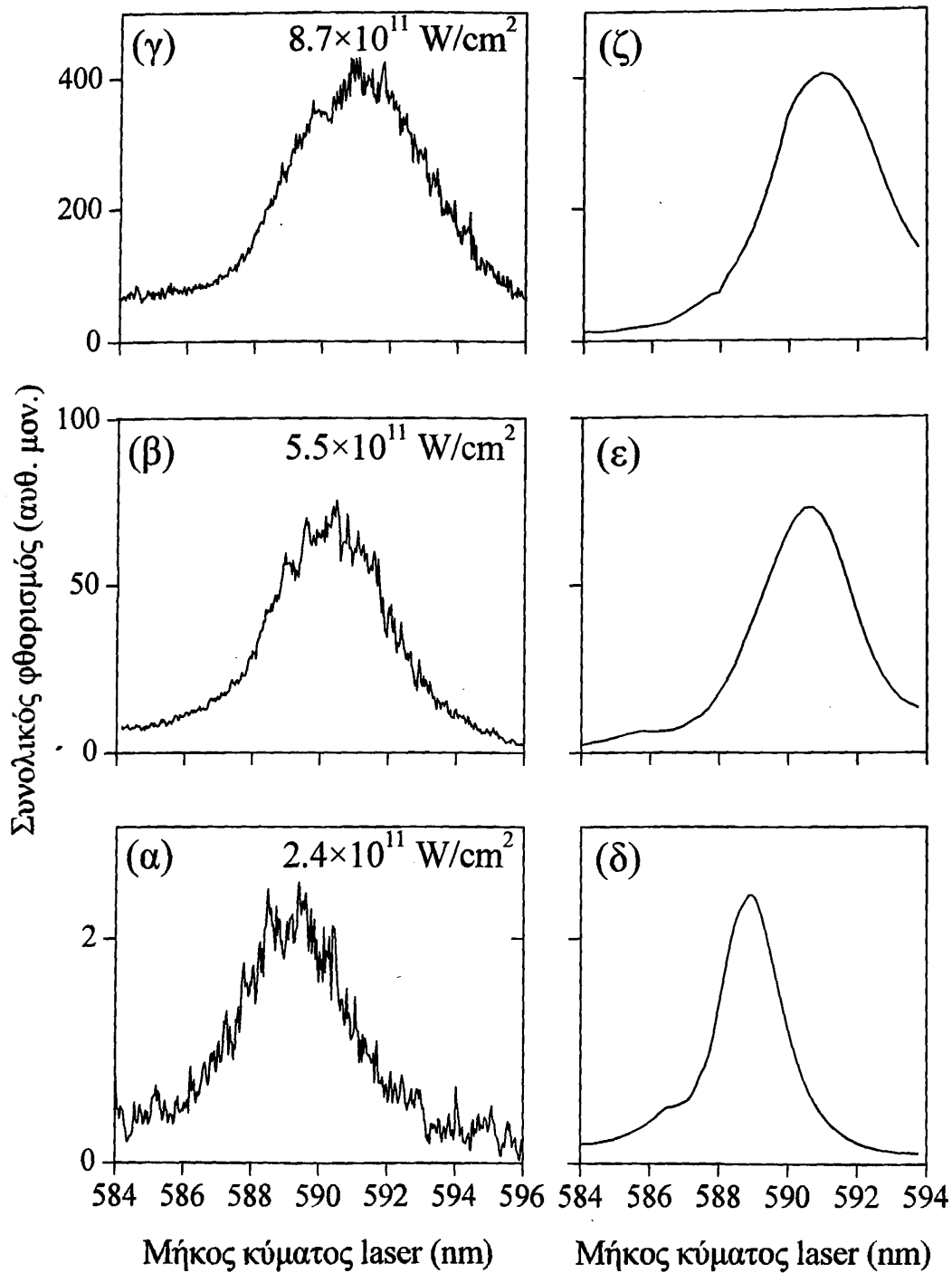
ίοντα στην $3s$ κατάσταση του Mg^+ για όλα τα λ τα οποία και συνεισφέρουν στα φάσματα του Σχ. 3.2.3.1 δε συμβάλλει στην δημιουργία διεγερμένων ιόντων Mg^+ και (iii) τα προφίλ γραμμών των φασμάτων φθορισμού επιδεικνύουν αντίστροφη και μικρότερη ασυμμετρία σε σχέση με αυτά του Mg^+ .

Τα αποτελέσματα των θεωρητικών υπολογισμών που παρουσιάζονται στα Σχ. 3.2.5.2 (δ)-(ζ) αναπαράγουν ικανοποιητικά τα πειραματικά δεδομένα, με την μόνη διαφορά να έγκειται στα υποεκτιμημένα και σε αυτήν την περίπτωση πλάτη γραμμών σε σχέση με των πειραματικών. Άμεσα εξαγόμενο συμπέρασμα από το θεωρητικό μοντέλο είναι το γεγονός ότι η ισχυρή μονοφωτονική σύζευξη μεταξύ των διπλά διεγερμένων καταστάσεων $3p^2 \ ^1S_0$ και $3p3d \ ^1P_1$ διέπει το φαινόμενο της απορρόφησης δύο φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού του Mg. Στην ουσία οι καταστάσεις αυτές είναι τα ενδιάμεσα βήματα σε ένα σχήμα κλιμακωτής διέγερσης που οδηγούν στην δημιουργία πληθυσμού στα διεγερμένα $3p_{1/2,3/2}$ ιοντικά επίπεδα του Mg^+ . Η σύζευξη αυτή έχει διερευνηθεί και στο παρελθόν, όπως σε μελέτες επαγόμενης-από-laser-διαμόρφωσης-δομής-στο-συνεχές [Karapanagioti 1996] και σε μελέτες σχήματος κλιμακωτής διέγερσης αποτελούμενο από τρεις αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις [Kylstra 1998].

Το μήκος κύματος (~ 566.4 nm) του $3p^2 \ ^1S_0 - 3p3d \ ^1P_1$ συντονισμού βρίσκεται εκτός ορίων της περιοχής μικρών κύματος υπό διερεύνηση. Το πλησιέστερο φωτόνιο στα 584.0nm, σε συνθήκες μηδενικού πεδίου, απέχει από τον συντονισμό $\sim 530\text{cm}^{-1}$, μια τιμή που θεωρείται μεγάλη για μελέτες πολυφωτονικού ιονισμού. Παρόλα αυτά όμως, η τιμή αυτή είναι αφενός μεν αρκετά μικρότερη από την αντίστοιχη μονοφωτονική απόσταση από το συντονισμό της $3p^2 \ ^1S_0$ με την $3s4p \ ^1P_1$ δέσμια κατάσταση αφετέρου δε επαρκώς μικρή ώστε η σύζευξη που προκαλεί να μην μπορεί να αναπτυχθεί στα πλαίσια της θεωρίας διαταραχών.

Μια άμεση εκδήλωση της ισχυρής μονοφωτονικής σύζευξης που προαναφέρθηκε, είναι το γεγονός ότι οι ενεργειακές μετατοπίσεις που παρατηρούνται δεν μπορούν να προβλεφθούν στα πλαίσια του διαταραχτικού φαινομένου AC Stark. Οι θεωρητικοί υπολογισμοί προτείνουν πως οι παρατηρούμενες μετατοπίσεις οφείλονται σε μια περίπτωση ανάλογη του διαχωρισμού-Rabi μεταξύ δύο συζευγμένων καταστάσεων σε συντονισμό, ιδιαίτερα αφού η $3p3d \ ^1P_1$ στο θεωρητικό μοντέλο υπεισέρχεται ως δέσμια κατάσταση σε ότι αφορά την σύζευξή της με την $3p^2 \ ^1S_0$. Επομένως, αυτό που παρατηρείται πειραματικά είναι η ανίχνευση φθορισμού που προκαλείται από τον ιονισμό μιας από τις δύο συνιστώσες στις οποίες

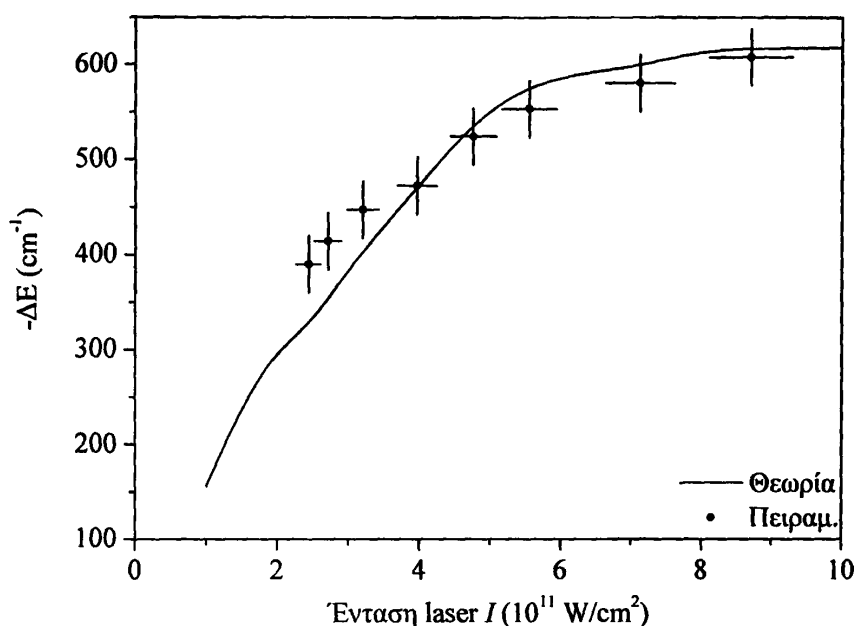




Σχήμα 3.2.5.2: Πειραματικά (α-γ) και θεωρητικά (δ-ζ) φάσματα συνολικού φθορισμού συναρτήσει του μήκους κύματος του laser για διάφορες εντάσεις laser.

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

διαχωρίζεται αυτή η διπλά διεγερμένη αυτοϊονιζόμενη κατάσταση ενώ η άλλη κατάσταση δε διεγείρεται στην περιοχή μηκών κύματος που χρησιμοποιούμε. Επιπλέον, όπως απεικονίζεται στο Σχ. 3.2.5.3, η εξάρτηση της ενεργειακής μετατόπισης σε σχέση με την ένταση του laser είναι μη-γραμμική. Εδώ πρέπει να τονιστεί, πως εάν παραληφθεί η συνεισφορά της δέσμιας κατάστασης $3s4p\ ^1P_1$ στην τετρα-φωτονική διέγερση της $3p^2\ ^1S_0$, η απόκλιση από την γραμμικότητα είναι λιγότερο σημαντική και δεν μπορεί να επιτευχθεί ακριβής αναπαραγωγή των πειραματικών δεδομένων. Αυτός είναι και ο λόγος που το θεωρητικό μοντέλο λαμβάνει υπόψη αυτή τη σύζευξη. Αξίζει επίσης να σημειωθεί πως εάν παραληφθεί το πλάτος ιονισμού υποβάθρου, $\gamma_{ib}^{(4)}$, η συμφωνία μεταξύ θεωρίας και πειράματος είναι μόνο ποιοτική.



Σχήμα 3.2.5.3: Ενεργειακή (τετραφωτονική) μετατόπιση του μεγίστου των φασμάτων συνολικού φθορισμού σε σχέση με την αδιατάρακτη θέση ενεργειακού επιπέδου $5p^2\ ^1S_0$ συναρτήσει της έντασης του laser. Με την συμπαγή γραμμή είναι το αποτέλεσμα του θεωρητικού υπολογισμού.

Η ποσοτική συμφωνία του Σχ. 3.2.5.3 αποκτάται μόνο όταν η τιμή του, που δίνεται στον Πίνακα I, εισάγεται στο μοντέλο. Μια πιθανή ερμηνεία για το αποτέλεσμα αυτό μπορεί να είναι ότι σε υψηλές εντάσεις το υπόβαθρο ιονισμού ανταγωνίζεται με την διέγερση σε συντονισμό της κατάστασης $3p^2\ ^1S_0$ αποσοβώντας περαιτέρω ατομική διέγερση και επακόλουθη συνάθροιση πληθυσμού στα ιοντικά επίπεδα $3p_{1/2,3/2}$.

Τα ευρήματα αυτά εξηγούν γιατί η απορρόφηση δύο φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού καθίσταται δυνατή με παλμούς laser διάρκειας ns, φαινόμενο το οποίο δεν

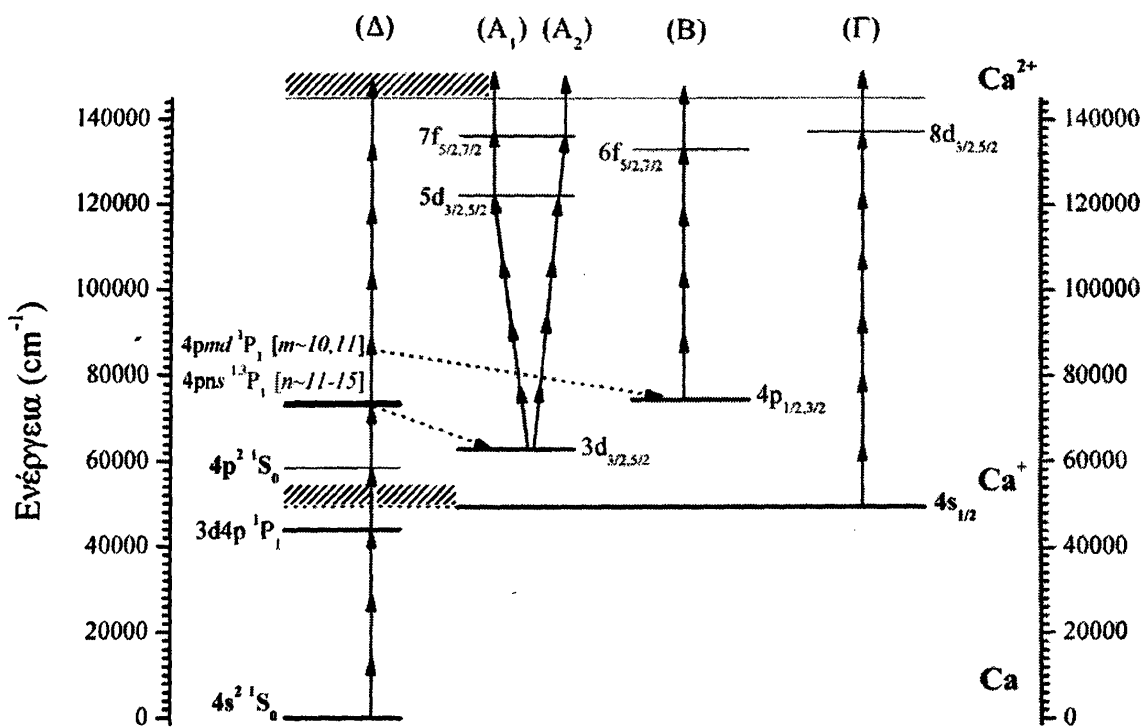


είναι αναμενόμενο για τέτοιους σχετικά μεγάλης διάρκειας παλμούς. Επισημαίνουν επίσης, τον σημαντικό ρόλο που παίζουν οι αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις σε συντονισμό στις διαδικασίες πολυφωτονικού απλού και διπλού ιονισμού των ατόμων των Αλκαλικών Γαιών.

3.3 Ασβέστιο

3.3.1 Διάγραμμα ενεργειακών επιπέδων του Ασβεστίου

Ένα μερικό αλλά υπό κλίμακα διάγραμμα των καταστάσεων του Ca και Ca⁺ που εμπλέκονται στους μηχανισμούς δημιουργίας απλά και διπλά φορτισμένων ιόντων στην υπό μελέτη ενεργειακή περιοχή ($\lambda_{\text{laser}} \sim 675 - 685 \text{ nm}$), δίνεται στο Σχ. 3.3.1.1.



Σχήμα 3.3.1.1: Βαθμονομημένο ενεργειακό διάγραμμα των σχετικών επιπέδων Ca - Ca⁺ που εμπλέκονται στους μηχανισμούς παραγωγής απλά και διπλά φορτισμένων ιόντων Ασβεστίου.

Από την 4s² 1S₀ θεμελιώδη κατάσταση του Ca με απορρόφηση τεσσάρων φωτονίων διεγείρεται η 4p² 1S₀ αυτοϊονιζόμενη κατάσταση (E~58535cm⁻¹, πλάτος αυτοϊονισμού ~90 cm⁻¹) [Bolininos 1992]). Όταν το μήκος κύματος laser είναι συντονισμένο στην τετραφωτονική διέγερση της 4p² 1S₀, το τρίτο φωτόνιο είναι πολύ κοντά σε συντονισμό με την 3d4p 1P₁ δέσμη κατάσταση (43933 cm⁻¹) [Brown 1973] ενώ στο εύρος απορρόφησης

του πέμπτου φωτονίου υπάρχουν μέλη των αυτοϊονιζόμενων σειρών $4pns \ ^1\text{P}_1$ ($n=11-15$) και $4pnd \ ^1\text{P}_1$ ($m=10,11$) για τις οποίες η φασματοσκοπική μελέτη, ιδιαίτερα μέσω της (βηματικής ή απευθείας) απορρόφησης περισσότερων του ενός φωτονίων, απέχει πολύ από το να χαρακτηριστεί πλήρως [NIST Ca I, Lange 1989, Ueda 1990, Jones 1998]. Στην περιοχή της $4p^2 \ ^1\text{S}_0$ (τέταρτο φωτόνιο) Οι επαγόμενες από πεδίο του laser μονοφωτονικές συζεύξεις μεταξύ των παραπάνω καταστάσεων σχηματίζουν ένα σχήμα κλιμακωτής διέγερσης οδηγώντας το σύστημα στην απορρόφηση δύο επιπλέον φωτονίων πάνω από το πρώτο δυναμικό ιονισμού και στη δημιουργία ιόντων Ca στις διεγερμένες καταστάσεις $3d_j$ και $4p_i$ (Σχ. 3.3.1.1). Τα πειραματικά ευρήματα δείχνουν ότι ο κύριος μηχανισμός παραγωγής Ca^{2+} είναι ο διαδοχικός ιονισμός μέσω αυτών ακριβώς των διεγερμένων επιπέδων του Ca^+ . Για μερικές φασματικές περιοχές όμως το ενδεχόμενο του απευθείας διπλού ιονισμού δεν μπορεί να αποκλειστεί κατηγορηματικά, όπως θα συζητηθεί στη συνέχεια. Ο ιονισμός του Ca^+ από τα επίπεδα $3d_j$ μπορεί να πραγματοποιηθεί μέσω μιας διαδικασίας εξαφωτονικού ιονισμού, με το τέταρτο και πέμπτο φωτόνιο να είναι κοντά σε συντονισμό με τα υψηλότερα ενεργειακά επίπεδα $5d_j$ και $7f_j$ αντίστοιχα (Σχ. 3.3.1.1). Από δε τις καταστάσεις $4p_i$, διπλά φορτισμένα ιόντα Ασβεστίου σχηματίζονται με την απορρόφηση πέντε φωτονίων με το τέταρτο φωτόνιο να βρίσκεται κοντά σε συντονισμό με τα επίπεδα $6f_j$. Τέλος, ο διπλός ιονισμός από τη βασική κατάσταση $4s$ του Ca^+ απαιτεί την απορρόφηση επτά φωτονίων, με ένα μόνο συντονισμό έξι φωτονίων με τα επίπεδα $8d_j$ στην υπό μελέτη περιοχή. Συνεπώς, η συνεισφορά του πληθυσμού της βασικής κατάστασης $4s$ στην παραγωγή Ca^{2+} αναμένεται να είναι αμελητέα λόγω της πολύ μικρή ενεργού διατομής είτε του συντονιστικού είτε του μη συντονιστικού ιονισμού.

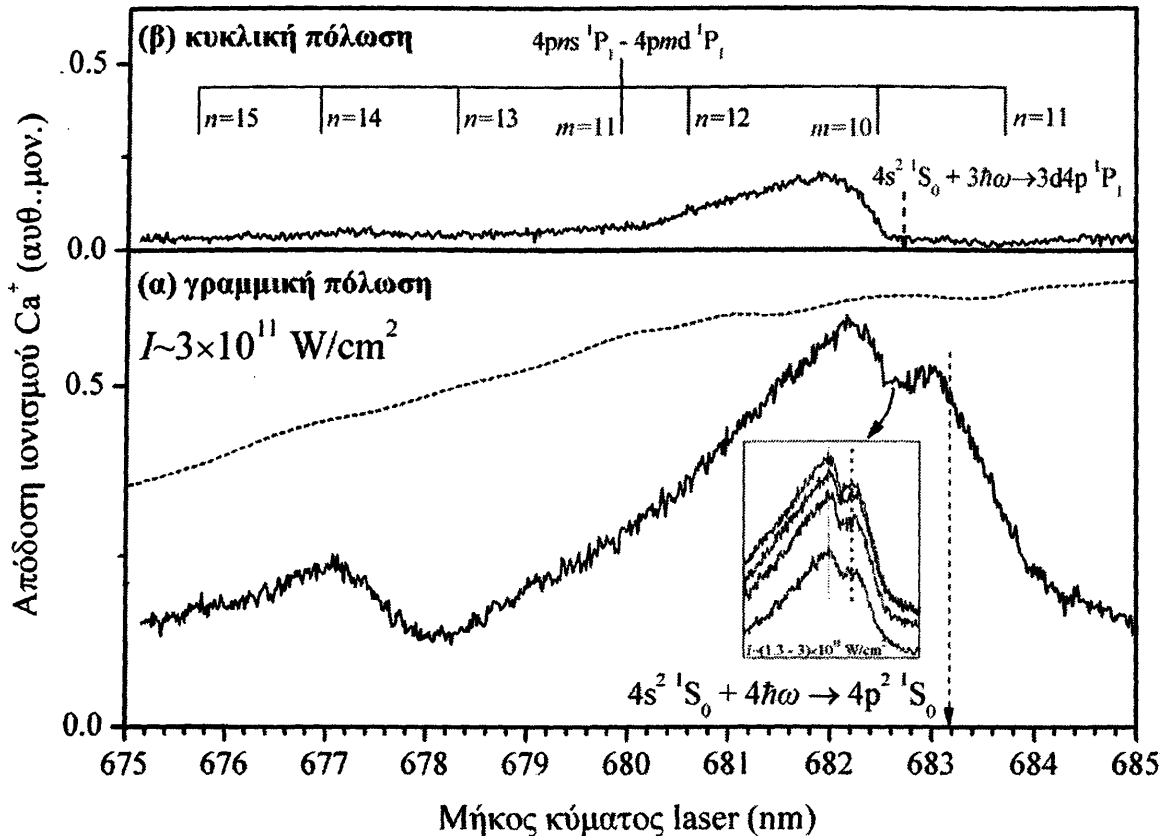
3.3.2 Παραγωγή ιόντων Ca^+

Η εξάρτηση της απόδοσης του Ca^+ στην περιοχή της μετάβασης $4s^2 \ ^1\text{S}_0 \xrightarrow{4\hbar\omega} 4p^2 \ ^1\text{S}_0$ ($\lambda_{\text{laser}} \sim 675 - 685 \text{ nm}$) παρουσιάζεται στο Σχ.(3.3.2.1α,β). Το φάσμα έχει καταγραφεί με την μέγιστη δυνατή διαθέσιμη ένταση laser $I \sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ για (α) γραμμική και (β) κυκλική πόλωση της ακτινοβολίας.

Για χαμηλότερες εντάσεις έως και $\sim 9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ που είναι και η ελάχιστη δυνατή ένταση για την οποία υπάρχει ανιχνεύσιμο σήμα Ca^+ , δεν παρατηρείται διαφοροποίηση των φασμάτων ως προς τις θέσεις των επί μέρους συντονισμών, παρά μόνο μείωση του



φασματικού εύρους και μείωση του σήματος ιονισμού (ένθετο Σχ. 3.3.2.1α). Σημαντικό είναι το σήμα υποβάθρου ιονισμού που παρατηρείται στο φάσμα (α) για γραμμική πόλωση, στο οποίο συνεισφέρουν τα κανάλια του συνεχούς με $J=0, 2, 4$ για τον ιονισμό στο τέταρτο φωτόνιο και $J=1, 3, 5$ για τον ιονισμό στο πέμπτο φωτόνιο, ενώ για κυκλική πόλωση (Σχ. 3.3.2.1β) μειώνεται σε μεγάλο βαθμό λόγω της συνεισφοράς στο σήμα Ca^+ μόνο των καναλιών του συνεχούς με $J=4$ και 5 αντίστοιχα.



Σχήμα 3.3.2.1: Απόδοση του Ca^+ συναρτήσει του μήκους κύματος του laser για την μέγιστη διαθέσιμη ένταση laser $I \sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$, για (α) γραμμική και (β) κυκλική πόλωση του laser. Με τα μαύρα κάθετα διακεκομμένα βέλη σημειώνονται, στο (α) η αδιατάραχτη θέση (ασθενικό πεδίο laser) ως προς το μήκος κύματος του τετραφωτονικού συντονισμού της $4p^2 \ ^1S_0$ από τη βασική ατομική κατάσταση και στο (β) ο συντονισμός με τη δέσμια κατάσταση $3d4p \ ^1P_1$. Η διακεκομμένη γραμμή στο (α) απεικονίζει την εξάρτηση της ενέργειας του παλμού laser συναρτήσει του μήκους κύματος ενώ στο ένθετο απεικονίζεται η εξάρτηση του σήματος Ca^+ από με το μήκος κύματος για διάφορες τιμές I όπου και παρατηρείται ότι οι θέσεις των συντονισμών δε μεταβάλλονται με την ένταση του laser.

Το φάσμα του απλά φορτισμένου ιόντος κυριαρχείται από ένα λοβό περίπου στα 682.5 nm στον οποίο ξεχωρίζουν δύο φαρδιές κορυφές οι οποίες αντιστοιχούν σε δύο διαφορετικούς συντονισμούς. Ο πρώτος και πιο ισχυρός στα 682.25 nm αποδίδεται σε διαδικασία τετραφωτονικού ιονισμού από τη βασική κατάσταση $4s^2 \ ^1S_0$, με το τρίτο φωτόνιο

να είναι σε συντονισμό με τη δέσμια κατάσταση $3d4p\ ^1P_1$ ($4s^2\ ^1S_0 + 3\hbar\omega \rightarrow 3d4p\ ^1P_1$) [Brown 1973] ενώ ο δεύτερος, σύμφωνα με τα διαθέσιμα φασματοσκοπικά δεδομένα [Boloninos 1992, Cohen 2006], στα 682.9nm αντιστοιχεί στην μετάβαση $4s^2\ ^1S_0 + 4\hbar\omega \rightarrow 4p^2\ ^1S_0$ (βλ. Σχ. 3.3.1.1). Η πειραματική τιμή για την ενέργεια της δέσμιας κατάστασης $3d4p\ ^1P_1$ που προκύπτει από το φάσμα ιονισμού του Ca^+ είναι $\sim 43960\text{cm}^{-1}$, τιμή η οποία είναι μετατοπισμένη κατά $\sim +27\text{cm}^{-1}$ σε σχέση με τα φασματοσκοπικά δεδομένα [NIST Ca I, Brown 1973], όπως φαίνεται και στο Σχ. 3.3.2.1(β) όπου σημειώνεται η αδιατάρακτη θέση της. Ανάλογη συμπεριφορά παρατηρούμε και στην περίπτωση του τετραφωτονικού συντονισμού της $4p^2\ ^1S_0$ από τη βασική ατομική κατάσταση όπου παρατηρούμε μία μικρή «μπλε» μετατόπιση ($\sim +23\text{cm}^{-1}$) σε σχέση με τα φασματοσκοπικά δεδομένα μέσω βηματικής [Boloninos 1992] ή διφωτονικής διέγερσης [Cohen 2006].

Η σταθερή θέση του συντονισμού στην περιοχή εντάσεων του πειράματός μας ενδεχομένως αιτιολογείται σύμφωνα με τον ακόλουθο συλλογισμό: Στην υπό μελέτη ενεργειακή περιοχή, η $4p^2\ ^1S_0$ (πλάτος αυτοϊονισμού $\sim 90\text{cm}^{-1}$) βρίσκεται σε μονοφωτονική σύζευξη με τις υψηλότερα διπλά διεγερμένες αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις $4pns\ ^1,^3P_1$ ($n = 11 - 15$), $4pnd\ ^1P_1$ ($n = 10 - 11$) καθώς και με τη χαμηλότερα ενεργειακά δέσμια κατάσταση $3d4p\ ^1P_1$ (βλ. ενεργειακό διάγραμμα Σχ 3.3.1.1). Στο Σχ. 3.3.2.1 (β) σημειώνονται οι αδιατάραχτες θέσεις των συντονισμών στο πέμπτο φωτόνιο για τις 1P_1 καταστάσεις. Η σύζευξη με τις τριπλές καταστάσεις 3P_1 αν και αναμένεται να μην είναι τόσο ισχυρή όσο η σύζευξη της με τις απλές (1P_1) καταστάσεις, εντούτοις δε θα είναι αμελητέα σύμφωνα και με τα πρόσφατα πειραματικά και θεωρητικά ευρήματα των Cohen *et al* στο Ασβέστιο [Cohen 2006], όπου μελετήθηκε η διφωτονική διέγερση με ακτινοβολία UV των άρτιας ομοτιμίας αυτοϊονιζόμενων μελών σειράς Rydberg $3dnd\ J = 0, 2$ ($4 \leq n \leq 10$) και $3dns\ J = 2$ ($6 \leq n \leq 12$) πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού $4s_{1/2}$. Οι Cohen *et al* κατέδειξαν το σημαντικό ρόλο των φαινομένων μίξης μεταξύ απλών - τριπλών καταστάσεων όσο αυξάνει η διέγερση (ο κβαντικός αριθμός n) όπου πλέον αρχίζει να μην ισχύει η σύζευξη $L-S$ και να κυριαρχεί η $J-J$. Από την άλλη μεριά, όπως αναφέρθηκε και στη συζήτηση για το φαινόμενο AC Stark (παράγραφος 1.3.4), η ενεργειακή μετατόπιση ΔE_φ που υφίσταται μία κατάσταση $|\varphi\rangle$ αδιατάρακτης ενέργειας E_φ (στη συγκεκριμένη περίπτωση η $4p^2\ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενη κατάσταση) δίνεται από τη σχέση [Bonch 1967, Mizushima 1964, Sobel'man 1979, Friedrich 1998]:



$$\Delta E_{\varphi} \propto I \times \sum_j |\langle \varphi | e\bar{D} | j \rangle|^2 \times \left\{ \frac{1}{E_j^{(0)} - E_{\varphi}^{(0)} - \hbar\omega} + \frac{1}{E_j^{(0)} - E_{\varphi}^{(0)} + \hbar\omega} \right\} \propto I \times a(\omega)$$

όπου I η ένταση της ακτινοβολίας laser και $|j\rangle$ οι καταστάσεις με τις οποίες είναι σε σύζευξη η $4p^2 \ ^1S_0$. Η συνεισφορά κάθε κατάστασης $|j\rangle$ στη δυναμική πολωσιμότητα $a(\omega)$ εξαρτάται από τη διαφορά της ενέργειάς της από αυτή της κατάστασης $|\varphi\rangle$ και από τη συχνότητα της ακτινοβολίας. Οι όροι εντός των αγκυλών μπορεί να είναι θετικοί ή αρνητικοί. Είναι λοιπόν δυνατόν για κάποια δεδομένη συχνότητα οι θετικές και αρνητικές συνεισφορές να είναι περίπου ίσου μεγέθους (κατ' απόλυτη τιμή) με συνέπεια η δυναμική πολωσιμότητα $a(\omega)$ να είναι πολύ μικρή. Σε αυτή την περίπτωση η εξάρτηση της ενεργειακής μετατόπισης της κατάστασης $|\varphi\rangle$ με την ένταση του laser θα είναι αντίστοιχα πολύ μικρή και πιθανώς μη-ανιχνεύσιμη. Παρόλα αυτά η εξήγηση του φαινομένου μπορεί να οφείλεται στην ισχυρή επαγόμενη-από-to-laser μονοφωτονική σύζευξη της $4p^2 \ ^1S_0$ με τις υψηλότερα ενεργειακά αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις, η οποία προκαλεί διαχωρισμό-Rabi της $4p^2 \ ^1S_0$ σε δύο συνιστώσες: την πρώτη στα 682.9 nm και την δεύτερη να είναι η κορυφή που καταγράφεται στο φάσμα Ca^+ γραμμικής πόλωσης στα 677.1 nm. Παρόμοιο φαινόμενο (χωρίς την καταγραφή όμως της δεύτερης συνιστώσας) παρατηρήθηκε πειραματικά και επιβεβαιώθηκε θεωρητικά στο άτομο του Mg (Μέρος 3.2). Ισχυρή πειραματική ένδειξη στη περίπτωση του Ca θα ήταν η μη-γραμμική μεταβολή (όπως αντίστοιχα στο Mg (Σχ. 3.2.5.3)) της ενεργειακής μετατόπισης (ΔE) της $4p^2 \ ^1S_0$, σε σχέση με την αδιατάραχτη θέση της, συναρτήσει της έντασης του laser. Αντίθετα όμως η θέση του τετραφωτονικού συντονισμού της $4p^2 \ ^1S_0$ (όπως και της κορυφής στα 677.1 nm) παραμένει σταθερή στο εύρος των εντάσεων laser της παρούσας μελέτης. Πιθανόν για τις εμπλεκόμενες εντάσεις, όπου παρατηρείται σήμα Ca^+ ικανό προς καταγραφή, βρισκόμαστε ήδη στην περιοχή όπου το ΔE είναι κορεσμένο ως προς την ένταση I (βλ. το κορεσμένο μέρος της γραφικής παράστασης για $I > 6 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ στο Σχ. 3.3.2.2), εξηγώντας τη σταθερή θέση (ως προς το μήκος κύματος) της $4p^2 \ ^1S_0$. Όσον αφορά άλλους πιθανούς μηχανισμούς προέλευσης της κορυφής στα $\sim 677.1 \text{ nm}$, πρέπει να σημειωθεί ότι για την ενέργεια του φωτονίου που αντιστοιχεί σε αυτό το μήκος κύματος laser, σύμφωνα με τις διαθέσιμες βάσεις ατομικών δεδομένων [NIST CaI] και χωρίς να ληφθούν υπόψη ενεργειακές μετατοπίσεις λόγω φαινομένου AC Stark, δεν υπάρχει κάποια δέσμια (στο εύρος απορρόφησης των τριών πρώτων φωτονίων) ή αυτοϊονιζόμενη κατάσταση (στο τέταρτο) που

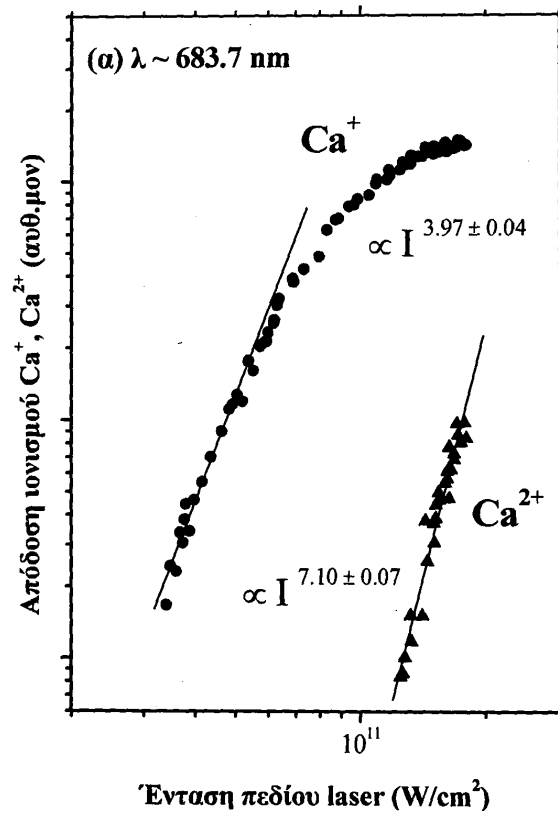
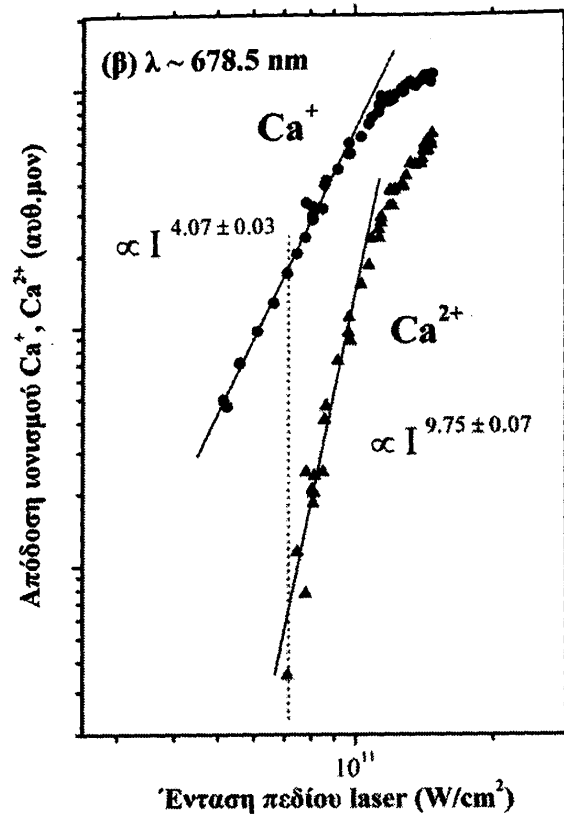
Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

να μπορεί να έρθει σε συντονισμό με τη βασική κατάσταση του Ca (το πλησιέστερο φωτόνιο κοντά σε συντονισμό απέχει $\sim 400 \text{ cm}^{-1}$). Λαμβάνοντας ακόμα υπόψη ότι η κορυφή δεν επιζεί της κυκλικής πόλωσης (Σχ. 3.3.2.1(α)), μπορεί να αποκλειστεί κάθε πιθανός συντονισμός, με κατάσταση ολικής στροφορμής $J = 3, 4$ ή 5 στο τρίτο, τέταρτο και πέμπτο φωτόνιο αντίστοιχα. Η πιθανότητα η προέλευσή της να αποδίδεται σε πενταφωτονική διέγερση μελών της $4p n_1 s \ ^1P_1$ ($n_1=13-15$) αυτοϊονιζόμενης σειράς Rydberg [NIST Ca I, Lange 1989] θεωρείται απίθανη λόγω της πολύ μικρής ενεργού διατομής των μεταβάσεων.

Ενδιαφέρον παρουσιάζει η καταγραφή του σήματος ιονισμού του Ca^+ για κυκλική πόλωση του laser, η οποία απεικονίζεται στο Σχ. (3.3.1.2β). Η κορυφή που αντιστοιχεί στην τετραφωτονική διέγερση της αυτοϊονιζόμενης κατάστασης $4p^2 \ ^1S_0$ έχει εξαφανιστεί πλήρως, κάτι που είναι αναμενόμενο μιας και σύμφωνα με τους κανόνες επιλογής (μέρος 1.3.5) μέσω απορρόφησης τεσσάρων φωτονίων διεγείρονται μόνο καταστάσεις με αριθμό ολικής στροφορμής $J=4$. Με τον ίδιο συλλογισμό αναμένεται να εξαφανιστεί πλήρως και η κορυφή που αντιστοιχεί στον τριφωτονικό συντονισμό της δέσμιας κατάστασης $3d4p \ ^1P_1$ για γραμμική πόλωση. Παρατηρείται όμως μια σχετικά αδύνατη, στενότερη και ελαφρά μετατοπισμένη κορυφή σε σχέση με το φάσμα της γραμμικής πόλωσης (Σχ. 3.3.1.2α). Προφανώς πρόκειται για μία επιπλέον φασματική γραμμή που επικαλύπτεται στο φάσμα γραμμικής πόλωσης από τον ισχυρό τριφωτονικό συντονισμό. Πιθανή ατέλεια της πόλωσης πρέπει να αποκλειστεί διότι αφενός η $4p^2 \ ^1S_0$ έχει εξαφανιστεί πλήρως αφετέρου η διάταξη παραγωγής κυκλικά πολωμένου φωτός έχει δοκιμαστεί επιτυχώς και σε άλλα πειραματικά σχήματα. Συνεπώς και σύμφωνα με τη διεθνή βιβλιογραφία πιθανή πηγή προέλευσης της κορυφής είναι μέσω διέγερσης μελών των $3d_j n d_j - 3d_j n g_j$ σειρών Rydberg αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων με ολική στροφορμή $J=4$ στο τέταρτο ή $J=5$ στο πέμπτο φωτόνιο. Η έλλειψη όμως φασματοσκοπικών δεδομένων για τις σειρές αυτές δε βοηθά στην ταυτοποίηση του συντονισμού [Luc-Koenig 1994, Assimopoulos 1994;1998].

Η εξάρτηση της απόδοσης ιονισμού του Ca^+ συναρτήσει της έντασης I της ακτινοβολίας laser για δύο επιλεγμένα μήκη κύματος φαίνεται στο σχήμα 3.3.2.2 για δύο επιλεγμένα μήκη κύματος (α) $\lambda = 683.7 \text{ nm}$ και (β) $\lambda = 678.5 \text{ nm}$. Το πρώτο βρίσκεται κοντά στην περιοχή της $4p^2 \ ^1S_0$ και επιλέχθηκε έτσι ώστε το σήμα ιονισμού που παράγεται σε αυτό το μήκος κύματος να βρίσκεται όσο το δυνατόν πιο μακριά από την επιρροή της δέσμιας





Σχήμα 3.3.2.2: Σήμα ιονισμού του Ca^+ συναρτήσει της έντασης της ακτινοβολίας laser (α) για $\lambda = 683.7 \text{ nm}$ και (β) για $\lambda = 678.5 \text{ nm}$. Στο (α) παρατηρείται καθαρά η παραγωγή Sr^{2+} σαφώς πριν την ένταση κορεσμού του Sr^+ ($\sim 9 \times 10^{10} \text{ W}/\text{cm}^2$).

κατάστασης $3d4p \ ^1P_1$, αλλά παράλληλα να διατηρεί τον τετραφωτονικό χαρακτήρα της διέγερσης. Το δεύτερο, αντιστοιχεί στην κύρια κορυφή του φάσματος απόδοσης ιονισμού του Ca^{2+} που θα συζητηθεί παρακάτω (Σχ 3.3.3.1(α)) αλλά δε συμπίπτει με κάποιο συντονισμό του φάσματος Ca^+ . Από την παρατήρηση των γραφικών παραστάσεων είναι φανερό ότι το σήμα ιονισμού Ca^+ αρχικά παρουσιάζει μία εξάρτηση της μορφής I^k ενώ από μία τιμή της έντασης και μετά παρατηρείται κορεσμός.

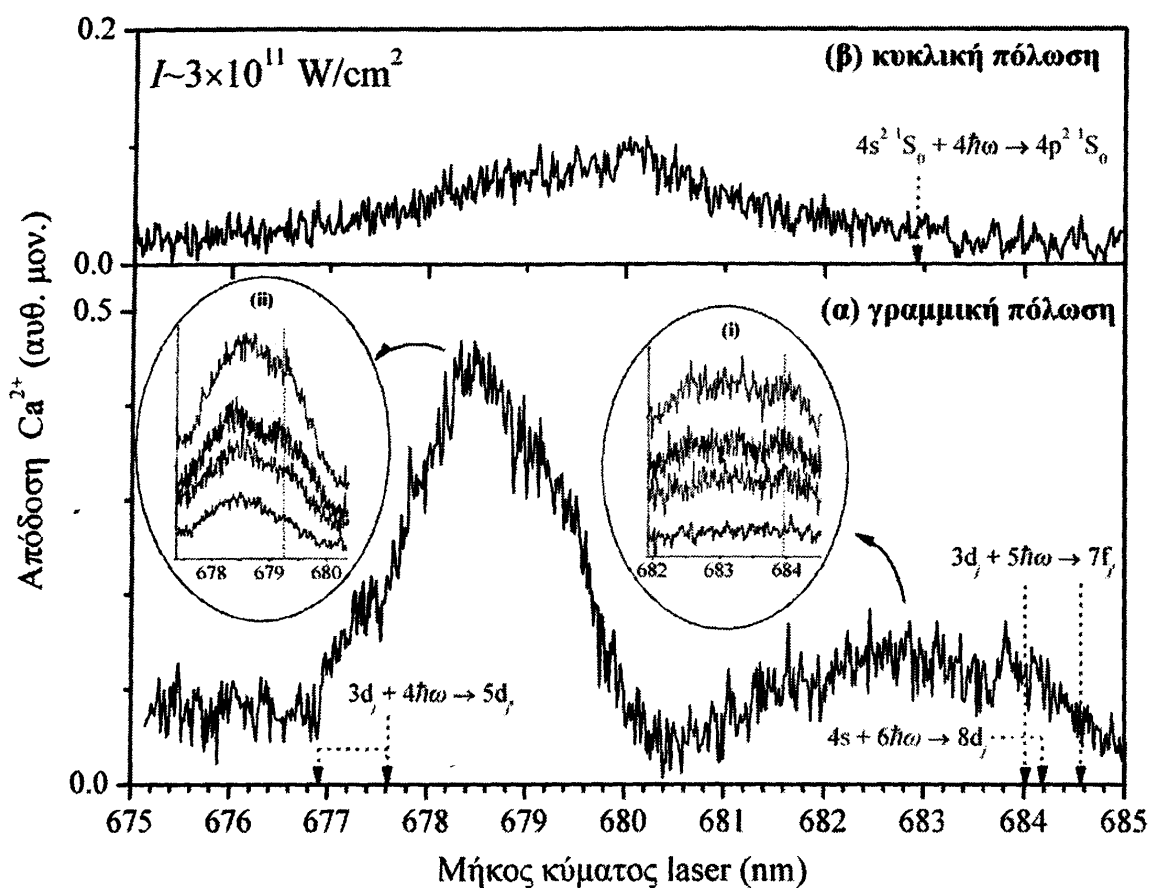
Για όλα τα μήκη κύματος που μελετήθηκαν η προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης I^k που εφαρμόστηκε στις γραμμικές (σε λογαριθμική κλίμακα) περιοχές των γραφημάτων παράγει μια τάξη μη-γραμμικότητας $K_+ \approx 4$. Για τα μήκη κύματος που παρουσιάζονται συγκεκριμένα, οι τάξεις μη-γραμμικότητας είναι $K_+ = 3.97 \pm 0.04$ για $\lambda = 683.7\text{nm}$ και $K_+ = 4.07 \pm 0.03$ για $\lambda = 678.5\text{nm}$. Τέτοιες τάξεις μη-γραμμικότητας είναι αναμενόμενες για διαδικασίες τετραφωτονικού ιονισμού. Όσον αφορά το κορεσμένο μέρος της γραφικής παράστασης, δεν είναι παράλληλο προς τον άξονα της έντασης αλλά παρουσιάζει κλίση ίση περίπου με $3/2$ η οποία ολοένα και μειώνεται, για λόγους οι οποίοι εξηγούνται στη συζήτηση για το Mg^+ .

3.3.3 Παραγωγή ιόντων Ca^{2+}

Η εξάρτηση της απόδοσης του Ca^{2+} συναρτήσει του μήκους κύματος του laser, για μέγιστη διαθέσιμη ένταση $\sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ και για (α) γραμμική, (β) κυκλική πόλωση παρουσιάζεται στο Σχ. (3.3.3.1). Το φάσμα για τη γραμμική πόλωση κυριαρχείται από δύο φαρδείς λοβούς, έναν ισχυρό με μέγιστο στα $\sim 678.5\text{nm}$ και έναν ασθενέστερο με κεντρικό μέγιστο στα $\sim 682.9\text{nm}$. Αντιπαραβάλλοντας το φάσμα γραμμικής πόλωσης του Ca^{2+} με το αντίστοιχο του Ca^+ (Σχ. 3.3.2.1(α)) παρατηρούμε ότι το δεύτερο μέγιστο είναι άμεσα συσχετισμένο με τις ατομικές μεταβάσεις $4s^2 \ ^1S_0 + 3\hbar\omega \rightarrow 3d4p \ ^1P_1$ και $4s^2 \ ^1S_0 + 4\hbar\omega \rightarrow 4p^2 \ ^1S_0$ (η θέση της τελευταίας μετάβασης σημειώνεται με το μαύρο κάθετο διακεκομμένο βέλος στο Σχ. 3.3.3.1(β)). Επιπλέον, κοντά στη περιοχή αυτή υπάρχουν οι ιοντικοί συντονισμοί $3d, \rightarrow 5\hbar\omega \rightarrow 7f_j$ [NIST Ca II] (Σχ.4.3.3.1(α)). Η αδιατάρακτη θέση των τελευταίων δεν συμπίπτει με το μέγιστο του σήματος Ca^{2+} . Όπως όμως διαπιστώθηκε και στην ανάλυση για το Μαγνήσιο, η εξάρτηση του σήματος Ca^{2+} από το μήκος κύματος του laser και η πιθανή εμφάνιση συντονισμών καθορίζεται από δύο παράγοντες: Πρώτον, από την ύπαρξη και



κατανομή πληθυσμού τόσο στην βασική όσο και στις πρώτες διεγερμένες καταστάσεις του ιόντος. Εάν το άτομο απορροφήσει τον ελάχιστο αναγκαίο αριθμό φωτονίων ν , που απαιτείται για να ιονιστεί, τότε πληθυσμός δημιουργείται μόνο στη θεμελιώδη κατάσταση του ιόντος. Εάν όμως το άτομο απορροφήσει στο ενεργειακό συνεχές αριθμό φωτονίων $\mu \geq \nu+1$ τότε εποικίζονται και διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις. Η κατανομή του πληθυσμού στα διεγερμένα επίπεδα εξαρτάται από τον δρόμο διέγερσης και τη δομή του ατόμου στη διαδικασία απορρόφησης των επιπλέον φωτονίων.



Σχήμα 3.3.3.1: Φάσμα του διπλά φορτισμένου ιόντος, Ca^{2+} , (α) για γραμμική και (β) για κυκλική πόλωση, συναρτήσει του μήκους κύματος laser για την μέγιστη διαθέσιμη ένταση $I \sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$. Τα κάθετα διακεκομμένα βέλη υποδεικνύουν τα μήκη κύματος που αντιστοιχούν (α) στις πιθανές γειτονικές (αδιατάραχτες) πολυφωτονικές ιοντικές μεταβάσεις και (β) στο συντονισμό της αυτοϊονιζόμενης κατάστασης $4p^2 \ ^1S_0$. Στα ένθετα του (α) παρουσιάζεται η εξάρτηση του Ca^{2+} στη περιοχή των δύο λοβών για διαφορετικές εντάσεις I .

Πιθανές συζεύξεις μεταξύ δύο ή και περισσότερων ατομικών καταστάσεων (δέσμιων και αυτοϊονιζόμενων – σχήμα κλιμακωτής διέγερσης) ευνοούν την απορρόφηση επιπλέον

φωτονίων. Επομένως, η κατανομή του πληθυσμού στην βασική κατάσταση του ιόντος και στα διεγερμένα ιοντικά επίπεδα εξαρτάται από το μήκος κύματος και την ένταση του laser.

Ο δεύτερος παράγοντας που καθορίζει τη διαδικασία σχηματισμού διπλά φορτισμένων ιόντων Ca^{2+} αφορά την ύπαρξη συντονισμών μεταξύ της βασικής και των πρώτων διεγερμένων επιπέδων του Ca^+ και υψηλότερα διεγερμένων καταστάσεών του, στη ίδια περιοχή μηκών κύματος και εντάσεων για τις οποίες ο πληθυσμός των αρχικών καταστάσεων είναι σημαντικός. Πρέπει να τονιστεί ότι στη διαδικασία αυτή μπορούν να συμμετέχουν και καταστάσεις για τις οποίες ενδέχεται οι αδιατάρακτες θέσεις τους να είναι αρχικά εκτός συντονισμού αλλά για κάποιες τιμές της έντασης του laser να έρχονται σε συντονισμό (ή και το αντίστροφο) λόγω του φαινομένου AC Stark. Συνεπώς, για αρκετά υψηλές εντάσεις ακτινοβολίας laser όπου το φαινόμενο αυτό είναι σημαντικό δεν αναμένουμε τέλεια σύμπτωση μεταξύ των θέσεων των παρατηρούμενων συντονισμών και αυτών που προκύπτουν από την ενεργειακή διαφορά των αδιατάρακτων ενεργειακών επιπέδων. Έχοντας τα παραπάνω υπ' όψη, η φαρδιά μορφή για $\lambda \sim 682.9\text{nm}$ αποδίδεται σε διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού του $3d_{3/2}$ επιπέδου του Ca^+ με το πέμπτο φωτόνιο να είναι σε συντονισμό με τις ιοντικές καταστάσεις $7f_{5/2,7/2}$ (δρόμος A_2 στο Σχ. 3.3.1.1). Στο ένθετο (i) του Σχ. 3.3.3.1(α) παρουσιάζεται η εξάρτηση του σήματος Ca^{2+} στη περιοχή της $4p^2 \ ^1S_0$ ($\lambda_{\text{laser}} \sim 682-684.5\text{nm}$) για διάφορες εντάσεις laser με τη χαμηλότερη να αντιστοιχεί στη καμπύλη με το μικρότερο σήμα. Στα φάσματα είναι εμφανής η παρουσία και μιας δεύτερης κορυφής στα $\sim 684\text{nm}$ (η θέση της σημειώνεται στο ένθετο με την κάθετη διακεκομμένη γραμμή). Ο μηχανισμός προέλευσης της κορυφής αυτής αποδίδεται σε διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού μέσω των $3d_{5/2} \xrightarrow{5\hbar\omega} 7f_{5/2,7/2}$ μεταβάσεων του Ca^+ , όπου και οι και δύο συντονιστικές μεταβάσεις που έχουν ως αρχικά επίπεδα τις συνιστώσες λεπτής υφής των $3d_j$ επιπέδων είναι μετατοπισμένες προς τα μπλε μήκη κύματος. Κοντά στην περιοχή βρίσκεται και το μήκος κύματος που αντιστοιχεί στον ιονισμό πληθυσμού βασικής ιοντικής κατάστασης μέσω των μεταβάσεων $4s_{1/2} \xrightarrow{6\hbar\omega} 8d_j$ [NIST Ca II] από όπου με την απορρόφηση ενός ακόμη φωτονίου σχηματίζεται το Ca^{2+} (δρόμος Γ στο Σχ. 3.3.1.1).

Όσον αφορά τον ισχυρό λοβό με μέγιστο στα $\sim 678.5\text{nm}$, παρατηρούμε ότι παρουσιάζει και κάποια δομή η οποία δεν διαχωρίζεται επαρκώς. Πιο συγκεκριμένα, παρατηρούνται δύο συντονισμοί, στα $\sim 678.5\text{nm}$ και $\sim 679.2\text{nm}$. Ο πρώτος βρίσκεται στην περιοχή της κορυφής στα $\sim 677.1\text{nm}$ που καταγράφεται στο φάσμα του Ca^+ (Σχ. 3.3.2.1(α))



και αποδίδεται σε μια διαδικασία εξαφωτονικού ιονισμού από τα αρχικά επίπεδα $3d_j$ του Ca^+ μέσω των ιοντικών μεταβάσεων $3d_j \rightarrow 4\hbar\omega \rightarrow 5d_j$ [NIST Ca II]. Η ερμηνεία των μηχανισμών παραγωγής των συντονισμών στα $\sim 678.5\text{nm}$ και $\sim 679.2\text{nm}$ δεν είναι τετριμμένη. Καταρχήν να σημειωθεί ότι ο τελευταίος εξελίσσεται και εμφανίζεται στο φάσμα με την αύξηση της έντασης του laser. Η συμπεριφορά αυτή απεικονίζεται καθαρά στο ένθετο του Σχ. 3.3.2.1(α) όπου παρουσιάζεται η εξάρτηση του Ca^{2+} για $\lambda_{\text{laser}} \sim (677-680)\text{nm}$ και για διαφορετικές εντάσεις ($10^{11}\text{ W/cm}^2 \leq I \leq 3 \times 10^{11}\text{ W/cm}^2$). Το φάσμα με το μικρότερο σήμα, όπου καταγράφεται μόνο το κεντρικό μέγιστο, αντιστοιχεί στην ελάχιστη ένταση για την οποία υπάρχει ανιχνεύσιμο σήμα Ca^{2+} . Με αύξηση της έντασης ο μηχανισμός γίνεται πιο ισχυρός και εκδηλώνεται με τη μεγιστοποίηση του σήματος στα 679.2nm που ξεχωρίζει από το κεντρικό μέγιστο έως τελικά για τις μεγαλύτερες εντάσεις όπου τείνει να συγχωνευτεί με την κύρια κορυφή στα $\sim 678.5\text{nm}$. Λαμβάνοντας υπόψη τις σχετικές ιοντικές μεταβάσεις που βρίσκονται στην υπό συζήτηση περιοχή μηκών κύματος μπορούμε να ισχυριστούμε ότι τα διπλά φορτισμένα ιόντα ασβεστίου προκύπτουν είτε από τα αρχικά επίπεδα $3d_j$ του Ca^+ μέσω των ιοντικών τετραφωτονικών μεταβάσεων $3d_j \rightarrow 5d_j$ είτε από τον μη συντονιστικό πενταφωτονικό ιονισμό των επιπέδων $4p_i$ (η ύπαρξη πληθυσμού στις καταστάσεις $4p_i$ του Ca^+ επιβεβαιώνεται και από το πείραμα φθορισμού που θα παρουσιαστεί στην επόμενη ενότητα). Παρατηρούμε ότι οι μεταβάσεις $3d_j \rightarrow 5d_j$ και $3d_j \rightarrow 7f_j$ είναι μετατοπισμένες σε σχέση με τις αδιατάραχτες θέσεις τους, οι μεν πρώτες προς τα «μπλε» μήκη κύματος οι δε δεύτερες προς τα «ερυθρά» με περίπου ίσες κατά απόλυτη τιμή μετατοπίσεις ($\sim 1.5\text{nm}$, βλ. Σχ. 3.3.3.1(α)). Οι μετατοπίσεις αυτές είναι πιθανό να οφείλονται στην ισχυρή επαγόμενη-από-το-πεδίο μονοφωτονική σύζευξη των $5d_j$ και $7f_j$, η οποία επιφέρει δυναμική μετατόπιση Stark των καταστάσεων αυτών με αντίθετα πρόσημα.

Εδώ κρίνεται σκόπιμο να εισάγουμε στη συζήτηση τα πειραματικά αποτελέσματα της απόδοσης του Ca^{2+} συναρτήσει της έντασης του laser τα οποία παρουσιάζονται στις $\log \times \log$ γραφικές παραστάσεις του Σχ. 3.3.2.2(α)-(β) για $\lambda=678.5\text{nm}$ και $\lambda=683.7\text{nm}$ αντίστοιχα. Για $\lambda=678.5\text{nm}$ το σήμα Ca^{2+} μπορεί να χωριστεί σε δύο περιοχές: στη γραμμική και στη περιοχή όπου το σήμα έχει έρθει σε κορεσμό. Η ένταση στην οποία ενώνονται οι δύο περιοχές (ένταση κορεσμού I_{sat}) είναι στη συγκεκριμένη περίπτωση $I_{\text{sat}} \sim 10^{11}\text{ W/cm}^2$. Στο ίδιο σχήμα, συγκρίνοντας με την αντίστοιχη γραφική παράσταση του σήματος Ca^+ παρατηρούμε ότι το σήμα Ca^{2+} παράγεται σαφώς πριν την ένταση κορεσμού του Ca^+ (βλ. Σχ. 3.3.2.2(β) την

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

κάθετη στον άξονα της έντασης διακεκομμένη γραμμή). Η δε προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης στις πειραματικές μετρήσεις της γραμμικής περιοχής του Ca^{2+} παράγει τάξη μη-γραμμικότητας ίση με $K_{678.5}^{2+} \sim 9.8 \pm 0.9 (\approx 10)$. Αυτή η τάξη μη-γραμμικότητας υπαινίσσεται διαδικασία απορρόφησης τουλάχιστον δέκα φωτονίων. Σύμφωνα με το ενεργειακό διάγραμμα του Σχ. (3.3.1.1) τέτοια διαδικασία (απορρόφησης δέκα φωτονίων) απεικονίζει ο δρόμος (A₁) όπου διπλά φορτισμένα ιόντα παράγονται από τα 3d_j αρχικά επίπεδα (με μεταβάσεις κοντά σε συντονισμό με τα επίπεδα 5d_j) στα οποία πληθυσμός δημιουργείται κατά την αποδιέγερση του ατομικού συστήματος αμέσως μετά την απορρόφηση ενός επιπλέον φωτονίου μέσα στο ενεργειακό συνεχές. Επίσης παρόμοιας τάξης μη-γραμμικότητα δίνει και η διαδικασία παραγωγής Ca^{2+} από τα 4p_i ως αρχικά επίπεδα (δρόμος B). Πρέπει να σημειωθεί όμως ότι σύμφωνα με τις βάσεις φασματοσκοπικών δεδομένων [NIST Ca II], στην περιοχή μηκών κύματος υπό συζήτηση (~678.5nm) δεν υπάρχει συντονισμός των 4p_i με υψηλότερες καταστάσεις του Ca^+ υπονοώντας σε αυτή την περίπτωση διαδικασία πενταφωτονικού μη-συντονιστικού ιονισμού από τα 4p_i. Από την καταγραφόμενη τάξη μη-γραμμικότητας μπορεί να συμπεράνει κανείς ότι για το συγκεκριμένο μήκος κύματος οι ενδιάμεσες σχεδόν συντονιστικές διαδικασίες τόσο στο Ca όσο και στο Ca^+ οι οποίες συνεισφέρουν στην παραγωγή Ca^{2+} δεν εμφανίζουν κορεσμό. Πρέπει επίσης να τονιστεί ότι η παραπάνω ανάλυση στηρίζεται στην παραγωγή του διπλού ιόντος μέσω ιονισμού του ιονισμού του απλού ιόντος από τη θεμελιώδη ή χαμηλά διεγερμένες καταστάσεις του. Σύμφωνα με τη βιβλιογραφία, σε αυτή την περίπτωση αναμένεται η παραγωγή του διπλά φορτισμένου ιόντος να ξεκινά στην περιοχή εντάσεων που το απλά φορτισμένο ιόν εμφανίζει κορεσμό. Στα αποτελέσματα μας όμως (Σχ. 3.3.2.2(β)) είναι φανερό η ανίχνευση Ca^{2+} αρκετά πριν επέλθει κορεσμός στο σήμα του Ca^+ (δηλ. πολύ πριν την εξάντληση των ατόμων Ca). Επίσης, από το ενεργειακό διάγραμμα του Σχ. 3.3.1.1 παρατηρούμε ότι για τον απευθείας διπλό ιονισμό του Ca απαιτούνται 10 φωτόνια, αριθμός που αντιστοιχεί στην παρατηρούμενη τάξη μη-γραμμικότητας. Τα ευρήματα αυτά θα μπορούσαν να θεωρηθούν ενδείξεις για την παραγωγή Ca^{2+} με απευθείας διπλό ιονισμό, παρόλο που τα πειράματα διεξήχθησαν σε μια θεωρητικά δυσμενή για τον μηχανισμό αυτό περιοχή παραμέτρων (ns παλμοί laser, μέτριες εντάσεις πεδίου). Αδιαμφισβήτητες αποδείξεις θα παρείχε ένα πείραμα ανάλυσης ενεργειών φωτοηλεκτρονίων.



Η γραφική παράσταση του Σχ. 3.3.2.2(α) απεικονίζει την εξάρτηση του σήματος Ca^{2+} για $\lambda = 683.7 \text{ nm}$. Παρατηρούμε ότι τα διπλά φορτισμένα ιόντα παράγονται όταν στο σήμα του Ca^+ έχει ξεκινήσει σαφώς να επέρχεται κορεσμός, με την προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης στα πειραματικά δεδομένα να δίνει μια τάξη μη-γραμμικότητας $K_{683.7}^{2+} \sim 7$. Η τιμή είναι σε σχετική συμφωνία με το σενάριο παραγωγής του Ca^{2+} που υποθέτει τη δημιουργία των διπλά φορτισμένων ιόντων (σε αυτά τα μήκη κύματος) μέσω των ιοντικών μεταβάσεων $3d_j - 5\hbar\omega \rightarrow 7f_j$ (δρόμος A_2 στο Σχ. 3.3.1.1). Η συμπεριφορά του Ca^{2+} συναρτηθεί της έντασης του laser για $\lambda = 683.7 \text{ nm}$ αντικατοπτρίζει τη συμπεριφορά όλων των υπόλοιπων μηκών κύματος που μελετήθηκαν, με την παραγόμενη τάξη μη-γραμμικότητας να είναι στις υπόλοιπες περιπτώσεις ίση με $K^{2+} \sim 7 - 9$.

Στο Σχ. (3.3.3.1(β)) καταγράφεται η εξάρτηση της απόδοσης του Ca^{2+} συναρτηθεί του μήκους κύματος του laser για κυκλική πόλωση. Παρατηρούμε ότι έχουν εξαφανιστεί οι λοβοί στα $\sim 682.9 \text{ nm}$ και $\sim 678.5 \text{ nm}$ ενώ καταγράφεται ένας κεντρικός λοβός με μέγιστο στα $\sim 680 \text{ nm}$. Πρέπει να αναφερθεί ότι στην ενεργειακή περιοχή υπό μελέτη όλες οι ιοντικές μεταβάσεις είναι απαγορευμένες σύμφωνα με τους κανόνες επιλογής για κυκλική πόλωση. Επίσης, εντός του ατόμου δεν υπάρχει στην περιοχή επιτρεπτή φασματική γραμμή στο εύρος απορρόφησης των τεσσάρων πρώτων φωτονίων. Η παρατηρούμενη εξάρτηση του σήματος Ca^{2+} για κυκλική πόλωση από το μήκος κύματος του laser προέρχεται από το προφίλ διέγερσης αυτοϊονιζόμενης κατάστασης η οποία δεν καταγράφεται στο φάσμα του Ca^+ (για γραμμική πόλωση), συνεπώς οφείλεται σε διέγερση από τη βασική ατομική κατάσταση διπλά διεγερμένης αυτοϊονιζόμενης κατάστασης τουλάχιστον στο πέμπτο φωτόνιο με $J=5$. Κατόπιν, το σύστημα αποδιεγείρεται στα $3d_j$ και $4p_i$ ιοντικά επίπεδα από όπου μέσω μη-συντονιστικής εξαφωτονικής και πενταφωτονικής διαδικασίας ιονισμού αντίστοιχα σχηματίζεται το Ca^{2+} .

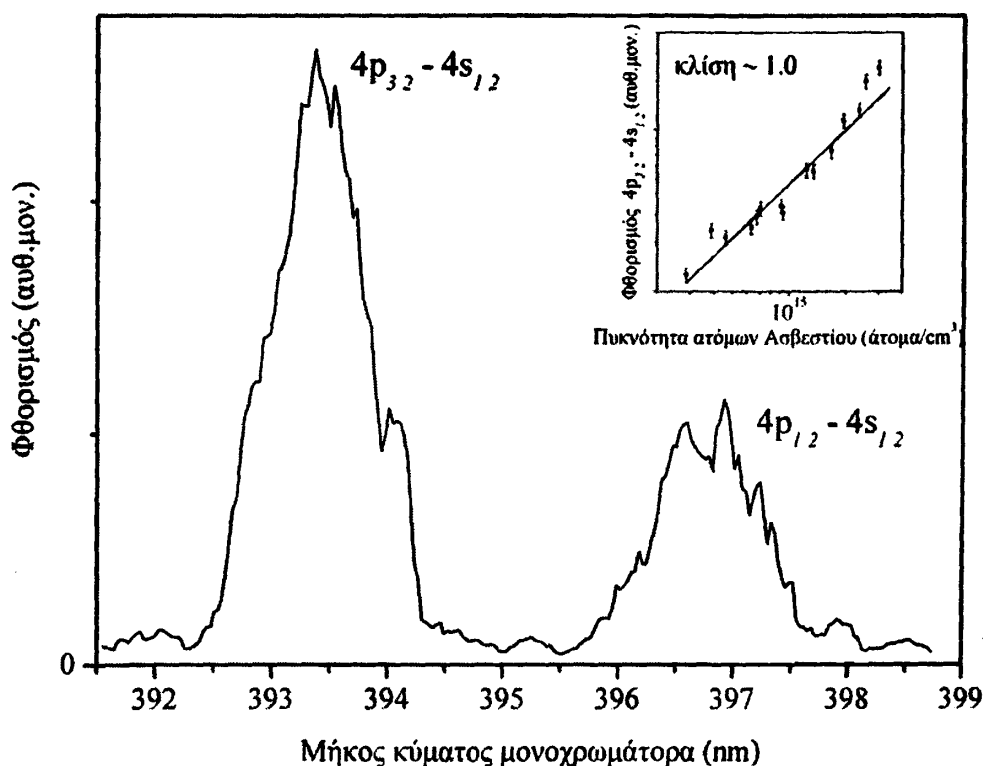
3.3.4 Σχηματισμός Ca^+ σε διεγερμένες καταστάσεις: Απόδοση ιοντικού φθορισμού

Τα σενάρια που αναπτύχθηκαν στην προηγούμενη ενότητα για τον κυριότερο μηχανισμό παραγωγής διπλά φορτισμένων ιόντων (διαδοχικό ιονισμό) υποθέτουν τη δημιουργία πληθυσμού στα πρώτα διεγερμένα ιοντικά επίπεδα $3d_{3/2,5/2}$ και $4p_{1/2,3/2}$ του Ca^+ .

Για να επιβεβαιώσουμε την παραπάνω υπόθεση προχωρήσαμε σε ένα πείραμα ανίχνευσης φθορισμού. Μια τυπική σάρωση του μονοχρωμάτορα στην περιοχή μηκών

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

κύματος $\sim(390 - 400)$ nm απεικονίζεται στο Σχ. (3.3.4.1), όπου ξεχωρίζουν καθαρά οι δυο γραμμές που αντιστοιχούν στις μεταβάσεις $4p_{1/2,3/2} \rightarrow 4s_{1/2}$ του Ca^+ . Το μήκος κύματος του laser είναι σταθερό και ρυθμισμένο στην τετραφωτονική διέγερση της $4p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενης κατάστασης από τη βασική κατάσταση του Ca. Τα φωτόνια που εκπέμπονται κατά την μετάβαση $4p_i \rightarrow 3d_j$ στα ~ 855.0 nm ανήκουν στην περιοχή του υπέρυθρου φάσματος αλλά λόγω έλλειψης του κατάλληλου ανιχνευτικού εξοπλισμού δεν είναι δυνατή η ανίχνευση και καταγραφή τους. Η αποδιέγερση πληθυσμού από τα επίπεδα $3d_j$ στη βασική κατάσταση $4s_{1/2}$ του ιόντος είναι απαγορευμένη σύμφωνα με τους κανόνες επιλογής για ηλεκτρική διπολική ροπή ενώ η αντίστοιχη μετάβαση ηλεκτρικής τετραπολικής ροπής αναμένεται να είναι πολύ ασθενής. Πέραν τούτου δεν ανιχνεύεται καμία άλλη γραμμή που να αποδίδεται σε μεταβάσεις του Ca^+ .



Σχήμα 3.3.4.1: Γραφική παράσταση του σήματος φθορισμού του Ca συναρτήσει του μήκους κύματος του μονοχρωμάτορα. Το μήκος κύματος του laser είναι ρυθμισμένο στην ατομική μετάβαση $4s^2 \ ^1S_0 \xrightarrow{4\hbar\omega} 4p^2 \ ^1S_0$. Στο ένθετο παρουσιάζεται η εξάρτηση του σήματος φθορισμού (της ιοντικής μετάβασης $4p_{3/2} \rightarrow 4s_{1/2}$) από την ατομική πυκνότητα ατόμων Ca. Η ένταση του laser και στις δύο γραφικές παραστάσεις είναι $I \sim 2 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$.

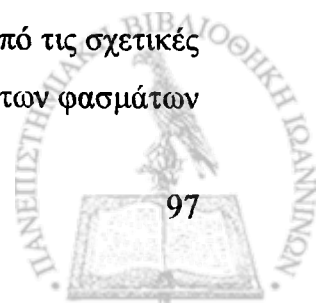
Ιδιαίτερη προσοχή δόθηκε στον έλεγχο της θερμοκρασίας λειτουργίας του φούρνου ώστε να παραμείνουμε στη γραμμική περιοχή εξάρτησης του σήματος φθορισμού από την ατομική

πυκνότητα προκειμένου να αποφευχθούν φαινόμενα κρούσεων εντός του κελιού ατμών. Στο ένθετο του Σχ. (3.3.4.1) παρουσιάζεται η γραφική παράσταση του σήματος φθορισμού συναρτήσει της ατομικής πυκνότητας Ασβεστίου με το μήκος κύματος του μονοχρώματσα να είναι σταθερό στη μετάβαση $4p_{3/2} \rightarrow 4s_{1/2}$. Όλες οι μετρήσεις που παρουσιάζονται εδώ έχουν καταγραφεί στη γραμμική περιοχή της συνάρτησης για πυκνότητες $\leq 10^{15}$ άτομα/cm³. Επιπλέον το σήμα φθορισμού βρέθηκε να είναι πρακτικά σταθερό για τις εμπλεκόμενες πιέσεις προστατευτικού αερίου He (~3–5 torr) αποφεύγοντας και σε αυτή την περίπτωση φαινόμενα κρούσεων.

Αντίθετα με την περίπτωση του Μαγνησίου όπου οι μοναδικές γραμμές που ανιχνεύονται στα όρια της περιοχής λειτουργίας του μονοχρώματσα, είναι οι γραμμές που αντιστοιχούν στις μεταβάσεις $3p_i \rightarrow 3s_{1/2}$ του Mg⁺, στην περίπτωση του Ασβεστίου ανιχνεύονται και άλλες γραμμές οι οποίες αποδίδονται σε αποδιεγέρσεις μεταξύ δέσμιων καταστάσεων του ατόμου [NIST Ca I]. Επομένως δεν είναι δυνατή η απομάκρυνση του μονοχρώματσα και η καταγραφή του σήματος φθορισμού απευθείας στον φωτοπολλαπλασιαστή (κάτι που θα αύξανε ποσοτικά το σήμα φθορισμού διευκολύνοντας την καταγραφή του), διότι πλέον ο συνολικός εκπεμπόμενος φθορισμός δεν αποτελείται μόνο από τις μεταβάσεις υπό μελέτη αλλά και από άλλες «παρασιτικές» μεταβάσεις. Συνεπώς για την καταγραφή του σήματος φθορισμού συναρτήσει του μήκους κύματος του laser είναι αναγκαίο να επιλεγεί ένα σταθερό μήκος κύματος στο μονοχρώματσα.

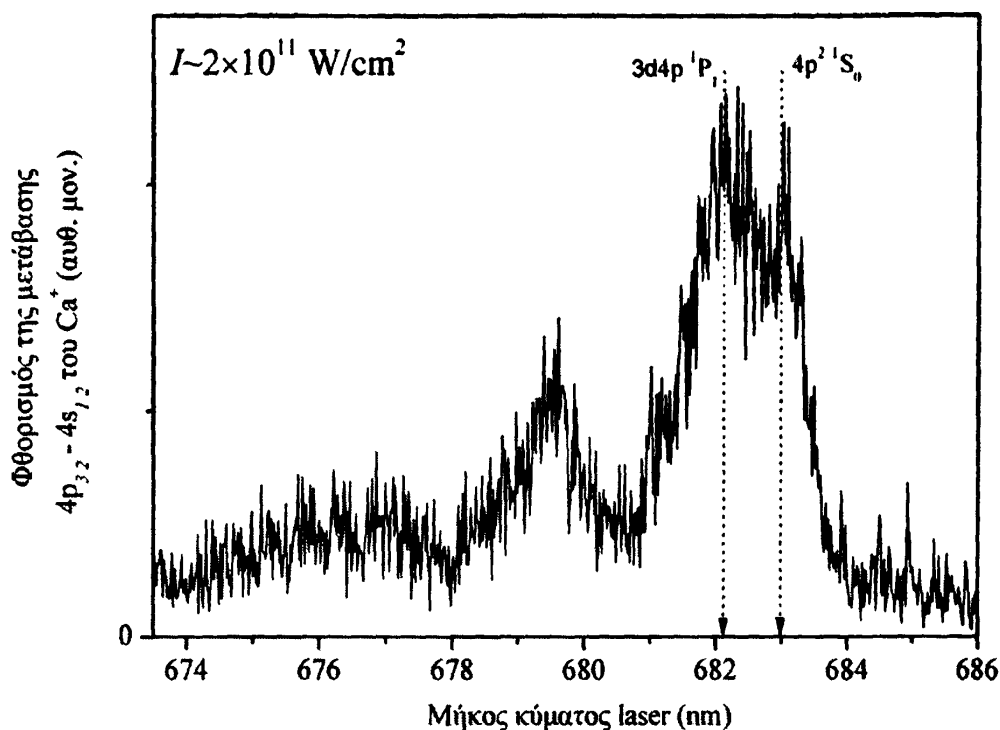
Ο παραγόμενος φθορισμός είναι σε άμεση αναλογία με τον πληθυσμό που δημιουργείται στα ιοντικά επίπεδα $4p_i$, επομένως η μελέτη του φάσματος δίνει πληροφορίες τόσο για τις ατομικές καταστάσεις που εμπλέκονται στη διαδικασία απορρόφησης των δύο επιπλέον φωτονίων που απαιτούνται για να ξεπεραστεί ενεργειακά το σχετικό ιοντικό κατώφλι όσο και για τον πληθυσμό που διεγείρεται προς το σχηματισμό διπλά φορτισμένων ιόντων.

Η εξάρτηση του φθορισμού που προέρχεται από την αποδιέγερση $4p_{3/2} \rightarrow 4s_{1/2}$ του Ca⁺, στα 393.4nm συναρτήσει του μήκους κύματος του γραμμικά πολωμένου laser και για ένταση $I \sim 2 \times 10^{11}$ W/cm² απεικονίζεται στο Σχ. (3.3.4.2). Η συμπεριφορά του φθορισμού της μετάβασης $4p_{1/2} \rightarrow 4s_{1/2}$ ως συνάρτησης του μήκους κύματος του laser είναι παρόμοια, με μόνη διαφορά τη μείωση του συνολικού σήματος, όπως αυτό διαφαίνεται και από τις σχετικές εντάσεις (βλ. Σχ. 3.3.4.1). Παρατηρούνται σημαντικές ομοιότητες μεταξύ των φασμάτων



Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

φθορισμού και Ca^+ (Σχ. 3.3.2.1(α)) με τις δύο ισχυρές κορυφές που αποδίδονται στη διέγερση της $3d4p \ ^1P_1$ δέσμιας και της $4p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενης κατάστασης να αποτυπώνονται αντίστοιχα και εδώ. Επιπλέον η φαρυδιά κορυφή που παρατηρείται στο Σχ. 3.3.4.2 για $\lambda \sim 676.8$ είναι κοντά στην περιοχή της γραμμής του φάσματος Ca^+ για $\lambda \sim 677.1 \text{ nm}$.



Σχήμα 3.3.4.2: Σήμα φθορισμού συναρτήσει του μήκους κύματος του laser και για ένταση $I \sim 2 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$. Ο μονοχρωμάτορας είναι ρυθμισμένος στο μήκος κύματος της ιοντικής μετάβασης $4p_{3/2} \rightarrow 4s_{1/2}$.

Στο φάσμα καταγράφεται μία ακόμη κορυφή για $\lambda \sim 679.4 \text{ nm}$ η οποία είναι σε προφανή συσχέτιση με το συντονισμό στο σήμα του Ca^{2+} για $\lambda \sim 679.2 \text{ nm}$ παρέχοντας μια ισχυρή ένδειξη ότι η κορυφή του Ca^{2+} οφείλεται σε πενταφωτονικό μη-συντονιστικό ιονισμό με τα $4p_i$ ως αρχικά επίπεδα. Το σχετικά αδύναμο σήμα φθορισμού της γραμμής (εν συγκρίσει με το σήμα στη περιοχή της $4p^2 \ ^1S_0$) είναι πολύ πιθανό να συνδέεται με το αντίστοιχα ισχυρό σήμα που καταγράφεται στο φάσμα του Ca^{2+} για $\lambda \sim 679.2 \text{ nm}$, δηλ. για τις εμπλεκόμενες εντάσεις και στην υπό συζήτηση περιοχή μηκών κύματος ευνοείται ο σχηματισμός Ca^{2+} μέσω των $4p_i$ επιπέδων.

Η δημιουργία πληθυσμού στις διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις $4p_i$ οφείλεται αναμφισβήτητα στην απορρόφηση δύο επιπλέον φωτονίων από τον ελάχιστο αριθμό που



απαιτείται για να ιονιστεί το άτομο (βλ. Σχ. 3.3.1.1). Η απορρόφηση εκδηλώνεται μέσω των ισχυρών αλληλεπιδράσεων μεταξύ δέσμιων και αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων που επάγονται από το ισχυρό πεδίο laser. Οι μονοφωτονικές συζεύξεις αφορούν κυρίως τα σχήματα κλιμακωτής διέγερσης $3d4p\ ^1P_1 \xrightarrow{\hbar\omega} 4p^2\ ^1S_0 \xrightarrow{\hbar\omega} 4pns\ ^{1,3}P_1$ ($n \sim 11 - 15$) και $3d4p\ ^1P_1 \xrightarrow{\hbar\omega} 4p^2\ ^1S_0 \xrightarrow{\hbar\omega} 4pnd\ ^1P_1$ ($n \sim 10, 11$). Αμφότερα τα δύο σχήματα συζεύξεων αναμένεται να είναι ισχυρά εξαιτίας της παρουσίας της δέσμιας κατάστασης $4d4p\ ^1P_1$ που περιλαμβάνει ηλεκτρόνιο "4p". Το ισχυρό σήμα Ca^{2+} που παρατηρείται για $\lambda \sim 678.5\text{nm}$ σε σχέση με την αδύναμη κορυφή στην περιοχή της $4p^2\ ^1S_0$ (βλ. Σχ. 3.3.3.1(α)) υποδηλώνει το σημαντικό ρόλο που διαδραματίζει (ακόμα κι όταν το μήκος κύματος δεν είναι σε συντονισμό) η έντονη ηλεκτρονιακή συσχέτιση της $4p^2\ ^1S_0$ τόσο με την δέσμια κατάσταση $3d4p\ ^1P_1$ όσο και με τις $(4pns, 4pnd)\ ^{1,3}P_1$ αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις.

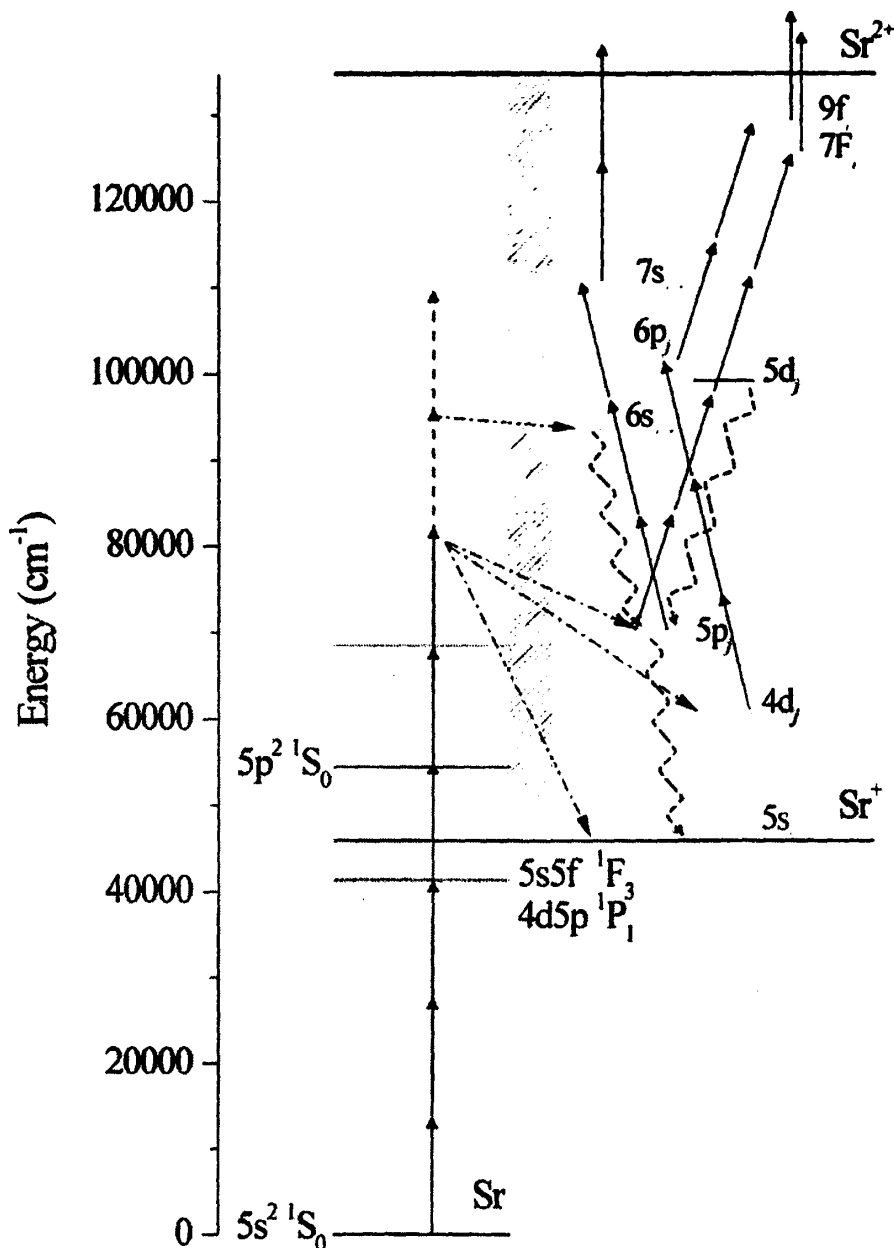
3.4 Στρόντιο

3.4.1 Διάγραμμα ενεργειακών επιπέδων του Στροντίου

Οι ενεργειακές θέσεις των κύριων ατομικών και ιοντικών καταστάσεων που διαδραματίζουν ρόλο στη δυναμική της διέγερσης καθώς και οι μηχανισμοί παραγωγής Sr^{2+} σχεδιάζονται στο Σχ. 3.4.1. Ο κάθετος άξονας είναι βαθμονομημένος σε μονάδες ενέργειας cm^{-1} . Η ενεργειακή περιοχή υπό μελέτη έχει επιλεγεί έτσι ώστε η $5p^2\ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενη κατάσταση να μπορεί να διεγερθεί με απορρόφηση τεσσάρων φωτονίων από την $5s^2\ ^1S_0$ βασική κατάσταση του Sr. Στο επίπεδο του τρίτου φωτονίου υπάρχουν τρεις δέσμιες καταστάσεις, οι $5s5f\ ^1F_3$, $5s5f\ ^3F_3$ [Moore 1958] (δε σημειώνεται στο Σχ. 3.4.1) και η διπλά διεγερμένη $4d5p\ ^1P_1$. Η τελευταία διαταράσσει ισχυρά τα χαμηλότερα μέλη της $5snp\ ^1P_1$ σειράς (στη περιοχή για $n=7-8$) και αντιστοιχεί στο επίπεδο που έχει το μεγαλύτερο ποσοστό (~17%) από $4d5p$ χαρακτήρα [Vaack 1988]. Είναι η μοναδική κατάσταση ανάμεσα στις τρεις παραπάνω που μπορεί να συνδεθεί ακτινοβολητικά μέσω μονοφωτονικής σύζευξης με την $5p^2\ ^1S_0$ κατάσταση. Το $5s5f\ ^1F_3$ επίπεδο είναι επίσης ισχυρά διαταραγμένο από την $4d5p\ ^1F_3$ κατάσταση [Hansen and Persson 1977], συνεπώς έχει σε μεγάλο ποσοστό χαρακτήρα διπλά διεγερμένης κατάστασης. Η ιδιαιτερότητα αυτή μπορεί να ισχυροποιήσει την ακτινοβολητική της σύζευξη με υψηλότερα διεγερμένες αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις. Η $5s5f\ ^3F_3$ δεν εκδηλώνεται στα φάσματα για αυτό και δε θα μας απασχολήσει στη συνέχεια της συζήτησης.

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

Το τέταρτο φωτόνιο βρίσκεται ενεργειακά κοντά σε αριθμό χαμηλά διεγερμένων μελών της $4dnl$ αυτοϊονιζόμενης σειράς με ενεργό κβαντικό αριθμό $n \sim 5$. Σύμφωνα με τους κανόνες επιλογής ηλεκτρικής διπολικής μετάβασης ο αριθμός ολικής στροφορμής αυτών των τετραφωτονικά διεγερμένων καταστάσεων μπορεί να είναι $J=0, 2$ και 4 όταν το φως είναι γραμμικά πολωμένο. Όσον αφορά το πέμπτο φωτόνιο, βρίσκεται κοντά και για να είμαστε



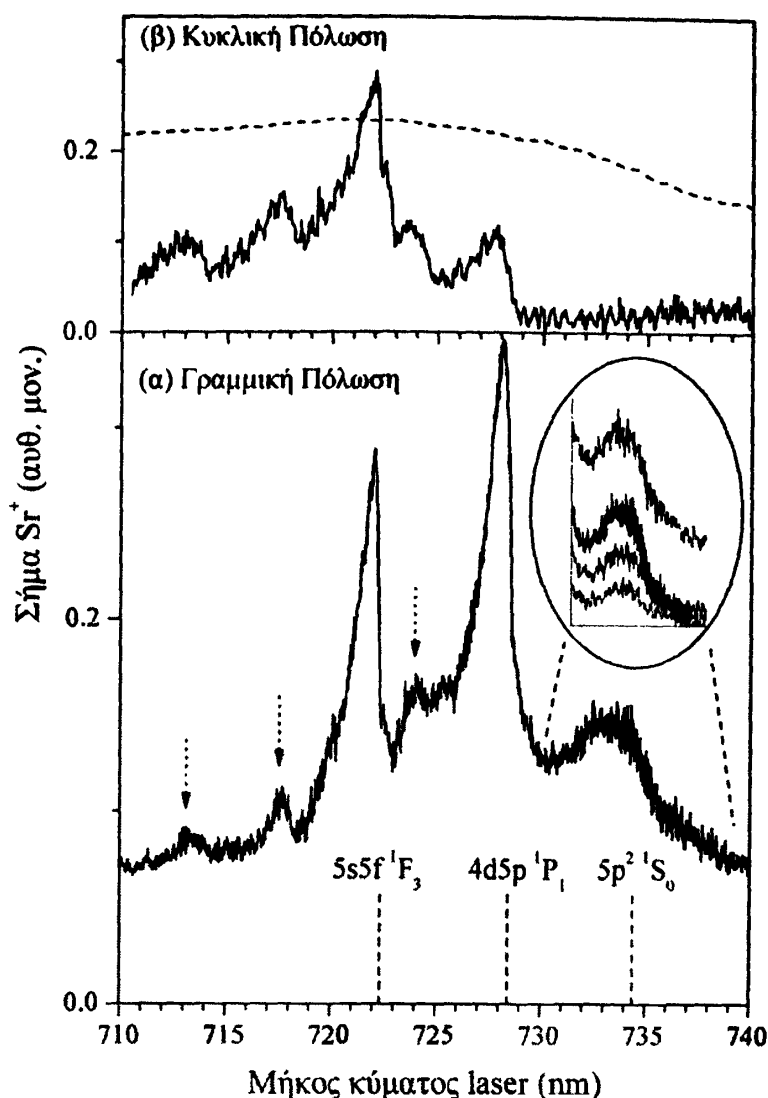
Σχήμα 3.4.1: Απλοποιημένο ενεργειακό διάγραμμα Sr – Sr⁺ υπό κλίμακα απεικονίζοντας τις ατομικές και ιοντικές καταστάσεις που εμπλέκονται στη παρούσα μελέτη καθώς και τις κυριότερες μεταβάσεις. Οι κυματιστές διακεκομμένες γραμμές συμβολίζουν τις γραμμές φθορισμού που καταγράφονται.



ακριβείς ξεπερνά (κατά τη σάρωση του μήκους κύματος laser) το $5p_{1/2}$ κατώφλι ιονισμού. Για τις περιττής ομοτιμίας $5p_{1/2,3/2}nl$ σειρές Rydberg αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων (με $J=1,3,5$ για γραμμική πόλωση του laser) οι αντίστοιχοι ενεργοί κβαντικοί αριθμοί είναι $n \geq 20$ και $n \sim 20 - 40$ αντίστοιχα. Τα διαθέσιμα φασματοσκοπικά δεδομένα περιορίζονται για $J \leq 3$ και $l \leq 2$ [Xu 1985;1986, Dai and Lu 1986, Dai 1986]. Με απορρόφηση ενός φωτονίου πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού το σύστημα αποδιεγείρεται στις $4d_j$ ενεργειακές καταστάσεις του Sr^+ , ενώ με απορρόφηση δύο φωτονίων πληθυσμός δημιουργείται και στα $5p_i$ ιοντικά επίπεδα. Ο πληθυσμός αποδιεγείρεται στη βασική κατάσταση $5s_{1/2}$ του Sr^+ καθώς και στα επίπεδα $4d_j$ εκπέμποντας φθορισμό. Οι $4d_j$ και $5p_i$ διεγερμένες καταστάσεις του ιόντος είναι τα αρχικά επίπεδα από τα οποία ξεκινούν οι κύριοι μηχανισμοί δημιουργίας Sr^{2+} στην ενεργειακή περιοχή υπό μελέτη. Ένας δρόμος ξεκινά από τις $4d_j$ ιοντικές διεγερμένες καταστάσεις μέσω διαδικασίας εξαφωτονικού ιονισμού με το τρίτο και πέμπτο φωτόνιο σε συντονισμό με τα $6p_i$ και $9f_j$ επίπεδα αντίστοιχα. Από τα $5p_i$ επίπεδα εκκινούν δύο δρόμοι που αφορούν διαδικασία πενταφωτονικού ιονισμού που οδηγούν στην παραγωγή Sr^{2+} . Ο πρώτος μέσω συντονισμού στο τρίτο φωτόνιο με το $7s_{1/2}$ επίπεδο ενώ ο δεύτερος μέσω διφωτονικού και τετραφωτονικού συντονισμού με τα $5d_j$ και $7f_j$ επίπεδα αντίστοιχα. Τα πειραματικά ευρήματα στη μελέτη φθορισμού προσφέρουν ισχυρές ενδείξεις ότι λαμβάνει χώρα απορρόφηση τεσσάρων φωτονίων πάνω από το πρώτο δυναμικό ιονισμού, αφήνοντας το ιόν στις $6s_{1/2}$ και $5d_j$ διεγερμένες καταστάσεις από τις οποίες ανιχνεύεται φθορισμός προς τα επίπεδα $5p_i$ του Sr^+ .

3.4.2 Παραγωγή ιόντων Sr^+

Στο Σχ. (3.4.2.1) παρουσιάζεται ένα τυπικό φάσμα ιονισμού Sr^+ συναρτήσει του μήκους κύματος στην περιοχή της διπλά διεγερμένης $5p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενης κατάστασης για (α) γραμμική και (β) κυκλική πόλωση laser και για ένταση $\sim 3 \times 10^{11}$ W/cm², λίγο μικρότερη από την μέγιστη δυνατή διαθέσιμη. Αύξηση (μείωση) της έντασης της παλμικής ακτινοβολίας οδηγεί μόνο σε αντίστοιχη αύξηση (μείωση) του σήματος ιονισμού των επί μέρους συντονισμών που παρατηρούνται στο φάσμα και όχι στην ενεργειακή μετατόπισή τους. Όλα τα φάσματα που παρουσιάζονται έχουν βαθμονομηθεί με τη βοήθεια οπτογαλβανικού σήματος από λυχνία κοίλης καθόδου Ar.



Σχήμα 3.4.2.1: (α) Γραφική παράσταση του σήματος Sr^+ συναρτήσει του μήκους κύματος του laser για γραμμική πόλωση και ένταση laser $I \sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$. Οι αναμενόμενες, αδιατάραχτες θέσεις των γραμμών που αντιστοιχούν στις $5s5f \ ^1F_3$, $4d5p \ ^1P_1$ δέσμιες καταστάσεις και στην $5p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενη κατάσταση σημειώνονται με τις μαύρες κατακόρυφες γραμμές. (β) Όμοια με το (α) αλλά για κυκλική πόλωση του laser ενώ με τη μαύρη διακεκομμένη γραμμή έχει σχεδιαστεί η γραφική παράσταση της ενέργειας του παλμού του laser συναρτήσει του μήκους κύματος. Στο ένθετο του (α) απεικονίζεται η εξάρτηση του σήματος στη περιοχή της $5p^2 \ ^1S_0$ για διάφορες εντάσεις laser.

Είναι φανερό ότι το φάσμα του Sr^+ παρουσιάζει δομή επάνω σε μη μηδενικό υπόβαθρο ιονισμού το οποίο οφείλεται στη διέγερση καναλιών του συνεχούς με ολικό αριθμό στροφορμής $J=0-5$. Η δομή οφείλεται σε συντονισμούς, από τη βασική κατάσταση του ατόμου, τόσο δέσμιων όσο και αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων. Η φαρδιά κορυφή στα $\sim 733.4 \text{ nm}$ αποδίδεται στην τετραφωτονική διέγερση της $5p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενης κατάστασης η οποία έχει πλάτος αυτοϊονισμού $\sim 230 \text{ cm}^{-1}$ και βρίσκεται ενεργειακά $(54451.0 \pm 30) \text{ cm}^{-1}$ [Komptsas 1991] πάνω από τη βασική κατάσταση του Sr. Οι δύο ισχυρότεροι συντονισμοί

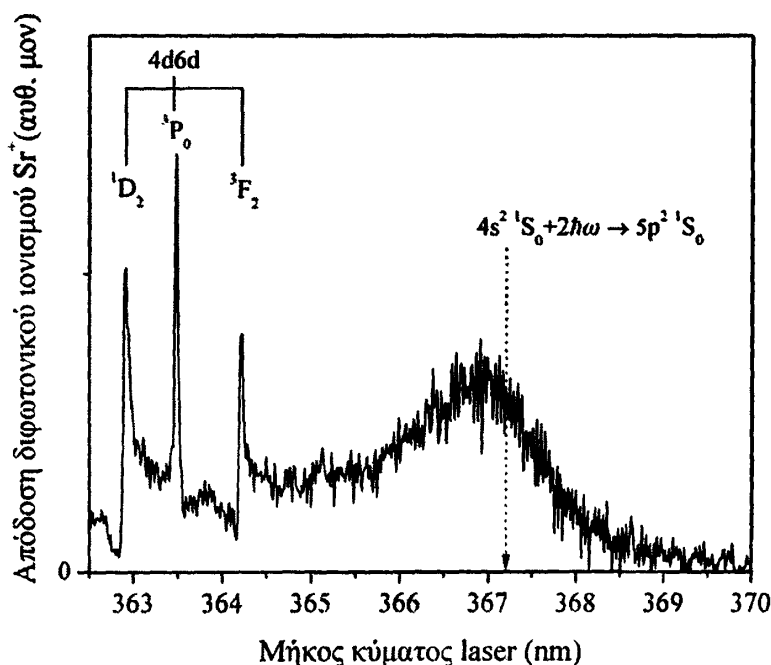


στο φάσμα του Sr^+ οφείλονται σε τετραφωτονικές διαδικασίες ιονισμού με το τρίτο φωτόνιο σε συντονισμό με δέσμιες καταστάσεις. Η ισχυρότερη γραμμή στα 728.2 nm αποδίδεται στη διπλά διεγερμένη $4d5p \ ^1P_1$ [Vaeck 1988] ενώ η δεύτερη στα 722.0 nm στην $5s5f \ ^1F_3$ [, Moore 1958] (βλ. και ενεργειακό διάγραμμα του Σχ 3.4.1). Οι δύο καταστάσεις βρίσκεται να είναι υψηλότερα ενεργειακά κατά $\sim 25\text{cm}^{-1}$ σε σχέση με τις αδιατάρακτες θέσεις τους [Vaeck 1988, Moore 1958] λόγω φαινομένου AC Stark.

Σύμφωνα με τα φασματοσκοπικά δεδομένα [Kompitsas 1991] για την $5p^2 \ ^1S_0$ η αδιατάρακτη τετραφωτονική της διέγερση από την $5s^2 \ ^1S_0$ βασική κατάσταση αντιστοιχεί σε μήκος κύματος στον αέρα $\sim 734.3\text{nm}$, παρατηρείται δηλ. ενεργειακή AC Stark μετατόπιση της $5p^2 \ ^1S_0$ κατά $\sim 80\text{cm}^{-1}$ προς την «μπλε» περιοχή μηκών κύματος. Προσεκτική καταγραφή της περιοχής που αφορά τη διέγερση της $5p^2 \ ^1S_0$ συναρτήσει της έντασης του laser (ένθετο του Σχ 3.4.2.1(α)) αποκαλύπτει ότι η θέση του μεγίστου της γραμμής δε μετατοπίζεται με την ένταση του laser αλλά παραμένει σταθερή έως και την ελάχιστη πειραματικά ένταση όπου ήταν δυνατή η καταγραφή σήματος Sr^+ . Στα αποτελέσματα επιπρόσθετων πειραμάτων διφωτονικής διέγερσης της ενεργειακής περιοχής υπό μελέτη που παρουσιάζονται στο Σχ (3.4.2.2) καταγράφεται καθαρά η $5p^2 \ ^1S_0$ καθώς και αριθμός καλά χαρακτηρισμένων συντονισμών της σειράς $4d6d \ J=0,2$ [Kompitsas 1991, Luc-Koenig 1998]. Οι θέσεις των παραπάνω γραμμών σε σχέση με τα τα αποτελέσματα της εργασίας των Kompitsas *et al* [Kompitsas 1991] αναπαράγονται με ακρίβεια $\sim 5\text{cm}^{-1}$ ($<0.1\text{nm}$). Επομένως, η σημαντική μετατόπιση που παρατηρείται στη τετραφωτονική διέγερση θα μπορούσε να αποδοθεί σε (i) στο μεγάλο πλάτος αυτοϊονισμού της κατάστασης, (ii) στα προφανώς διαφορετικά διφωτονικά και τετραφωτονικά προφίλ διέγερσης (διαφορετικές παράμετροι Fano $q^{(2)}$ and $q^{(4)}$), (iii) στο σημαντικό υπόβαθρο σήματος ιονισμού και (iv) στις έντονες συνθήκες εστίασης οι οποίες συντελούν επίσης στην ασυμμετρία και στη διαπλάτυνση του προφίλ των $5s5f \ ^1F_3$ και $4d5p \ ^1P_1$ γραμμών. Σε αντίθεση με την περίπτωση του Mg, η σταθερή ενεργειακή μετατόπιση της $5p^2 \ ^1S_0$ που αποκαλύπτουν τα φάσματα Sr^+ προκαλεί έκπληξη αφού η αλληλεπίδραση $4d5p \ ^1P_1 \leftrightarrow 5p^2 \ ^1S_0$ αναμένεται να είναι ισχυρότερη σε σχέση με του Mg μιας και το μήκος κύματος που αντιστοιχεί στην παραπάνω μετάβαση κείται πολύ κοντά στο λ_{laser} που αντιστοιχεί στην τετραφωτονική διέγερση της $5p^2 \ ^1S_0$. Επομένως, η συμπεριφορά μπορεί να αποδοθεί στις συζεύξεις $5p^2 \ ^1S_0 \leftrightarrow 5p_{nl} \ J=1$ όπου η μεγάλη πυκνότητα των $5p_{nl}$ καταστάσεων παίζουν ίσως ένα ανεξήγητο προς το παρόν σταθεροποιητικό ρόλο.

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

Η προέλευση των κορυφών που στο Σχ. (3.4.2.1α) υποδεικνύονται με τα μικρά μαύρα κάθετα βέλη είναι υπό συζήτηση. Σύμφωνα με τα διαθέσιμα φασματοσκοπικά δεδομένα (NIST κ.α.) και λαμβάνοντας υπόψη τους κανόνες επιλογής πολυφωτονικών μεταβάσεων δεν μπορούν να αποδοθούν σε συντονισμούς δέσμιων καταστάσεων, άρα αποδίδονται με επιφύλαξη σε αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις. Περισσότερη πληροφορία θα προκύψει από τη μελέτη του φάσματος Sr^+ για κυκλική πόλωση του laser το οποίο παρουσιάζεται στο Σχ. (3.4.2.1β). Χαρακτηριστική είναι η (αναμενόμενη) εξαφάνιση της γραμμής που αποδίδεται στην τετραφωτονική διέγερση της $5p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενης κατάστασης αφού για κυκλικά πολωμένο φως με απορρόφηση τεσσάρων φωτονίων επιτρέπεται η διέγερση καταστάσεων με ολικό αριθμό στροφορμής $J=4$. Ομοίως η εξαφάνιση της γραμμής που αντιστοιχεί στην $4d5p \ ^1P_1$ αποκαλύπτει μια μικρή κορυφή η οποία επιζεί της κυκλικής πόλωσης και προφανώς επικαλύπτεται από την $4d5p \ ^1P_1$ στο φάσμα για γραμμική πόλωση.



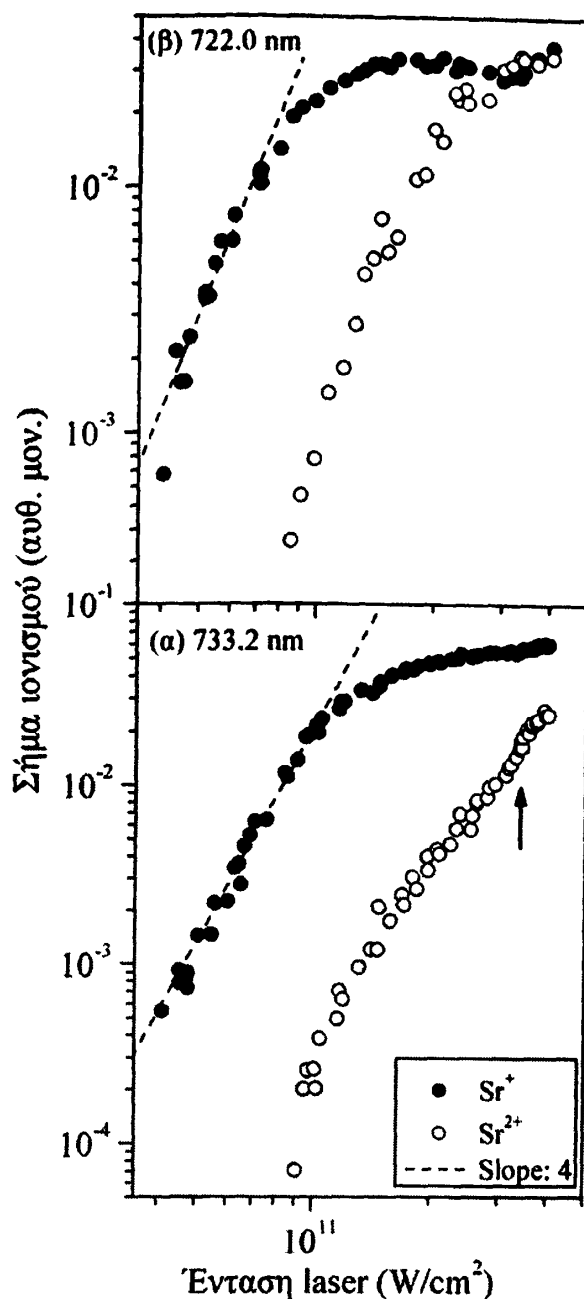
Σχήμα 3.4.2.2: Σήμα (διφωτονικού) ιονισμού Sr συναρτήσει του μήκους κύματος laser για $I \sim 4 \times 10^9$ W/cm². Με το μαύρο κάθετο διακεκομμένο βέλος σημειώνεται η θέση της αδιατάραχτης διφωτονικής μετάβασης $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5p^2 \ ^1S_0$.

Οι σύνθετες μορφές των γραμμών για κάθε πόλωση υπαινίσσονται ότι μπορεί να είναι ένα ή περισσότερα αυτοϊονιζόμενα ενεργειακά επίπεδα αναμεμειγμένα και με το συντονισμό της $5s5f \ ^1F_3$ επίσης. Από τους υπόλοιπους αδύναμους συντονισμούς, η κορυφή που παρατηρείται στο φάσμα της γραμμικής πόλωσης στα ~ 725.4 nm εξαφανίζεται με κυκλική



πόλωση, αποκλείοντας έτσι την πιθανότητα να προέρχεται από διαδικασία τετραφωτονικού ιονισμού με το τρίτο φωτόνιο σε συντονισμό με τη $5s5f \ ^3F_3$ δέσμια κατάσταση (που προβλέπεται στα ~ 725.0 nm). Προφανώς για τις σχετικά χαμηλά διεγερμένες δέσμιες καταστάσεις του Sr επικρατεί η σύζευξη LS η οποία απαγορεύει τη διέγερση του ανωτέρω επιπέδου λόγω του κανόνα επιλογής $\Delta S = 0$. Η κοντινότερη υποψήφια αυτοϊονιζόμενη κατάσταση για την κορυφή αυτή είναι η $4d6d \ ^1D_2$ όμως τόσο το προφίλ γραμμής της όσο και το πλάτος αυτοϊονισμού είναι αρκετά διαφορετικά σε σχέση με τα αντίστοιχα της διφωτονικής διέγερσης. Επομένως η προέλευσή της είναι προς το παρόν άγνωστη. Ομοίως η προέλευση των κορυφών του Σχ. (3.4.2.1) που υποδεικνύονται με τα μικρά κάθετα διακεκομμένα βέλη και επιζούν της κυκλικής πόλωσης δεν είναι ξεκάθαρη. Λαμβάνοντας υπόψη τους κανόνες επιλογής για κυκλική πόλωση και ότι η βασική κατάσταση του Sr έχει αριθμό ολικής στροφορμής $J=0$ η τιμή J της κάθε κατάστασης πρέπει να είναι ίση με τον αριθμό φωτονίων που απαιτείται για τη διέγερσή τους από την θεμελιώδη κατάσταση του Sr. Τα φασματοσκοπικά δεδομένα στο επίπεδο απορρόφησης του τέταρτου φωτονίου που υπάρχουν για τις $4d_j n d$ (με $n \geq 7$) και $4d_j n g$ (με $n \geq 6$ για $j=3/2$ και $n \geq 5$ για $j=5/2$) σειρές αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων [Jimoyiannis 1992;1993] βρίσκονται εκτός της ενεργειακής περιοχής υπό μελέτη. Χρησιμοποιώντας τις κβαντικές ατέλειες των μελών $4d_j 7d \ J=4$ εξάγεται ότι οι κορυφές στα ~ 723.8 nm και ~ 727.8 nm μπορούν να αποδοθούν με επιφύλαξη στα $4d_{5/2} 5d_j$ ($j=3/2, 5/2$) μέλη αντίστοιχα. Ομοίως, με αρκετή σιγουριά η γραμμή στα ~ 713.2 nm αποδίδεται στο $4d_{3/2} 5g \ J=4$ επίπεδο (διότι η $4d_j n g$ σειρά έχει σχεδόν μηδενικές κβαντικές ατέλειες). Τέλος, η γραμμή στα ~ 717.6 nm δεν μπορεί να αποδοθεί σε κανένα από τα γνωστά μέλη $4d_j n l \ J=4$ σειρών. Δε θα πρέπει να αποκλειστεί εντελώς η πιθανότητα ότι οι μη αναγνωρισθείσες γραμμές μπορεί να ανήκουν σε επίπεδα των περιττής ομοτιμίας $5p n l \ J=5$ σειρών τα οποία διεγείρονται με απορρόφηση πέντε φωτονίων από τη βασική κατάσταση, για τα οποία όμως δεν υπάρχουν διαθέσιμα φασματοσκοπικά δεδομένα.

Στα Σχ. 3.4.2.3(α,β) παρουσιάζονται οι γραφικές παραστάσεις του σήματος ιονισμού του Sr^+ συναρτήσει της έντασης του laser για δύο χαρακτηριστικά μήκη κύματος, (α) για $\lambda=733.2$ nm που αντιστοιχεί στο μήκος κύματος που διεγείρει την $5p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενη κατάσταση και (β) για $\lambda=728.0$ nm που αντιστοιχεί στην $4d5p \ ^1P_1$ δέσμια κατάσταση.



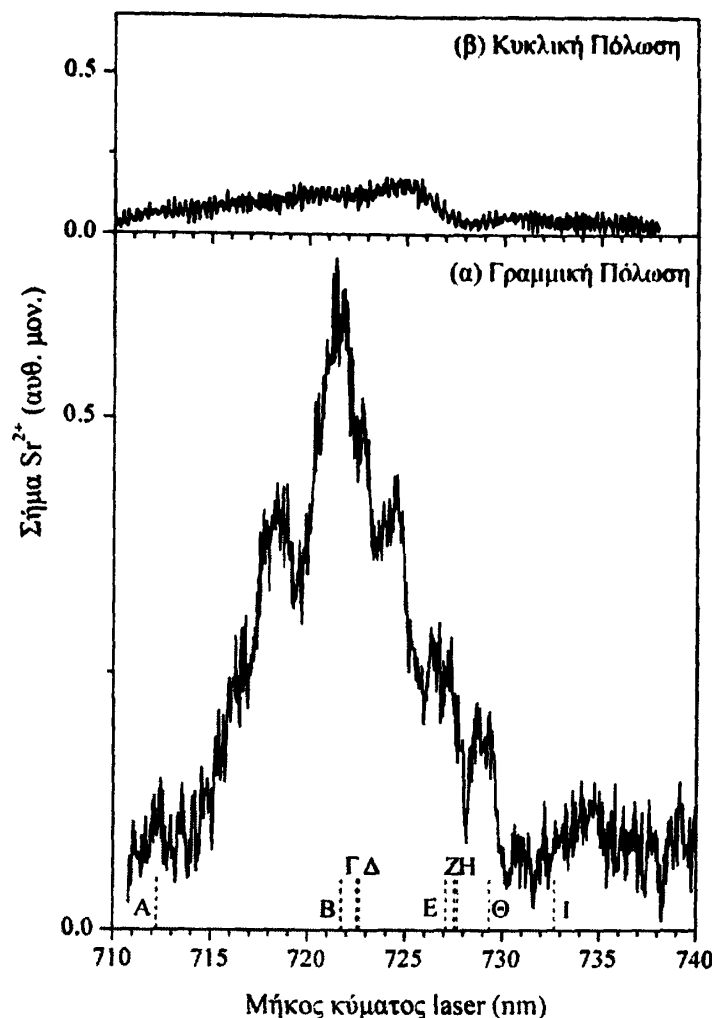
Σχήμα 3.4.2.3: Καταγραφή του σήματος Sr⁺ - Sr²⁺ συναρτήσει της έντασης laser. (α) για λ = 733.2 nm. Η αλλαγή κλίσης στη καμπύλη του Sr²⁺ σημειώνεται με το μαύρο βέλος. (β) για λ = 722.0 nm. Αποτυπώνεται καθαρά η εξάντληση του Sr⁺ υπέρ του Sr²⁺. Οι ευθείες διακεκομμένες γραμμές αναπαριστούν προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης στα πειραματικά δεδομένα για τάξη μη γραμμικότητας ίση με 4.

Από την παρατήρηση των σχημάτων προκύπτει ότι η εξάρτηση του σήματος ιοντισμού του Sr⁺ από την ένταση του laser χωρίζεται σε δύο περιοχές, στη γραμμική και στη μη-γραμμική (κορεσμός). Η προσαρμογή της συνάρτησης δύναμης I^{K^+} στα γραμμικά μέρη της γραφικής παράστασης δίνει μια τάξη μη-γραμμικότητας περίπου ίση με $K^+ \sim 4$. Στα σχήματα

έχουν σχεδιαστεί οι ευθείες που παρουσιάζουν κλίση ίση με 4. Γενικά για όλα τα μήκη κύματος που μελετήθηκαν η τάξη μη-γραμμικότητας βρέθηκε να κυμαίνεται μεταξύ 3.5 και 4. Η τιμή αυτή είναι αναμενόμενη για τις αυτοϊονιζόμενες καταστάσεις που διεγείρονται με τέσσερα φωτόνια και λογική για τις τετραφωτονικές διαδικασίες ιονισμού με το τρίτο φωτόνιο σε συντονισμό με δέσμιες καταστάσεις ($4d5p \ ^1P_1$ και $5s5f \ ^1F_3$), λαμβάνοντας υπόψη και το ισχυρό υπόβαθρο ιονισμού που οφείλεται σε μη συντονιστικό ιονισμό μέσω απορρόφησης τεσσάρων φωτονίων. Ωστόσο ο χαρακτήρας των τελευταίων εκδηλώνεται και μέσω μιας φαινομενικά μικρότερης έντασης κορεσμού. Επιπρόσθετα παρατηρείται μείωση του σήματος Sr^+ στις υψηλότερες εντάσεις αποτελώντας καθαρή ένδειξη εξάντλησης των απλά φορτισμένων ιόντων υπέρ της παραγωγής Sr^{2+} .

3.4.3 Παραγωγή ιόντων Sr^{2+}

Η γραφική παράσταση της απόδοσης Sr^{2+} συναρτήσει του μήκους κύματος του laser, για ένταση $\sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ και για (α) γραμμική και (β) κυκλική πόλωση παρουσιάζεται στο Σχ. (3.4.3.1), όπου επίσης σημειώνονται οι θέσεις ως προς το μήκος κύματος των ιοντικών μεταβάσεων που αφορούν απορρόφηση το πολύ τεσσάρων φωτονίων. Με τη μεταβολή της έντασης laser οι κορυφές του φάσματος δε μετατοπίζονται παρά μόνο παρατηρείται μια αύξηση, ή μείωση αντίστοιχα, του σήματος Sr^{2+} . Στο φάσμα ξεχωρίζουν δύο λοβοί: ένας ισχυρός γύρω από τα $\sim 721.5 \text{ nm}$ με εμφανή τη δομή που αποτυπώνεται επάνω του και με το μήκος κύματος του κεντρικού μεγίστου να είναι πολύ κοντά στο αντίστοιχο της κορυφής του φάσματος Sr^+ που αποδίδεται στη διέγερση της $5s5f \ ^1F_3$ δέσμιας κατάστασης, καθώς και ένας αδύναμος στα $\sim 733 \text{ nm}$. Ο τελευταίος βρίσκεται στην περιοχή της $5s^2 \ ^1S_0 \xrightarrow{4\hbar\omega} 5p^2 \ ^1S_0$ ατομικής μετάβασης (Σχ. 3.4.2.1). Οι πιθανοί δρόμοι που οδηγούν στο σχηματισμό διπλά φορτισμένων ιόντων Sr στην ενεργειακή περιοχή υπό συζήτηση αποδίδονται (i) σε διαδικασίες εξαφωτονικού ιονισμού από τα διεγερμένα $4d_{3/2,5/2}$ ιοντικά επίπεδα με το τρίτο και πέμπτο φωτόνιο σε συντονισμό με τις υψηλότερες ενεργειακά $6p_i$ και $9f_j$ καταστάσεις αντίστοιχα (βλ. ενεργειακό διάγραμμα του Σχ 3.4.1) και (ii) σε πενταφωτονικές διαδικασίες ιονισμού από τα $5p_{1/2,3/2}$ επίπεδα του Sr^+ μέσω (α) τριφωτονικών μεταβάσεων σε συντονισμό με την $7s_{1/2}$ ιοντική κατάσταση ($5p_i \xrightarrow{3\hbar\omega} 7s_{1/2}$) και (β) τετραφωτονικών μεταβάσεων σε



Σχήμα 3.4.3.1 Απόδοση Sr^{2+} συναρτήσει του μήκους κύματος laser και ένταση $\sim 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (α) για γραμμική πόλωση και (β) για κυκλική πόλωση του φωτός. Με τις μαύρες κάθετες διακεκομμένες γραμμές σημειώνεται το λ_{laser} για τις αναμενόμενες αδιατάραχτες θέσεις μεταβάσεων εντός του ιόντος που αφορούν απορρόφηση έως και τεσσάρων φωτονίων με αρχικά επίπεδα τα $4d_j$ και $5p_i$. Τα γράμματα συμβολίζουν τις ακόλουθες μεταβάσεις: A: $5p_{1/2} - 4\hbar\omega \rightarrow 7f_{7/2}$, B: $6p_{3/2} - 2\hbar\omega \rightarrow 9f_{7/2}$, Γ: $5p_{3/2} - 4\hbar\omega \rightarrow 7f_{7/2}$, Δ: $4d_{3/2} - 3\hbar\omega \rightarrow 6p_{3/2}$, E: $5p_{1/2} - 3\hbar\omega \rightarrow 7s_{1/2}$, Z: $4d_{5/2} - 3\hbar\omega \rightarrow 6p_{3/2}$, H: $4d_{3/2} - 3\hbar\omega \rightarrow 6p_{1/2}$, Θ: $6p_{3/2} - 2\hbar\omega \rightarrow 9f_{7/2}$, I: $4d_{5/2} - 3\hbar\omega \rightarrow 6p_{1/2}$. Οι παραπάνω μεταβάσεις αφορούν αδιατάραχτα ενεργειακά επίπεδα.

συντονισμό με τα $7f_j$ ιοντικά επίπεδα ($5p_i - 4\hbar\omega \rightarrow 7f_j$) (Σχ 3.4.1). Συνεπώς μεγάλο μέρος της δομής που παρατηρείται στο φάσμα του Sr^{2+} για γραμμική πόλωση είναι συνδυασμός τόσο του πληθυσμού που είναι διαθέσιμος στα $4d_j$ και $5p_i$ επίπεδα όσο και των σχετικών ιοντικών μεταβάσεων που εκκινούν από τα αρχικά αυτά επίπεδα. Φυσικά όλα τα επίπεδα που εμπλέκονται στις διαδικασίες μπορεί σε ένα βαθμό να υπόκεινται σε δυναμική μετατόπιση και διεύρυνση του φασματικού τους εύρους λόγω της αλληλεπίδρασης με το πεδίο laser.

Οι περισσότερες από τις παραπάνω συντονιστικές διαδικασίες αποτυπώνονται καλά στη δομή που παρουσιάζει το φάσμα του Sr^{2+} . Στο Σχ. 3.4.3.1(β) παρουσιάζεται το φάσμα του Sr^{2+} για κυκλικά πολωμένο φως όπου είναι φανερό ότι έχει εξαφανιστεί η δομή του αντίστοιχου φάσματος γραμμικής πόλωσης ενώ το σήμα που καταγράφεται εδώ είναι αρκετά πιο αδύναμο και ομαλό και παρουσιάζει αρκετές ομοιότητες με την αντίστοιχη εξάρτηση από το μήκος κύματος του σήματος Sr^+ για γραμμική πόλωση (Σχ. 3.4.2.1(α)). Αξίζει να σημειωθεί ότι όλες οι παραπάνω ιοντικές μεταβάσεις που αναφέρθηκαν δεν είναι επιτρεπτές για κυκλική πόλωση. Σε αυτή την περίπτωση το σήμα ιονισμού προέρχεται μόνο από μη-συντονιστικές διαδικασίες ιονισμού των υπό θεώρηση αρχικών ιοντικών επιπέδων. Αυτό υποδηλώνει διαδικασίες πενταφωτονικού και εξαφωτονικού ιονισμού από τα $5p_i$ και $4d_j$ επίπεδα αντίστοιχα. Αν ισχύει όμως το τελευταίο τότε συνεπάγεται ότι παρόμοιας τάξης μη-γραμμικότητας διαδικασίες συντονισμού από την $5s_{1/2}$ βασική κατάσταση του ιόντος (όπως $5s_{1/2} - 5h\omega \rightarrow 7p_i$ και $5s_{1/2} - 6h\omega \rightarrow 11s_{1/2}, 7g_j$ και $9d_j$) θα πρέπει να συνεισφέρουν στην παραγωγή Sr^{2+} για γραμμική πόλωση. Αντιθέτως όμως οι διαδικασίες (αυτές με τα αντίστοιχα μήκη κύματος) δεν αποτυπώνονται στη δομή που παρουσιάζει το φάσμα του Sr^{2+} . Συνεπώς το φάσμα της κυκλικής πόλωσης παρέχει μια έμμεση πειραματική απόδειξη ότι η συνεισφορά της βασικής κατάστασης του Sr^+ ως αρχικό επίπεδο στην παραγωγή διπλά φορτισμένων ιόντων Sr είναι αμελητέα. Επίσης υποδεικνύει ότι το μη-συντονιστικό σήμα του Sr^{2+} προέρχεται από τον ιονισμό διεγερμένων ιοντικών καταστάσεων που βρίσκονται υψηλότερα ενεργειακά από τα $5p_i$ και $4d_j$ επίπεδα. Η υπόθεση αυτή επιβεβαιώνεται από τη μελέτη ιοντικού φθορισμού όπου παρατηρείται η ύπαρξη πληθυσμού στα διεγερμένα $6s_{1/2}$ και $5d_j$ ιοντικά επίπεδα από τα οποία απαιτείται αντίστοιχα η απορρόφηση τριών φωτονίων για την δημιουργία Sr^{2+} . Επιπλέον η απουσία δομής στο φάσμα του Sr^{2+} για κυκλική πόλωση περαιτέρω αντανακλά την ομαλή εξάρτηση με την ενέργεια του φωτονίου των πληθυσμών των καταστάσεων αυτών. Ένα άμεσο ερώτημα που γεννιέται είναι η πηγή προέλευσης του μηχανισμού δημιουργίας πληθυσμού στα παραπάνω επίπεδα. Το ερώτημα αυτό θα συζητηθεί εκτενέστερα στην ενότητα μελέτης φθορισμού.

Στα Σχ. 3.2.3(α,β) έχουν σχεδιαστεί οι γραφικές παραστάσεις του σήματος ιονισμού του Sr^{2+} συναρτήσει της έντασης του γραμμικά πολωμένου laser. Πέραν των 733.2nm, η συμπεριφορά της καμπύλης για τα 722nm αντανακλά τη συμπεριφορά όλων των μηκών κύματος που μελετήθηκαν. Είναι φανερό ότι τα διπλά φορτισμένα ιόντα Sr δημιουργούνται



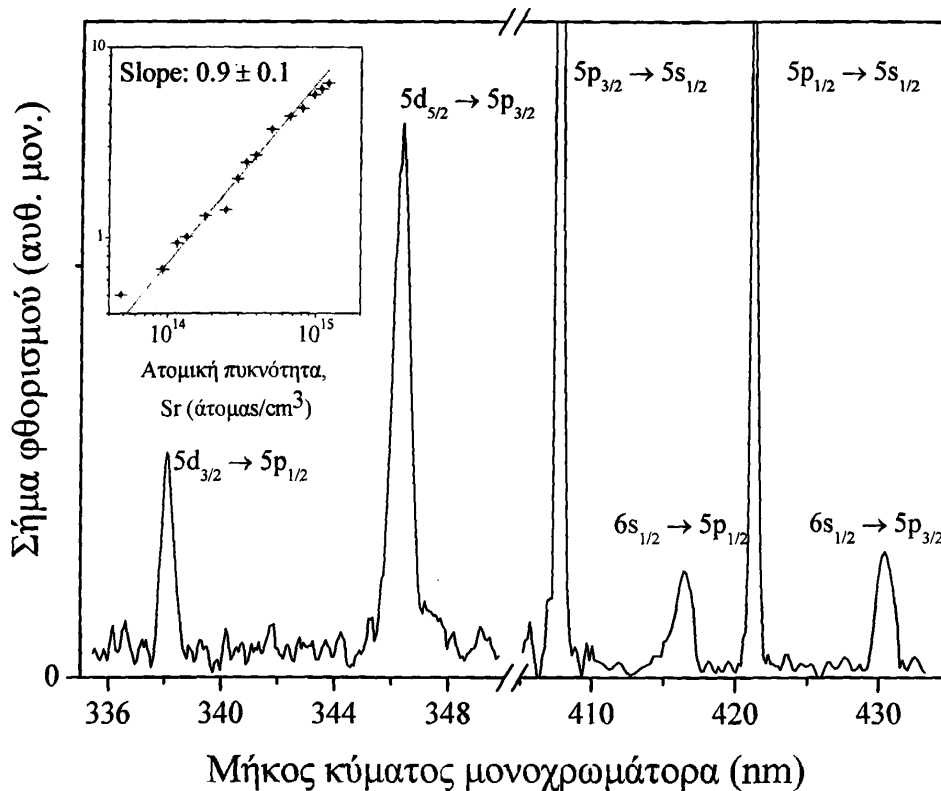
Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

καθαρά για εντάσεις ελάχιστα μεγαλύτερες από την ένταση κορεσμού του σήματος του Sr^+ , ένδειξη ότι ο μηχανισμός παραγωγής του Sr^{2+} οφείλεται σε διαδικασίες διαδοχικού ιονισμού και όχι σε διαδικασίες απευθείας ιονισμού με ταυτόχρονη απομάκρυνση δύο ηλεκτρονίων. Για τις υψηλότερες εντάσεις το σήμα Sr^{2+} φθάνει επίσης σε κορεσμό λόγω της εξάντλησης του πληθυσμού Sr^+ η οποία εκδηλώνεται μέσω μιας σημαντικής μείωσης του σήματος του Sr^+ το οποίο καταλήγει να είναι μικρότερο ακόμα κι από το σήμα του διπλά φορτισμένου ιόντος. Λόγω της αύξησης του εστιακού όγκου με την αύξηση της έντασης, ο κορεσμός εμφανίζεται με τη μορφή μείωσης της κλίσης ενώ παράλληλα το σήμα του απλά φορτισμένου Sr αυξάνεται. Η πιο ενδιαφέρουσα συμπεριφορά καταδεικνύεται στην καμπύλη των 733.2nm όπου η παραγωγή των διπλά φορτισμένων ιόντων ξεκινά λίγο πριν το σήμα του Sr^+ αρχίσει να φτάνει σε κορεσμό. Επιπλέον, παρατηρείται ένα εμφανές (και επαναλήψιμο) σημείο αλλαγής κλίσης το οποίο διαχωρίζει περιοχές με διαφορετική τάξη μη-γραμμικότητας. Αυτό το είδος 'γονάτου' (το οποίο συνοδεύεται από τη δημιουργία Sr^{2+} για εντάσεις μόλις μικρότερες από την ένταση κορεσμού του απλού ιόντος) έχει ήδη παρατηρηθεί σε ευγενή αέρια (Xe και Kr) για υψηλότερες εντάσεις διάρκειας ps. Η συμπεριφορά αυτή αρχικά αποδόθηκε σε διαδικασία απευθείας ιονισμού [L' Huillier 1982] αλλά μετέπειτα μελέτες [Walker 1993, Charalambidis 1994] αποκάλυψαν ότι παρόμοια συμπεριφορά αναμένεται όταν ο ιονισμός λαμβάνει χώρα μέσω διέγερσης από αριθμό φωτονίων μιας διπλά διεγερμένης ατομικής κατάστασης. Η παραπάνω αιτιολόγηση επιβεβαιώθηκε έμμεσα πειραματικά χρησιμοποιώντας ένα διαφορετικό μήκος κύματος αποφεύγοντας έτσι την πολυφωτονική διέγερση της αυτοϊονιζόμενης κατάστασης, επιδεικνύοντας έτσι την εξαφάνιση του 'γονάτου' στην περίπτωση αυτή. Επιπλέον, φτιάχνοντας ένα κατάλληλο μοντέλο εξισώσεων ρυθμών μπόρεσε να αποδειχθεί και θεωρητικά ότι η δομή αυτή του 'γονάτου' όντως παρατηρείται όταν στο δρόμο διέγερσης υπάρχει μια διπλά διεγερμένη κατάσταση αλλά εξαφανίζεται αν η κατάσταση αυτή δε συμπεριληφθεί στο μοντέλο [Charalambidis 1994]. Παρόλα αυτά στην εργασία των L' Huillier *et al* [L' Huillier 1982] η ταυτοποίηση της κατάστασης παρέμεινε ένα θέμα υπό διερεύνηση. Στην παρούσα μελέτη όμως η δομή 'γονάτου' εμφανίζεται μόνο στην περιοχή της διπλά διεγερμένης $5p^2 \ ^1S_0$ αυτοϊονιζόμενης κατάστασης, άρα είναι ξεκάθαρο ότι συνδέεται με αυτή την κατάσταση ενώ φαινόμενα διπλού συντονισμού με υψηλότερες ενεργειακά αυτοϊονιζόμενες σειρές Rydberg $5pnl \ J=1$ μπορεί επίσης να αποτελούν μέρη του μηχανισμού παραγωγής του φαινομένου.



3.4.4 Σχηματισμός Sr^+ σε διεγερμένες καταστάσεις: Απόδοση ιοντικού φθορισμού – Συνολική εικόνα

Στο Σχ. 3.4.4.1 παρουσιάζεται μια τυπική σάρωση του μονοχρωμάτωρα όπου φαίνονται όλες οι γραμμές που καταγράφονται στο παρών πείραμα.



Σχήμα 3.4.4.1: Σήμα φθορισμού συναρτήσει μήκους κύματος μονοχρωμάτωρα για $I \sim 3.3 \times 10^{11}$ W/cm^2 , $\lambda_{laser} = 722.0 nm$ και γραμμική πόλωση laser, για ατομική πυκνότητα Στροντίου $\sim 10^{14}$ άτομα/ cm^3 . Οι γραμμές φθορισμού που καταγράφονται ονομάζονται σύμφωνα με τις αντίστοιχες μεταβάσεις του Sr^+ . Στο ένθετο έχει σχεδιαστεί η γραφική παράσταση της εξάρτησης του σήματος φθορισμού συναρτήσει της ατομικής πυκνότητας μαζί με μια προσαρμογή στις πειραματικές μετρήσεις που αποκαλύπτει μια πρακτικά γραμμική κλίση, 0.9 ± 0.1 .

Οι γραμμές αυτές αντιστοιχούν στις μεταβάσεις $5p_{1/2,3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$, $6s_{1/2} \rightarrow 5p_{1/2,3/2}$, $5d_{5/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ και $5d_{3/2} \rightarrow 5p_{1/2}$ του Sr^+ . Η γραμμή που αντιστοιχεί στη μετάβαση $5d_{3/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ ($\sim 347.5 nm$) δεν καταγράφεται, σε συμφωνία και με τα διαθέσιμα δεδομένα που υπάρχουν για τις σχετικές εντάσεις των $5d_j \rightarrow 5p_i$ γραμμών [NIST Sr II], ενώ η $5d_{5/2} \rightarrow 5p_{1/2}$ δεν είναι επιτρεπτή σύμφωνα με τους κανόνες επιλογής μονοφωτονικής μετάβασης. Προφανώς πληθυσμός κατανέμεται και στα επίπεδα $4d_{3/2,5/2}$ ο οποίος όμως δεν είναι δυνατόν να ανιχνευθεί αφενός μεν γιατί το μήκος κύματος των μεταβάσεων $5p_i \rightarrow 5d_j$ ανήκει στο

Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

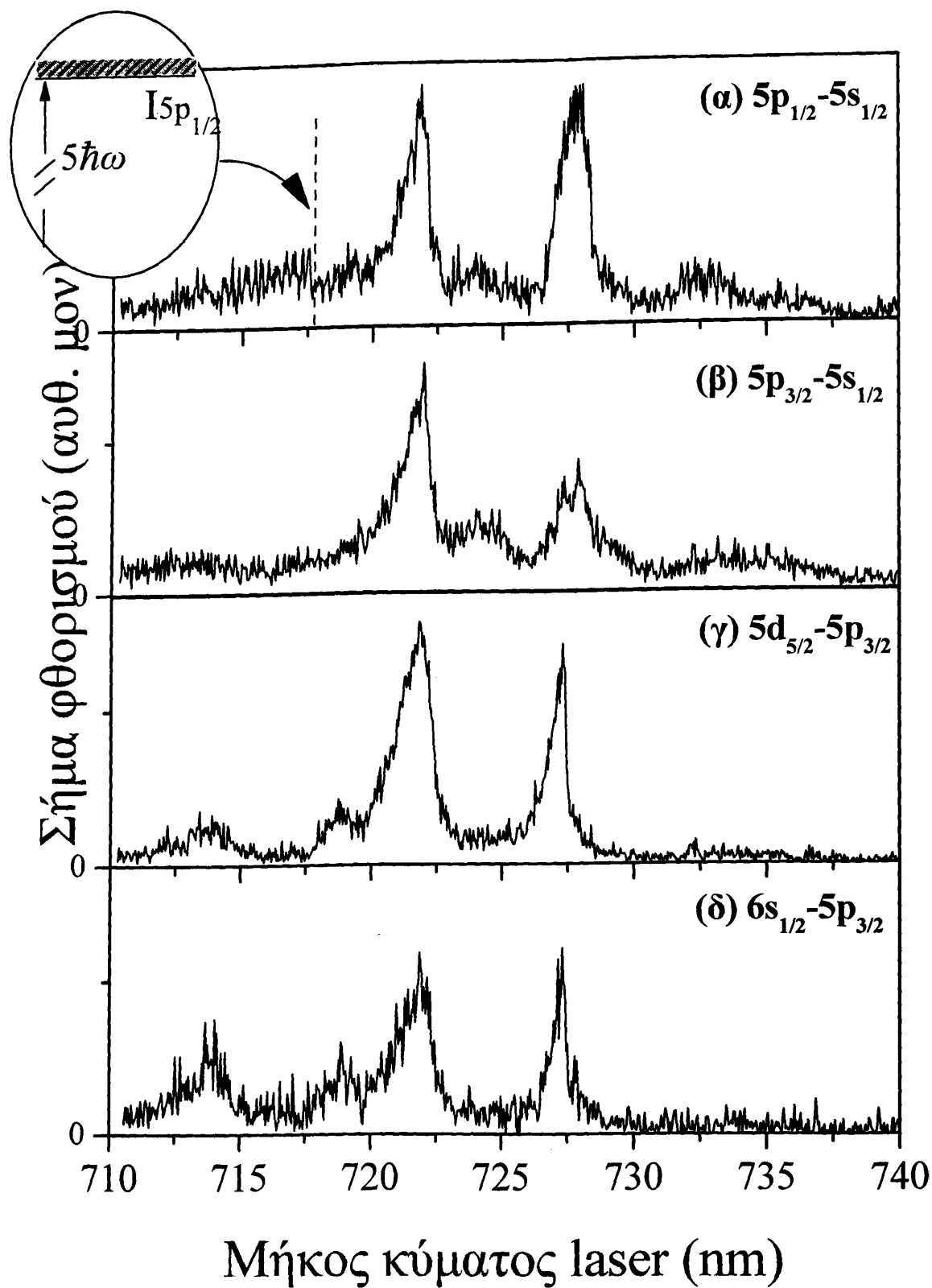
υπέρυθρο και είναι εκτός ορίων του ανιχνευτικού μας συστήματος αφετέρου δε, οι μεταβάσεις $5d_{3/2,5/2} \rightarrow 5s_{1/2}$ είναι απαγορευμένες από τους κανόνες επιλογής.

Γίνεται άμεσα αντιληπτό ότι ο φθορισμός από τα διεγερμένα ιοντικά επίπεδα $5p_i$ είναι πιο ισχυρός σε σχέση με των μεταβάσεων $6s_{1/2} \rightarrow 5p_{1/2,3/2}$, $5d_{5/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ και $5d_{3/2} \rightarrow 5p_{1/2}$. Το σήμα φθορισμού δίνει μία εικόνα και για τη συγκέντρωση και κατανομή πληθυσμού στα αντίστοιχα επίπεδα. Η διαφοροποίηση αυτή στην κατανομή πληθυσμού, πέρα από τις σχετικές εντάσεις γραμμών των υπό συζήτηση μεταβάσεων, έχει μια σχέση αναλογίας και με την τάξη μη-γραμμικότητας που εμπλέκεται τόσο στη διαδικασία δημιουργίας πληθυσμού στα διεγερμένα επίπεδα όσο και στη διαδικασία που ακολουθεί και οδηγεί στο σχηματισμό διπλά φορτισμένων ιόντων. Δεδομένο όμως είναι, ότι από τα επίπεδα $5d_j$ και $6s_{1/2}$ απαιτείται μικρότερος αριθμός φωτονίων για την προσέγγιση του δεύτερου δυναμικού ιονισμού του Sr, σε σύγκριση με τα $4d_j$ και $5p_i$ επίπεδα.

Παρόλο που η απόδοση φθορισμού είναι μικρή, εξαιρουμένων των επιπέδων $5p_i$, δεν επιλέχθηκε η περαιτέρω αύξηση της θερμοκρασίας του κελιού-ατμών (άρα και αύξηση της ατομικής πυκνότητας) ώστε να παραμείνουμε στο γραμμικό μέρος της εξάρτησης σήματος συναρτήσει της ατομικής πυκνότητας (ένθετο Σχ. 3.4.4.1). Επιπλέον, η επίδραση της πίεσης του ενδιάμεσου αερίου (Ηλιο) στο σήμα φθορισμού βρέθηκε να είναι αμελητέα, μιας και για αύξηση της πίεσης κατά ένα παράγοντα της τάξης του 10 το σήμα αυξήθηκε κατά ένα παράγοντα λιγότερο του 2. Το φαινόμενο αυτό αποδίδεται στη συμπίεση της στήλης ατμών του Sr λόγω της αυξημένης πίεσης στο κελί, οδηγώντας σε μια αύξηση της συγκέντρωσης ατόμων στο σημείο αλληλεπίδρασης με τη δέσμη laser. Άρα, για τις μικρές ατομικές πυκνότητες Sr και χαμηλές πιέσεις Ηλίου που εμπλέκονται στη καταγραφή των φασμάτων που παρουσιάζονται σε αυτή την εργασία, μπορούν να αποκλειστούν με βεβαιότητα κάθε μορφής επαγόμενα φαινόμενα κρούσεων.

Διατηρώντας σταθερό το μήκος κύματος του μονοχρωμάτορα στην εκάστοτε ιοντική μετάβαση, καταγράφεται το σήμα φθορισμού, που παρουσιάζεται στο Σχ. (3.4.4.2 (α-δ)), συναρτήσει του μήκους κύματος του γραμμικά πολωμένου laser. Τα φάσματα εμφανίζουν αρκετά όμοια χαρακτηριστικά με τα φάσματα ιονισμού, Sr^+ και Sr^{2+} (Σχ. 3.4.2.1-3.4.3.1). Πιο συγκεκριμένα, παρουσιάζουν τις δύο ισχυρές κορυφές που αποδίδονται στην τριφωτονική συντονιστική διέγερση (από τη βασική κατάσταση του Sr) των δέσμιων καταστάσεων $5s5f \ ^1F_3$ (~722nm) και $4d5p \ ^1P_1$ (~728nm). Η πρώτη εμφανίζεται στο ίδιο μήκος κύματος σε σχέση





Σχήμα 3.4.4.2 (α-δ): Καταγραφή σήματος φθορισμού μεταβάλλοντας το μήκος κύματος του laser (γραμμική πόλωση) για τις μεταβάσεις $5p_{1/2,3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$, $6s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$, $5d_{5/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ του Sr^+ . Το μήκος κύματος του μονοχρωμάτορα για κάθε φάσμα είναι ρυθμισμένο και σταθερό στο μήκος κύματος της αντίστοιχης ιοντικής μετάβασης.

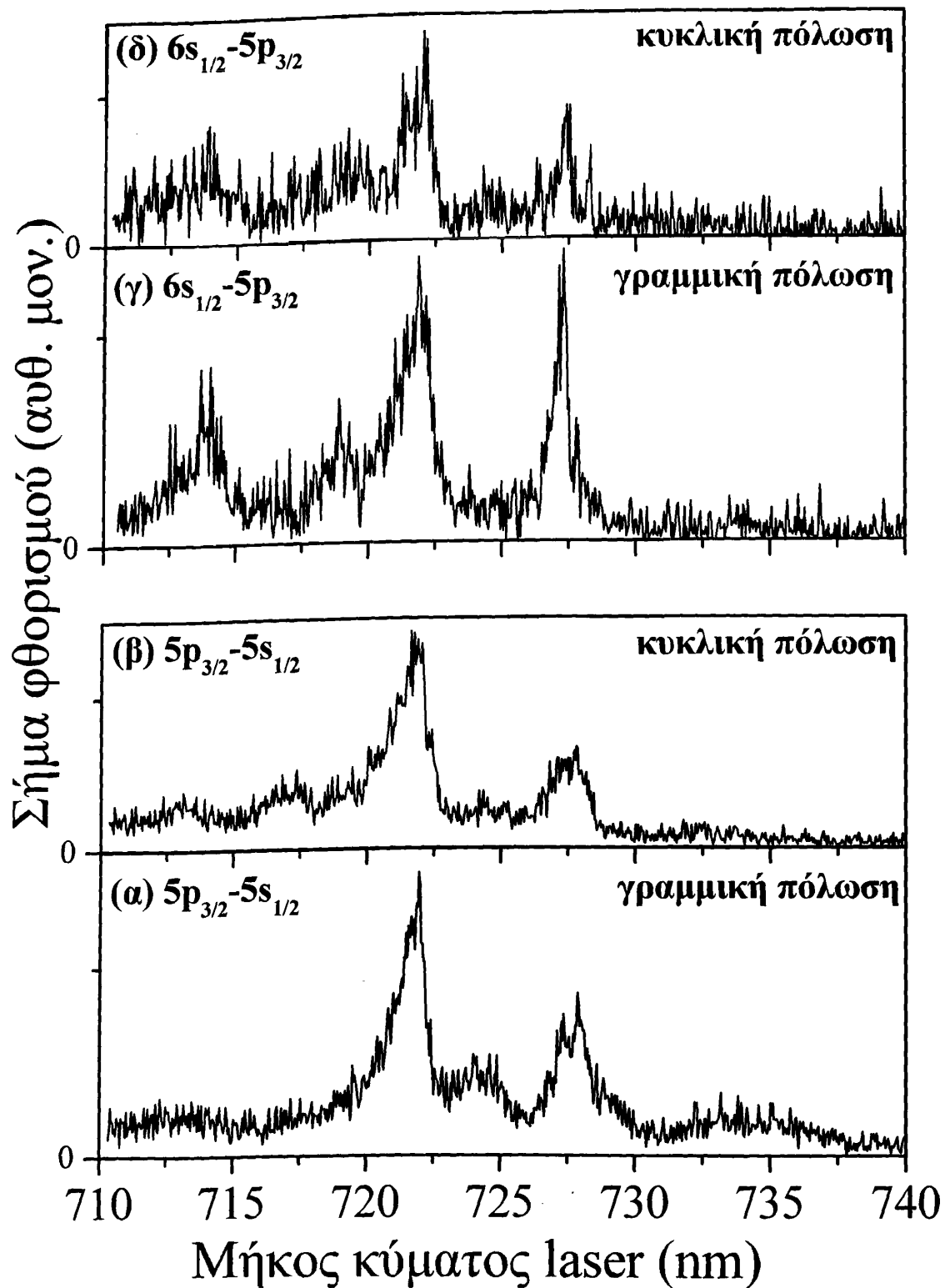
Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

με το φάσμα των απλά φορτισμένων ιόντων Sr, ενώ η τελευταία παρουσιάζει μια μικρή μετατόπιση προς μικρότερα μήκη κύματος. Μια πιθανή εξήγηση για τη μετατόπιση αυτή είναι ότι η μονοφωτονική σύζευξη της δέσμιας κατάστασης με την αυτοϊονιζόμενη κατάσταση $5p^2 \ ^1S_0$ στο σχήμα κλιμακωτής διέγερσης είναι ισχυρότερη σε αυτά τα μήκη κύματος. Η παρουσία της $5p^2 \ ^1S_0$ φαίνεται καθαρά στα $5p_i$ φάσματα, είναι σχετικά αδύναμη στα $5d_j$ ενώ δεν καταγράφεται ή δεν ανιχνεύεται στο φάσμα της $6s_{1/2}$. Επιπλέον, στα φάσματα $5p_i$ εμφανίζεται μια κορυφή στα $\sim 732.5\text{nm}$ η οποία ξεχωρίζει επάνω στο ευρύ προφίλ της $5p^2 \ ^1S_0$. Από το Σχ. (3.4.4.2) παρατηρούμε ότι οι γραμμές στα $\sim 713.2\text{nm}$ και στα $\sim 717.7\text{nm}$ εμφανίζονται στα φάσματα αποδιέγερσης των $5d_j$ και $6s_{1/2}$ επιπέδων, όχι όμως και στα αντίστοιχα των $5p_i$. Αντίθετα η κορυφή στα $\sim 723.8\text{nm}$ είναι παρών στα φάσματα των $5p_i$, αλλά όχι και σε αυτά των $5d_j$ και $6s_{1/2}$. Είναι πολύ πιθανόν η γραμμή αυτή και η γραμμή στα $\sim 732.5\text{nm}$ να οφείλονται σε συντονισμούς με μέλη της $5p_{3/2}nl$ σειράς Rydberg. Επιπλέον, αξιοσημείωτη είναι η απότομη αύξηση που επιδεικνύει το σήμα υποβάθρου της απόδοσης φθορισμού στο φάσμα της $5p_{1/2} \rightarrow 5s_{1/2}$ ιοντικής μετάβασης καθώς κατά τη σάρωση μήκους κύματος του laser η ενέργεια που αντιστοιχεί στην απορρόφηση του πέμπτου φωτονίου ξεπερνά το $5p_{1/2}$ κατώφλι (ένθετο Σχ. 3.4.4.2).

Στο Σχ. 3.4.4.3(α-δ) απεικονίζεται η εξάρτηση της απόδοσης φθορισμού των ιοντικών μεταβάσεων $6s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ και $5p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$ συναρτήσει του μήκους κύματος laser για γραμμική και κυκλική πόλωση αντίστοιχα. Παρατηρούμε ότι η κορυφή που αντιστοιχεί στην $5p^2 \ ^1S_0$ εξαφανίζεται στο $5p_{1/2}$ φάσμα για κυκλική πόλωση. Οι γραμμές στα $\sim 713.2\text{nm}$ και $\sim 717.7\text{nm}$ καταγράφονται και για κυκλική πόλωση στα $6s_{1/2}$ φάσματα, ενώ εμφανίζονται και στα αντίστοιχα $5p_{3/2}$ φάσματα κυκλικής πόλωσης. Ομοίως, η κορυφή στα $\sim 723.8\text{nm}$ η οποία καταγράφεται μόνο στα $5p_i$ φάσματα δεν εξαφανίζεται για κυκλική πόλωση. Οι παραπάνω κορυφές, στις περιπτώσεις όπου ανιχνεύονται για γραμμική πόλωση προφανώς υπερκαλύπτονται από το σήμα υποβάθρου. Γενικά, παρατηρείται μεγάλη ομοιότητα μεταξύ των φασμάτων φθορισμού και φάσματος κυκλικής πόλωσης Sr^+ . Είναι χαρακτηριστικό ότι οι ισχυρότεροι συντονισμοί που καταγράφονται στο $6s_{1/2}$ φάσμα γραμμικής πόλωσης επιζούν της κυκλικής πόλωσης. Συνεπώς, ο κυρίαρχος μηχανισμός που οδηγεί στη δημιουργία πληθυσμού στα $6s_{1/2}$ και $5d_j$ ιοντικά επίπεδα είναι επιτρεπτός για κυκλική πόλωση.

Οι μηχανισμοί που οδηγούν στη δημιουργία πληθυσμού στις διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις μπορούν να προέρχονται είτε από απορρόφηση ΑΤΙ φωτονίων στο άτομο είτε





Σχήμα 3.4.4.3: Καταγραφή σήματος φθορισμού μεταβάλλοντας το μήκος κύματος του laser (γραμμική και κυκλική πόλωση) για τις μεταβάσεις $6s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ και $5p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$. Το μήκος κύματος του μονοχρωμάτορα για κάθε φάσμα είναι ρυθμισμένο και σταθερό στο μήκος κύματος της αντίστοιχης ιοντικής μετάβασης.

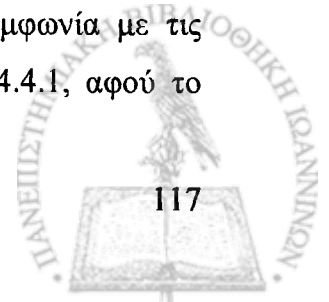
από συντονισμούς που προκύπτουν μέσα στο ιοντικό σύστημα. Η προέλευση της εποίκισης των $5p_i$ ιοντικών επιπέδων οφείλεται αναμφίβολα στην απορρόφηση δύο επιπλέον φωτονίων πάνω από το πρώτο δυναμικό ιονισμού (ιονισμός κατωφλίου). Η απορρόφηση αυτή εκδηλώνεται μέσω της ισχυρής επαγόμενης-από-to-laser σύζευξης μεταξύ δέσμιων και αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων σε ένα σχήμα κλιμακωτής διέγερσης. Πρακτικά, αναμένεται να συνεισφέρουν δύο τέτοια σχήματα διέγερσης. Το πρώτο θα αφορά κυρίως τις συζεύξεις $(5s(n-8)p + 4d5p) \ ^1P_1 \leftrightarrow 5p^2 \ ^1S_0 \leftrightarrow 5pnl \ J=1$ ενώ το δεύτερο τις συζεύξεις $(5s5f + 4d5p) \ ^1F_3 \leftrightarrow 4dnl \ J=4 \leftrightarrow 5pnl \ J=5$. Το τελευταίο σχήμα διέγερσης επιζεί της κυκλικής πόλωσης. Αμφότερα τα σχήματα αναμένεται να εκδηλώνονται μέσω ισχυρών συζεύξεων λόγω των κοντά-σε-συντονισμό διεγέρσεων όπως επίσης και λόγω του σημαντικού ποσοστού $4d5d$ χαρακτήρα που έχουν οι δύο τριφωτονικά διεγερμένες δέσμιες καταστάσεις. Η απόδοση του απλού και διπλού ιόντος καθώς και του $5p_i$ φθορισμού εμφανίζει αύξηση γύρω από το συντονισμό της $5p^2 \ ^1S_0$ αλλά παρόλα αυτά είναι αδύναμη σε σύγκριση με την απόδοση που καταγράφεται στην περιοχή των $5s5f \ ^1F_3$ και $4d5p \ ^1P_1$ συντονισμών. Η παρατήρηση αυτή αποδίδεται στην αλληλεπίδραση μεταξύ του ρυθμού αυτοϊονισμού των τετραφωτονικά διεγερμένων αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων από τη μια μεριά και την ισχύ της ακτινοβολητικής τους σύζευξης με υψηλότερα ενεργειακά επίπεδα από την άλλη. Η $5p^2 \ ^1S_0$ γραμμή είναι η πιο φαρδιά μεταξύ των καταγραφόμενων διπλά διεγερμένων συντονισμών κάτι που υποδηλώνει την υπερίσχυση της διαδικασίας αυτοϊονισμού. Το γεγονός όμως ότι η παρουσία της επηρεάζει δραστικά την εξάρτηση του Sr^{2+} από την ένταση του laser (Σχ. 3.4.2.3(α)) αποδεικνύει ότι ο ρόλος της στη δυναμική της αλληλεπίδρασης ατόμου-laser δε θα πρέπει να υποτιμηθεί. Συμπερασματικά μπορεί να υποτεθεί ότι με ns παλμούς laser και σχετικά μέτριες εντάσεις η απορρόφηση ΑΤΙ φωτονίων είναι πιο αποδοτική σε διέγερση κοντά-σε-συντονισμό από ότι σε ακριβή συντονισμό ώστε να αποφεύγεται η γρήγορη διαδικασία αυτοϊονισμού.

Θα εστιάσουμε τώρα την προσοχή μας στην αναζήτηση του μηχανισμού προέλευσης των πληθυσμών στα $5d_j$ και $6s_{1/2}$ διεγερμένα επίπεδα του Sr^+ . Καταρχήν, θα αναζητηθούν μηχανισμοί διέγερσης εντός του ιοντικού συστήματος. Ας σημειωθεί ότι το μήκος κύματος που αντιστοιχεί στον τετραφωτονικό συντονισμό της βασικής ιοντικής κατάστασης με τα υψηλότερα ενεργειακά $5d_j$ επίπεδα ($\sim 750.5\text{nm}$) βρίσκεται σαφώς εκτός των ορίων της



ενεργειακής περιοχής υπό μελέτη. Επίσης δεν υπάρχει κανένας απευθείας μηχανισμός που να συνδέει την $6s_{1/2}$ με τις χαμηλότερες ενεργειακά $5s_{1/2}$, $5d_j$ και $5p_i$ ιοντικές καταστάσεις. Άρα η μόνη δυνατότητα εποίκισης των $5d_j$ και $6s_{1/2}$ είναι μέσω αποδιέγερσης των υψηλότερα ενεργειακά επιπέδων $6p_i$, στα οποία δημιουργείται πληθυσμός μέσω της κυρίαρχης ιοντικής μετάβασης $4d_j + 3\hbar\omega \rightarrow 6p_i$. Όμως ο μηχανισμός αυτός θα πρέπει εξίσου να απορριφθεί διότι το σενάριο αυτό προϋποθέτει την απουσία πληθυσμού στα $5d_j$ και $6s_{1/2}$ επίπεδα για κυκλική πόλωση του φωτός δεδομένου ότι η $4d_j + 3\hbar\omega \rightarrow 6p_i$ μετάβαση είναι απαγορευμένη σύμφωνα με τους κανόνες επιλογής. Όπως όμως γίνεται φανερό από τα αντίστοιχα φάσματα φθορισμού, πληθυσμός δημιουργείται και για κυκλική πόλωση του laser. Τα ανωτέρω συνηγορούν στο συμπέρασμα ότι η δημιουργία πληθυσμού στα διεγερμένα $6s_{1/2}$ και $5d_j$ ιοντικά επίπεδα αποδίδεται στην απορρόφηση από το άτομο *τριών* και *τεσσάρων* επιπλέον φωτονίων αντίστοιχα πάνω από το πρώτο δυναμικό ιονισμού, μέσα στο συνεχές το οποίο παρουσιάζει δομή. Λόγω της έλλειψης σχετικών φασματοσκοπικών δεδομένων είναι προς το παρόν άγνωστο πόσες και ποιες είναι οι καταστάσεις που συνεισφέρουν σε κάθε βήμα στο σχήμα κλιμακωτής διέγερσης. Αυτό που εμποδίζει την κατηγορηματική υιοθέτηση του ανωτέρου ισχυρισμού είναι το γεγονός ότι δεν καταγράφεται στο πείραμά μας ο φθορισμός των $6p \rightarrow 4d$ ιοντικών μεταβάσεων ($\sim 242\text{nm}$), ενώ η παραπάνω απορρόφηση τεσσάρων ΑΤΙ φωτονίων θα πρέπει να εποικίζει αμφοτέρως τις $6p$ και $5d$ καταστάσεις. Παρόλα αυτά, η μη παρατήρηση των γραμμών αυτών μπορεί απλώς να υπογραμμίζει είτε μια ιδιαιτερότητα των ακτινοβολητικών διαδικασιών προς τα χαμηλότερα ενεργειακά επίπεδα είτε γενικά μια ένα αδύναμο ρυθμό αποδιέγερσης. Πέραν τούτου, ένας τέτοιος μεγάλος αριθμός απορρόφησης επιπλέον φωτονίων από τον ελάχιστο αναγκαίο αριθμό που απαιτείται για τον ιονισμό του ατόμου έχει αναφερθεί μόνο μια φορά στη διεθνή βιβλιογραφία στο Mg [Kim 1990] όπου οι συγγραφείς υποστηρίζουν με επιφύλαξη την απορρόφηση τεσσάρων φωτονίων μέσα στο συνεχές, χρησιμοποιώντας ns παλμούς laser και φωτόνιο που ανήκει στο υπέρυθρο φάσμα (1064nm).

Τέλος, όπως συζητήθηκε και στην υπο-ενότητα 3.4.3, το αδύναμο σήμα Sr^{2+} που καταγράφεται για κυκλική πόλωση θα πρέπει να προέρχεται από τριφωτονικό μη-συντονιστικό ιονισμό από τα $6s$ και $5d$ ιοντικά επίπεδα. Η σημαντική διαφορά σήματος που παρατηρείται στα φάσματα Sr^{2+} γραμμικής-κυκλικής πόλωσης είναι σε συμφωνία με τις σχετικές εντάσεις των γραμμών φθορισμού που καταγράφονται στο Σχ. 3.4.4.1, αφού το



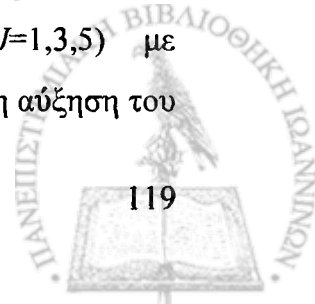
Παρουσίαση αποτελεσμάτων - Ανάλυση

μεγαλύτερο ποσοστό ιοντικού πληθυσμού συγκεντρώνεται στα 5p (και 4d) επίπεδα, ενώ η απορρόφηση τεσσάρων ΑΤΙ φωτονίων στο συνεχές οδηγεί σε αρκετά μικρότερα ποσοστά ιόντων Sr^{+} στα 6s και 5d επίπεδα.



ΣΥΝΟΨΗ – ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ – ΠΡΟΤΑΣΕΙΣ ΓΙΑ ΠΑΡΑΠΕΡΑ ΜΕΛΕΤΗ

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκαν οι διαδικασίες απλού και διπλού ιονισμού των ατόμων των Αλκαλικών Γαιών. Ιδιαίτερα μελετήθηκε, τόσο πειραματικά (Mg, Ca και Sr) όσο και θεωρητικά (Mg), ο ρόλος των αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων στις διαδικασίες αυτές, στη περίπτωση όπου τα άτομα αλληλεπιδρούν με παλμούς laser διάρκειας ns και σχετικά μέτριες εντάσεις ($10^{11} \text{ W/cm}^2 \leq I < 10^{12} \text{ W/cm}^2$). Η πειραματική μελέτη βασίστηκε στην ανίχνευση ιόντων A^+ και A^{2+} (όπου A: Mg, Ca, Sr) σε περιβάλλον ατομικής δέσμης καθώς και στην ανίχνευση φθορισμού (που εκπέμπεται από διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις) σε κελί παραγωγής ατμών. Σε όλες τις περιπτώσεις η εξεταζόμενη περιοχή επιλέχτηκε έτσι ώστε να περιλαμβάνει την τετραφωτονική διέγερση της διπλά διεγερμένης κατάστασης $mp^2 \ ^1S_0$ από τη θεμελιώδη κατάσταση $ms^2 \ ^1S_0$ του ατόμου ($m = 3, 4$ και 5 για τα Mg, Ca και Sr αντίστοιχα). Οι καταστάσεις $mp^2 \ ^1S_0$ βρίσκονται λίγο υψηλότερα του πρώτου κατωφλίου ιονισμού, παρουσιάζουν έντονη ηλεκτρονιακή συσχέτιση (τα δύο ηλεκτρόνια καταλαμβάνουν το ίδιο τροχιακό) και αυτοϊονίζονται πολύ γρήγορα στα διαθέσιμα συνεχή (ο χρόνος ζωής των $mp^2 \ ^1S_0$ είναι της τάξης των $\sim 10\text{fs}$). Η επιλογή της τετραφωτονικής (και όχι π.χ. διφωτονικής) τους διέγερσης υπαγορεύτηκε από το σκεπτικό ότι για να ευνοηθούν σχήματα κλιμακωτής διέγερσης των καταστάσεων αυτών τόσο με ενεργειακά υψηλότερες (αυτοϊονιζόμενες) όσο και χαμηλότερες (δέσμιες) καταστάσεις, θα πρέπει τα διεγείροντα φωτόνια να είναι επαρκώς μικρής ενέργειας. Πραγματικά και για τα τρία στοιχεία, στην ενεργειακή περιοχή απορρόφησης του τρίτου φωτονίου υπάρχει τουλάχιστον μία δέσμια κατάσταση 1P_1 περιττής συμμετρίας. Πιο συγκεκριμένα, στο Mg και στο Ca υπάρχει η $3s4p$ και η διπλά διεγερμένη $3d4p$ αντίστοιχα, ενώ στο Sr υπάρχει η διπλά διεγερμένη $4d5p$ συμμετρίας 1P_1 καθώς επίσης και οι δέσμιες καταστάσεις $5s5f \ ^{1,3}F_3$. Από την άλλη μεριά, στην ενεργειακή περιοχή απορρόφησης του πέμπτου φωτονίου ο αριθμός των διαθέσιμων αυτοϊονιζόμενων καταστάσεων αυξάνει γρήγορα με τον ατομικό αριθμό. Ενώ για το Mg υπάρχει μόνο μία κατάσταση ($3d4p \ ^1P_1$), στο Ca υπάρχουν αρκετά μέλη των αυτοϊονιζόμενων σειρών Rydberg $4pnl$ ($n \sim 11-15, J=1,3,5$) ενώ στο Sr το πέμπτο φωτόνιο προσεγγίζει ένα πολύ μεγάλο αριθμό περιττής ομοτιμίας μελών των σειρών Rydberg $5p_{1/2,3/2}nl$ ($J=1,3,5$) με ενεργούς κβαντικούς αριθμούς $v_{1/2} \geq 20$ και $v_{3/2} \sim 20 - 40$ αντίστοιχα. Αντίστοιχη αύξηση του



αριθμού των διαθέσιμων καταστάσεων αναμένεται να υπάρχει και για το έκτο, έβδομο κοκ. φωτόνιο. Παράλληλα, ενώ στην περίπτωση του Mg στη περιοχή της $3p^2 \ ^1S_0$ δεν υπάρχει κάποια άλλη κατάσταση, στο Ca βρίσκουμε τις καταστάσεις $4d6d \ J=2,4$ ενώ στην περίπτωση του Sr τα μέλη των $4d,nl \ J=0,2,4$ αυτοϊονιζόμενων σειρών με ενεργό κβαντικό αριθμό $n \sim 5$. Η εμφάνιση φασματικών γραμμών μεγάλου εύρους λόγω του τετραφωτονικού συντονισμού της θεμελιώδους με την κατάσταση $mp^2 \ ^1S_0$ είναι κοινό χαρακτηριστικό όλων των φασμάτων των απλά φορτισμένων ιόντων (Mg^+ , Ca^+ , Sr^+). Ειδικά στην περίπτωση των φασμάτων Mg^+ παρατηρήθηκε σημαντική και μάλιστα μη-γραμμική ως προς την ένταση της ακτινοβολίας φασματική μετατόπιση της $3p^2 \ ^1S_0$. Το θεωρητικό μοντέλο που αναπτύχθηκε και βασίστηκε σε υπολογισμούς πίνακα πυκνότητας και εξισώσεις ρυθμών επαλήθευσε τη συμπεριφορά αυτή η οποία τελικά αποδίδεται στις ισχυρές μονοφωτονικές σύζευξεις μεταξύ της $3p^2 \ ^1S_0$, της υψηλότερα διεγερμένης $3d3p \ ^1P_1$ αυτοϊονιζόμενης κατάστασης και της χαμηλότερης ενεργειακά $3s4p \ ^1P_1$ δέσμιας κατάστασης. Μια απευθείας εκδήλωση της παραπάνω ισχυρής σύζευξης είναι ότι η ενεργειακή μετατόπιση της $3p^2 \ ^1S_0$ δεν μπορεί να προβλεφθεί με βάση όρους του διαταραχτικού φαινομένου AC Stark (που προβλέπει γραμμική εξάρτηση της μετατόπισης ως συνάρτηση της έντασης). Τα πειραματικά δεδομένα και οι θεωρητικοί υπολογισμοί συγκλίνουν στο συμπέρασμα ότι η ενεργειακή μετατόπιση της $3p^2 \ ^1S_0$ είναι ανάλογη του $I^{1/2}$. Με βάση και το θεωρητικό μοντέλο, η συμπεριφορά αυτή μπορεί να αποδοθεί στην ισχυρή (μη-διαταρακτική) σύζευξη των $3p^2 \ ^1S_0$ και $3p3d \ ^1P_1$ και παραπέμπει στο ενδεχόμενο ενεργειακού διαχωρισμού Rabi (AC Stark splitting) των δύο καταστάσεων αυτοϊονισμού. Σε αντίθεση με την περίπτωση του Mg, τα φάσματα των Ca^+ , Sr^+ αποκαλύπτουν μια σταθερή ενεργειακή μετατόπιση των $4p^2 \ ^1S_0$ και $5p^2 \ ^1S_0$ αντίστοιχα προς τα μπλε μήκη κύματος, χωρίς να παρατηρηθεί εξάρτηση από την ένταση του laser έως και το κατώτατο όριο ανίχνευσης της διάταξής μας. Το γεγονός αυτό αποτελεί έκπληξη καθώς οι αλληλεπιδράσεις $3d4p \ ^1P_1 \leftrightarrow 4p^2 \ ^1S_0$ και $4d5p \ ^1P_1 \leftrightarrow 5p^2 \ ^1S_0$, στα Ca και Sr αντίστοιχα, αναμένεται να είναι ισχυρότερες σε σχέση με του Mg κυρίως λόγω της μικρότερης απομάκρυνσης από τη συνθήκη συντονισμού που παρουσιάζουν όταν το μήκος κύματος του laser είναι συντονισμένο στις μεταβάσεις $4s^2 \ ^1S_0 - 4\omega \rightarrow 4p^2 \ ^1S_0$ (Ca) και $5s^2 \ ^1S_0 - 4\omega \rightarrow 5p^2 \ ^1S_0$ (Sr), καθώς και επειδή αφορούν μονοηλεκτρονιακές μεταβάσεις. Η αμετάβλητη με την ένταση του laser ενεργειακή μετατόπιση που παρατηρήθηκε πρέπει επομένως να αποδοθεί



στις συζεύξεις $mp^2 \ ^1S_0 \leftrightarrow mp, nl \ J=1$ ($m=4,5$ για Ca, Sr αντίστοιχα) όπου η μεγάλη πυκνότητα των mp, nl δείχνει να παίζει ένα σταθεροποιητικό ρόλο.

Πέραν τούτου αξίζει να σημειωθεί ότι σε όλα τα φάσματα A^{2+} καθώς και στα περισσότερα φάσματα φθορισμού (εξαιρέση οι μεταβάσεις $6s_{1/2} \rightarrow 5p_i$ και $5d_j \rightarrow 5p_i$ του Sr^+) αποτυπώνεται ο συντονισμός της $mp^2 \ ^1S_0$ καταδεικνύοντας το σημαντικό ρόλο που διαδραματίζει στη δυναμική της αλληλεπίδρασης άτομο/ίον-laser, ρόλος που εκδηλώνεται ξεκάθαρα με την αλλαγή κλίσης ('knee structure') που καταγράφεται στην καμπύλη σε λογαριθμική κλίμακα του σήματος Sr^{2+} συναρτήσει της έντασης για $\lambda_{laser} = 733.2nm$.

Τα πειραματικά ευρήματα υποδεικνύουν ότι ο κυριότερος μηχανισμός παραγωγής διπλά φορτισμένων ιόντων ($Mg^{2+}, Ca^{2+}, Sr^{2+}$) είναι ο διαδοχικός ιονισμός μέσω διεγερμένων ιοντικών καταστάσεων οι οποίες λειτουργούν ως αρχικά επίπεδα. Στο Mg (για τις διαθέσιμες εντάσεις) ο πληθυσμός των επιπέδων $3p_i$ του Mg^+ είναι αυτός που συνεισφέρει αποκλειστικά στην παραγωγή Mg^{2+} . Στο Ca η κυριότερη συνεισφορά προέρχεται από τα επίπεδα $3d_j$ και $4p_i$ ενώ στο Sr πέρα από τα πρώτα διεγερμένα επίπεδα $4d_j$ και $5p_i$ στο σήμα Sr^{2+} συνεισφέρουν και οι υψηλότερα διεγερμένες καταστάσεις $5d_j$ και $6s_{1/2}$. Η συμμετοχή της βασικής ιοντικής κατάστασης στη δημιουργία A^{2+} ($A=Mg, Ca, Sr$) βρέθηκε και για τα τρία άτομα να είναι αμελητέα με μόνη εξαίρεση την περίπτωση του Ca όπου μια κορυφή στο φάσμα του Ca^{2+} (στη περιοχή της $4p^2 \ ^1S_0$) αποδίδεται με επιφύλαξη σε εξαφωτονική μετάβαση από την βασική κατάσταση $4s_{1/2}$ του Ca^+ . Παρόλα αυτά, στην περίπτωση του Ασβεστίου η πιθανότητα παραγωγής Ca^{2+} μέσω του μηχανισμού απευθείας διπλού ιονισμού δεν μπορεί να αποκλειστεί. Πιο συγκεκριμένα, για $\lambda_{laser} \sim 678.5nm$ τα αποτελέσματα της γραφικής παράστασης $\log \times \log$ του Ca^{2+} συναρτήσει της έντασης του laser I αποκαλύπτουν ότι τα διπλά φορτισμένα ιόντα δημιουργούνται σαφώς πριν την ένταση κορεσμού του Ca^+ με το απλό και διπλό ιόν να φθάνουν σε κορεσμό στην ίδια ένταση, ενδείξεις που στο παρελθόν έχουν συνδεθεί με την ύπαρξη του μηχανισμού απευθείας διπλού ιονισμού. Αυτό είναι ένα σημείο που προφανώς απαιτεί περαιτέρω μελέτη.

Η καταγραφή του φθορισμού από διεγερμένες καταστάσεις του εκάστοτε απλά φορτισμένου ιόντος αποδείχθηκε σημαντικό εργαλείο στη βαθύτερη κατανόηση της αλληλεπίδρασης των ατόμων και ιόντων με την ακτινοβολία laser. Η μελέτη αυτή αποδεικνύει αναμφισβήτητα και στα τρία άτομα την απορρόφηση δύο επιπλέον φωτονίων πέραν του ελάχιστου αναγκαίου αριθμού που απαιτείται για τον απλό ιονισμό του ατόμου. Στο Sr συγκεκριμένα ο

συνδυασμός των φασμάτων φθορισμού για γραμμική και κυκλική πόλωση του laser υποδεικνύει απορρόφηση τεσσάρων συνολικά επιπλέον φωτονίων. Το γεγονός ότι κάτω από τις υποτιθέμενες μη-ευνοϊκές συνθήκες εκτέλεσης του πειράματός μας (ns παλμοί laser, μεσαίες εντάσεις), παρατηρήθηκε ένας τέτοιος μεγάλος αριθμός απορρόφησης επιπλέον φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού, οδηγώντας στη δημιουργία υψηλά διεγερμένων ιοντικών καταστάσεων, στηρίζει την υπόθεση ότι το φαινόμενο διέπεται από την παρουσία αυτοϊονιζόμενων και δέσμιων καταστάσεων οι οποίες σχηματίζουν σχήματα κλιμακωτής διέγερσης σε ή κοντά σε συντονισμό. Με άλλα λόγια, η διαδικασία κυριαρχείται από φαινόμενα ηλεκτρονιακής συσχέτισης και διαφέρει ουσιαστικά από την εικόνα πειραμάτων που εμπλέκουν βραχείς παλμούς laser (ps και fs) και μεγάλες εντάσεις ($I > 10^{12}$ W/cm²) όπου η απορρόφηση φωτονίων στο χωρίς δομή συνεχές θεωρείται τετριμμένη παρατήρηση. Αντιπαράθεση των αποτελεσμάτων της παρούσας εργασίας με αυτά της υπάρχουσας βιβλιογραφίας υποδηλώνει ότι η απορρόφηση μεγάλου αριθμού φωτονίων πάνω από το πρώτο κατώφλι ιονισμού στα άτομα των Αλκαλικών Γαιών και για ns παλμούς laser ενοείται για ακτινοβολία μικρής ενέργειας φωτονίου (σε σύγκριση με τα πρώτα και δεύτερα δυναμικά ιονισμού του σχετικού ατόμου). Τέτοια ακτινοβολία θεωρείται ικανή να προκαλέσει συντονισμούς μεταξύ πολλών καταστάσεων δηλ. να αυξήσει τα βήματα προς τη δημιουργία ενός σχήματος κλιμακωτής διέγερσης. Τέτοια εικόνα έχει καταγραφεί προηγουμένως στο Μαγνήσιο [Kim 1990] με ακτινοβολία 25ns/1064nm ενώ αυτό ισχυρίζονται οι Bondar και Suran για τα αποτελέσματα που παρατήρησαν στα πειράματά τους στο Ba και Sr [Bondar 2000;2002] με ακτινοβολία 35ns/~8100-9400cm⁻¹.

Λεπτομερέστερη μελέτη και οριστική απάντηση όσον αφορά τον ακριβή αριθμό απορρόφησης επιπλέον φωτονίων, των μηχανισμών που κυριαρχούν στη δημιουργία πληθυσμού σε διεγερμένες ιοντικές καταστάσεις και για τη παραγωγή των διπλά φορτισμένων ιόντων (απευθείας – διαδοχικός διπλός ιονισμός) μπορεί να πραγματοποιηθεί μόνο με ανίχνευση και ανάλυση της ενέργειας των παραγομένων φωτο-ηλεκτρονίων. Το σχετικό πείραμα είναι αναγκαίο να λάβει χώρα υπό τις ίδιες ακριβώς συνθήκες με τα πειράματα απλού και διπλού ιονισμού της παρούσας εργασίας. Πιο συγκεκριμένα, χρειάζεται να χρησιμοποιηθούν οι ίδιοι παλμοί laser, να εμπλακούν παρόμοιες εντάσεις και να διερευνηθεί η ίδια ενεργειακή περιοχή για το εκάστοτε άτομο.



Επιπλέον και ειδικότερα στην περίπτωση του Mg εξαιρετικό ενδιαφέρον θα παρουσίαζε η σάρωση ως προς το μήκος κύματος της περιοχής για $\lambda \leq 584\text{nm}$ σε μια προσπάθεια να καταγραφεί η δεύτερη συνιστώσα της $3p^2\ ^1S_0$ που προκύπτει από τον ενεργειακό διαχωρισμό της τελευταίας, συλλέγοντας ιόντα, φθορισμό αλλά και φωτο-ηλεκτρόνια. Τέλος, θα ήταν επιθυμητό για τα άτομα του Ca και Sr τα προαναφερθέντα ζητήματα να ελεγχθούν από θεωρητικής πλευράς αν και εξαιτίας της πολυπλοκότητας της περιγραφής του ατομικού συστήματος (η αλληλεπίδραση λεπτής υφής δεν μπορεί να αγνοηθεί) και των σχετικών διεγέρσεων (τέτραφωτονικές μεταβάσεις από το δέσμιο φάσμα και τουλάχιστον τριφωτονικές μεταβάσεις στο συνεχές) το εγχείρημα απέχει πολύ από το να θεωρηθεί τετριμμένο.

ΑΝΑΦΟΡΕΣ

- Abella I 1962 *Phys. Rev. Lett.* **9** 453-5
- Agostini P, Barjot G, Bannal J F, Mainfray G and Manus C 1968 *IEEE J Quantum Electron.* **QE-4** 667
- Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G and Rahman N 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- Agostini P and Petile G 1985a *Phys. Rev. A* **32** 3800
- Agostini P and Petile G 1985b *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **18** L281
- Aleksakhin I S, Zapesochnyi I P and Suran V V 1977 *JETP Lett.* **26** 11
- Alexksakhin I S, Delone N B, Zapesochnyi I P and Suran V V 1979 *Sov. Phys. JETP* **49** 447
- Ammosov M V, Delone N B, Ivanov M Y, Bondar I I and Masalov A V 1991 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **29** 33
- Ansbacher W, Li Y and Pinnington E H 1989 *Phys. Rev. A* **139** 165
- Armstrong J A, Wynne J J and Esherick P 1978 *J. Opt. Soc. Am.* **69** 211
- Assimopoulos S, Bolovinos A, Jimoyiannis A, Tsekeris P, Luc-Koenig E and Aymar M 1994 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27** 2471
- Assimopoulos S, Bolovinos A, Luc-Koenig E, Cohen S, Lyras A, Tsekeris P, and Aymar M 1998 *Eur. Phys. J. D* **1** 243
- Augst S, Strickland D, Meyerhofer D, Chin S L and Eberly J 1989 *Phys Rev. Lett.* **63** 2212
- Aymar M 1984 *Phys. Rep.* **110** 163
- Aymar M, Luc-Koenig E and Watanabe S 1987 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **20** 4325
- Aymar M and Telmini M 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **24** 4935
- Baig M A and Connerade J P 1984 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **17** L271
- Benec'h S and Bachau H 2004 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **37** 3521
- Bloomfield L, Freeman R, Cooke W and Bokor J 1984 *Phys. Rev Lett.* **53** 2234
- Bolovinos A, Jimoyiannis A, Assimopoulos S and Tsekeris P 1992 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **25** L553



- Bolovinos A, Luc-Koenig E, Assimopoulos S, Lyras A, Karapanagioti N E,
Charalambidis D and Aymar M 1996 *Z. Phys. D* **38** 265
- Bolovinos A, Lontos I, Cohen S and Lyras A, *8th EPS Conference on Atomic and
Molecular Physics* (ECAMP 2004) Rennes, France, Proceedings. vol. **28F** Part II, p 4-
18
- Bolovinos A, Lontos I, Cohen S and A. Lyras, *20th International Conference on
Atomic Physics* (ICAP 2006) Innsbruck, Austria, Book of Abstracts p. 266
- Bonanno R E, Clark C W and Lucatorto T B 1986 *Phys. Rev. A* **34** 2082
- Bonch Bruevich A M and Khodovoi V A 1967 *Sov. Phys. Uspekhi* **93** 637
- Bondar I I and Suran V V 1990 *Opt. Spectr.* **68** 265
- Bondar I I and Suran V V 1992 *JETP Lett.* **56** 78
- Bondar I I and Suran V V 1993 *JETP* **76** 381
- Bondar I I, Suran V V and Dudich M I 2000 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **33** 4243
- Bondar I I and Suran V V 2002 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **35** 3391
- Boulmer J, Camus P and Pillet P 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 805
- Bowe P, Giammanco F, O'Neill R W, van der Burgt P J M and Slevin J A 1998 *Phys.
Rev. A* **58** 1389
- Boyd R W 2003 *"Nonlinear Optics"* 2nd ed. (Academic Press)
- Boyer K and Rhodes C K 1985 *Phys. Rev. Lett.* **54** 1490
- Brown C M and Ginter M L 1980 *J. Opt. Soc. Am.* **70** 87
- Brown C M, Tilford S G and Ginter M L 1973 *J. Opt. Soc. Am.* **63** 1454
- Camus P, Kompitsas M, Cohen S, Nicolaidis C, Aymar M, Crance M and Pillet P
1989 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22** 445
- Camus P, Cohen S, Pruvost L and Bolovinos A 1993 *Phys. Rev. A* **48** R9
- Chaloupka J L, Rudati J, Lafon R, agostini P, Kulander K C and DiMauro L F 2003
Phys. Rev. Lett. **92** 203001
- Charalambides D, Lambropoulos P, Schröder H, Faucher O, Xu H, Wagner M and
Fotakis C 1994 *Phys. Rev. A* **50** R2822
- Cohen S 1990 Διδακτορική Διατριβή, Edelstein S A and Hill R M 1978 *Phys. Rev.
Lett.* **40** 178
- Cohen S, Lontos I, Bolovinos A, Lyras A, Benec'h S and Bachau H 2006 *J. Phys. B:*

- At. Mol. Opt. Phys.* **39** 2693
- Cook W E, Gallagher T F
- Condon E U and Shortley G H 1935 "*The Theory of Atomic Spectra*" (University Press, Cambridge)
- Connerade J P 1998 "Highly Excited Atoms" Cambridge University Press
- Cowan R D 1981 "*The Theory of Atomic Structure and Spectra*" University of California Press
- Crance M 1984 στο "*Multiphoton Ionization of Atoms*" ed. Chin S L and Lambropoulos P (Orlando Academic)
- Delone N B 1975 *Sov. Phys. Uspekhi* **18** 169
- Delone N B and Krainov V P 1984 "*Atoms in Strong Light Fields*" Springer Ser. in Chem. Phys. v. **28** Springer-Verlag
- Dai B and Lambropoulos P 1986 *Phys. Rev. A* **34** 3954
- Dai C J 1995 *Phys. Rev. A* **51** 2951
- Dai C J and Lu J 1996 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29** 2473
- Dai C J, Lu J and Hu S F 1996 *Opt. Commun.* **132** 241
- DiMauro L F, Kim D, Courtney M and Anselment M 1988 *Phys. Rev. A* **38** 2338
- DiMauro L F and Agostini P 1995 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **35** 79
- Edwards M, Tang X and Shakeshaft R 1987 *Phys. Rev. A* **35** 3758
- Edwards M, Tang X, Lambropoulos P and Shakeshaft R 1986 *Phys. Rev. A* **33** 4444
- Fano U 1961 *Phys. Rev. A* **124** 1866
- Fano U 1983 *Rep. Prog. Phys.* **46** 97
- Fabre F, Petite G, Agostini P and Clement M 1982 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15** 1353
- Feldman D and Welge K H 1982 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15** 1651
- Filis J G 1995 "Κεφάλαια Ατομικής και Μοριακής Φυσικής" Ιωάννινα
- Friedrich H 1998 "*Theoretical Atomic Spectra*" (Springer-Verlag Berlin Heidelberg)
- Gallagher T 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 794
- Gasiorowicz S 1974 "*Quantum Physics*" (John Wiley & Sons)
- Gavrila M (Ed.) 1992 *Atoms in Intense Laser Fields* Academic Press, San Diego
- Gibson G N, Freeman R R, McIlrath T J and Muller H G 1994 *Phys. Rev. A* **49** 3870



- Gillen G D, Walker M A and van Woerkom L D 2001 *Phys. Rev. A* **64** 043413
- Goeppert-Mayer M 1931 *Ann. Phys.* **9** 273
- Gontier Y and Trahin M 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 259
- Hall J, Robinson E and Branscomb L 1965 *Phys. Rev. Lett.* **14** 1013
- Hansen J E and Persson W 1977 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **10** L363
- Haugen H K and Othonos A S 1988 *Phys. Rev. A* **39** 3392
- Haugen H K and Stapelfeldt H 1992 *Phys. Rev. A* **45** 1847
- Hou M, Breger P, Petite G and Agostini P 1990 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **23**
L583
- Hughes V and Grabner L 1950 *Phys. Rev.* **79** 314
- Jimoyiannis A, Bolovinos A and Tsekeris P 1992 *Z. Phys. D* **22** 577
- Jimoyiannis A, Bolovinos A, Tsekeris P and Camus P 1993 *Z. Phys. D* **25** 135
- Jingyuan Z, Qiongru L., Jian Y, Lizeng Z and Yuxin N 1985 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **19** L75
- Jones R R 1998 *Phys. Rev. A* **58** 2608
- Kaiser W and Garrett C 1961 *Phys. Rev. Lett.* **7** 229
- Karapanágioti N E, Charalambidis D, Uiterwaal C J, Fotakis C, Bachau H, Sanchez I and Cormier E 1996 *Phys. Rev. A* **53** 2587
- Kim D, Fournier S, Saeed M, DiMauro L F 1990 *Phys. Rev. A* **41** 4966
- Keldysh L V 1965 *JETP* **20** 1307
- Kompitsas M, Cohen S, Nicolaidis A, Robaux O, Aymar M and Camus P 1990 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **23** 2247
- Kompitsas M, Goutis S, Aymar M and Camus P 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24** 1557
- Kush P 1954 *Phys. Rev.* **93** 1022
- Kylstra N J, Van der Hart H W, Burke P G and Joachain C J 1998 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31** 3089
- Lambropoulos P and Zoller P 1981 *Phys. Rev. A* **24** 379
- Lambropoulos P 1984 στο "Multiphoton Ionization of Atoms" ed. Chin S L and Lambropoulos P (Orlando Academic)
- Lambropoulos P and Tang X 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 821

- Lambropoulos P, Tang X, Agostini P, Petite G and L'Huillier A 1988 *Phys. Rev. A* **38** 6165
- Lambropoulos P, Maragakis P and Zhang J 1998 *Phys. Rep.* **305** 205
- Lange V, Eichmann U and Sandner W 1989 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22** L245
- L' Huillier A, Lompré A, Mainfray G and Manus C 1982 *Phys. Rev.Lett.* **48** 1814
 - 1983a *Phys Rev. A* **27** 2503
 - 1983b *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **16** 1363
 - 1983c *J. Physique* **44** 1247
- Lin C 1986 *Adv. At. Mol. Phys* **22** 77
- Lindsay M D, Cai L T, Schinn G W, Gallacher T F, Robicheux F and Greene C H 1992 *Phys. Rev. A* **46** 3789
- Loudon R 1983 "*The Quantum Theory of Light*" 2nd edition (Clarenton Press)
- Lu van M, Mainfray G, Manus C and Tugov I 1973 *Phys. Rev. A* **7** 91
- Luc-Koenig E, Bolovinos A, Aymar M, Assimopoulos S, Jimoyiannis A and Tsekeris P 1994 *Z. Phys. D* **32** 49
- Luc-Koenig E, Aymar M, Lecomte J-M and Lyras A 1998 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31** 727
- Luk T S, Pummer H, Boyer K, Shahidi M, Egger H and Rhodes C 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 110
- Lyras A and Bachau H 1999 *Phys. Rev. A* **60** 4781
- Mainfray G and Manus C 1991 *Rep. Prog. Phys.* **54** 1333
- McKenna C and van der Hart H W 2003 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **36** 1627
- Mizushima M 1964 *Phys. Rev. A* **133** A414
- Moccia R and Spizzo P 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **21** 1121
- Moore C E 1958 "*Atomic Energy Levels*" NBS Circular No 467 (Washington, DC US Govt Printing Office)
- Nakhate S G, Ahmad S A, Razvi M A N and Saksena G D 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys.* **24** 4973
- Nesmeyanov A M 1963 "*Vapor Pressure of the Chemical Elements*" (New York:Elsevier))



NIST Mg I, Ca I, Mg II, Ca II, (Sr II – μόνο γραμμές)

NIST Atomic Spectra Database Levels Form ver. 3.1.3 (Online)

http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html

NIST Atomic Spectra Database Lines Form ver. 3.1.3 (Online)

http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html

Petite G, Fabre F, Agostini P, Crance M and Aymar M 1984 *Phys. Rev. A* **29** 2677

Perry M, Szöke A, Landen O and Campbell E 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 1270

Preses M, Burkhardt C E, Garver W P and Leventhal J J 1984 *Phys. Rev. A* **29** 985

Radzig A A and Smirnov B M 1986 “*Reference Data on Atoms, Molecules and Ions*”

Srpingser Ser. Chem. Phys. v.31 (Springer, Berlin-Heidelberg)

Rudati J, Chaloupka J L, Agostini P, Kulander K C and DiMauro L F 2004 *Phys. Rev.*

Lett. **92** 203001

Rudolph H, Tang X, Bachau H and Lambropoulos P 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 3241

Sakurai J J 1985 “*Modern Quantum Mechanics*” (The Benjamin / Cummings

Publishing Company, Inc.)

Samson Y 1976 *Phys. Rep.* **28** 303

Shao Y L, Zafirooulos V, Georgiadis A P and Fotakis C 1991 *Z. Phys. D* **21** 299

Shao Y L, Fotakis C and Charalambidis D 1993 *Phys. Rev. A* **48** 3636

Shore B W 1990 “*The Theory of Coherent atomic Excitation*” v.1 (John Wiley &

Sons)

Siegman A E 1986 “*Laser*” (California: University Science Books)

Slater J C 1929 *Phys. Rev.* **34** 1293

Sobel'man I I 1979 “*Atomic Spectra and Radiative Transitions*” Springer Ser. Chem.

Phys. v.1

Sugar J and Corliss C 1985 *J. Chem. Ref. Data* **14** (Suppl. 2) 51

Tang X, Lyras A and Lambropoulos P 1989 *Phys. Rev. Lett.* **63** 972

Tang X, Lyras A and Lambropoulos P 1990 *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 456

Trahanas S 1988 “*Κβαντομηχανική III*” (Πανεπιστημιακές Εκδόσεις Κρήτης)

Vaeck N, Godefroid M and Hansen J E 1988 *Phys. Rev. A* **38** 2830

van Druten N J, Trainham R and Muller H G 1994 *Phys. Rev. A* **50** 1593

Voronov G and Delone N 1965 *JETP Lett.* **1** 66



- Walker B, Mevel E, Baorui Y, Breger P, Chambaret J P, Antonetti A, DiMauro LF
and Agostini P 1993 *Phys. Rev. A* **48** R894
- Xenakis D, Karapanagioti N E, Charalambidis D, Bachau H and Cormier E 1999
Phys. Rev. A **60** 3916
- Xu E Y, Zhu Y, Mullins O C and Gallagher T F 1985 *Phys. Rev. A* **33** 2401
- Xu E Y, Zhu Y, Mullins O C and Gallagher T F 1986 *Phys. Rev. A* **35** 1138
- Yergeau F, Chin S L and Lavigne P 1987 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **20** 723
- Zhu Y, Jones R R, Sandner W, Gallagher T F, Camus P, Pillet P and Boulmer J 1989
J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys. **22** 585
- Zoller P and Lambropoulos P 1984 "*Multiphoton Ionization of Atoms*" ed. Chin S L
and Lambropoulos P(Orlando Academic)

