

Обнаружение высокой эффективности комбинационного рассеяния при трехфотонной ионизации атома самария

А. И. Гомонай¹⁾

Институт электронной физики НАН Украины, 88017 Ужгород, Украина

Поступила в редакцию 24 мая 2007 г.

Обнаружена чрезвычайно высокая эффективность комбинационного рассеяния на атомах самария в процессе трехфотонной ионизации. В зависимости выхода ионов Sm^+ от частоты лазерного излучения наблюдался интенсивный максимум, обусловленный однофотонным переходом между двумя возбужденными состояниями $4f^6 5d 6s^9 H_2 \rightarrow 4f^5 5d 6s^2 {}^7 D_3^o$. Заселение состояния $4f^6 5d 6s^9 H_2$ осуществлялось в результате спонтанного комбинационного рассеяния $4f^6 6s^2 {}^7 F_3 + \omega - \nu \rightarrow 4f^6 5d 6s^9 H_2$.

PACS: 32.80.-t

При многофотонной ионизации атомов под действием лазерного излучения, кроме поглощения фотонов, приводящего к ионизации атомов из основного состояния, имеет место также их рассеяние [1]. В случае комбинационного (рамановского) рассеяния образуются атомы в возбужденных состояниях, что может приводить к появлению дополнительного канала резонансной ионизации атомов за счет переходов между возбужденными состояниями. Однако на сегодняшний день в литературе практически отсутствуют данные о наблюдении в спектрах многофотонной ионизации атомов дополнительных резонансов, обусловленных спонтанным комбинационным рассеянием. Имеются лишь данные, связанные с так называемым гиперкомбинационным рассеянием, при котором атомы образуются в возбужденных состояниях в результате поглощения двух фотонов лазерного излучения с частотой ω и испускания спонтанного фотона с частотой ν . При этом максимумы в спектрах многофотонной ионизации, соответствующие переходам между возбужденными состояниями, характеризуются амплитудами, на несколько порядков меньшими, чем амплитуды максимумов, обусловленных промежуточными резонансами между основным и возбужденными состояниями (см., например, [2–4]). В данной работе при исследовании трехфотонной ионизации атома самария наблюдался интенсивный максимум, связанный с комбинационным рассеянием, амплитуда которого в несколько раз превышала амплитуду максимумов, обусловленных двухфотонными промежуточными резонансами.

Исследования проводились с использованием экспериментальной аппаратуры, описанной в [5]. Линейно поляризованное излучение лазера на краси-

теле FL – 2001 (Lambda Physik) фокусировалось в пучок атомов самария. Образующиеся при этом ионы Sm^+ вытягивались постоянным электрическим полем и, после прохождения через времяпролетный масс-спектрометр, детектировались микроканальным умножителем ВЭУ – 7. Плотность атомного пучка была $\sim 10^{10} \text{ см}^{-3}$, максимальная энергия лазерного импульса $\sim 1 \text{ мДж}$ при длительности $\sim 12 \text{ нс}$ и ширине линии излучения $\sim 0.2 \text{ см}^{-1}$. Частота лазерного излучения определялась по оптогальваническому спектру неона и спектру пропускания интерферометра Фабри – Перо, которые измерялись одновременно со спектром трехфотонной ионизации атома самария. Управление экспериментом осуществлялось персональным компьютером.

На рис.1 приведена зависимость выхода ионов самария N^+ от частоты лазерного излучения ω в спектральном диапазоне $17300 - 17317 \text{ см}^{-1}$. Напряженность поля лазерного излучения в области пересечения пучков была $\sim 2.2 \cdot 10^4 \text{ В/см}$, что обеспечивало отсутствие насыщения в выходе ионов Sm^+ . Характерной особенностью зависимости $N^+(\omega)$ является широкий максимум e на частоте $\omega = 17310.6 \text{ см}^{-1}$, который по амплитуде в несколько раз превышает все другие, значительно более узкие максимумы ($a - d, f$).

В соответствии с имеющимися данными о спектре энергетических уровней атома самария [6–10] узкие максимумы a и f обусловлены двухфотонными переходами с уровня основного терма $4f^6 6s^2 {}^7 F_2$:

$$\begin{aligned} a - 4f^6 6s^2 {}^7 F_2 + 2h\omega &\rightarrow E = 35414.0, J = 3, \\ f - 4f^6 6s^2 {}^7 F_2 + 2h\omega &\rightarrow E = 35444.4, J = 1, \end{aligned}$$

где E и J – соответственно энергия в см^{-1} и полный момент возбужденного состояния. Отметим, что для

¹⁾e-mail: vkel@mail.uzhgorod.ua

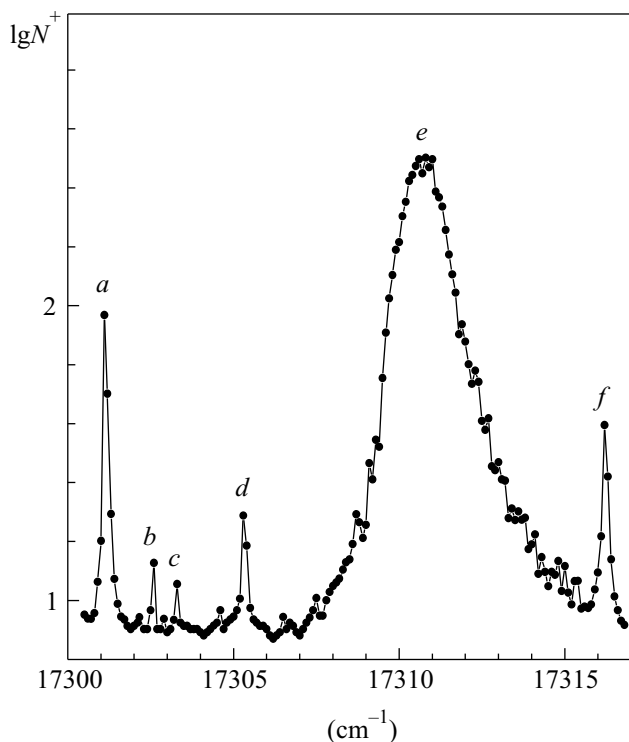


Рис.1. Зависимость выхода ионов Sm^+ от частоты лазерного излучения

высоколежащих состояний атома самария, как правило, известны лишь их энергии и полные моменты.

Максимумы $b-d$ нам не удалось однозначно идентифицировать.

Что же касается широкого максимума, то он обусловлен однофотонным переходом между возбужденными состояниями $4f^65d6s^9H_2$ и $4f^55d6s^2^7D_3^o$ [6]. При этом заселение состояния $4f^65d6s^9H_2$ происходит в результате спонтанного комбинационного рассеяния ($4f^66s^2^7F_3 + \omega - \nu \rightarrow 4f^65d6s^9H_2$). Схема этого процесса приведена на рис.2.

Отметим, что заселение состояния $4f^65d6s^9H_2$ носит нерезонансный характер, поскольку расстройка между частотой ω и частотой однофотонного перехода $4f^66s^2^7F_3 \rightarrow 4f^55d6s^2^7F_2^o$ [6] составляет $\Delta \approx 12 \text{ см}^{-1}$. Кроме этого, при рабочей температуре атомного источника $\sim 600^\circ\text{C}$, в соответствии с распределением Больцмана, заселенность состояния $4f^66s^2^7F_3$ приблизительно в 2 раза меньше заселенности состояния $4f^66s^2^7F_2$. Однако вероятность рассматриваемого процесса в несколько раз превышает вероятность трехфотонной ионизации из основного состояния $4f^66s^2^7F_2$ через двухфотонные промежуточные резонансы, о чем свидетельствует сравнение амплитуд максимумов e и a, f .

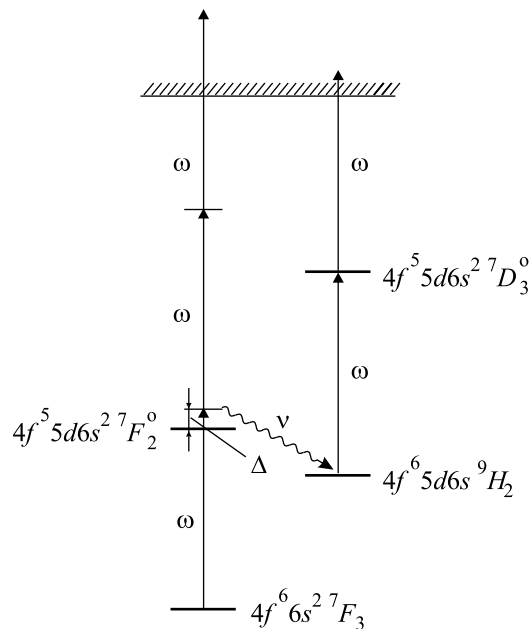


Рис.2. Схема переходов, приводящих к образованию ионов Sm^+ на частоте $\omega = 17310.6 \text{ см}^{-1}$

Большая амплитуда максимума e , на наш взгляд, обусловлена двумя причинами. Во-первых, чрезвычайно высокой эффективностью заселения состояния $4f^65d6s^9H_2$ в результате спонтанного комбинационного рассеяния. Большая вероятность комбинационного рассеяния, в свою очередь, связана, по-видимому, с тем, что частота $\omega = 17310.6 \text{ см}^{-1}$ близка к частоте однофотонного перехода $4f^66s^2^7F_3 \rightarrow 4f^55d6s^2^7F_2^o$ (17298.6 см^{-1}), что влияет на величину матричного элемента перехода $4f^66s^2^7F_3 + \omega - \nu \rightarrow 4f^65d6s^9H_2$ [1]. Во-вторых, ионизация атомов, находящихся в возбужденном состоянии $4f^65d6s^9H_2$, происходит уже в результате поглощения всего двух фотонов, причем через промежуточный однофотонный резонанс $4f^65d6s^9H_2 \rightarrow 4f^55d6s^2^7D_3^o$. А такой процесс характеризуется большей вероятностью, чем процесс трехфотонной ионизации с промежуточным двухфотонным резонансом. Следует также добавить, что терм 9H является наиболее низколежащим возбужденным термом и имеет ту же четность, что и основной терм 7F [6]. Поэтому состояние $4f^65d6s^9H_2$ является метастабильным и за время лазерного импульса не успевает распасться на более низколежащие уровни.

Большая ширина рассматриваемого максимума, а также незначительное отличие частоты, на которой он наблюдается (17310.6 см^{-1}), от частоты перехода между невозмущенными уровнями $4f^65d6s^9H_2$ и $4f^55d6s^2^7D_3^o$ (17311.3 см^{-1}) обусловлены резонанс-

ным перемешиванием указанных состояний, а также динамическим эффектом Штарка [11].

Таким образом, для эффективной реализации процесса, изображенного на рис.2, необходимо выполнение ряда условий. Во-первых, наличие низколежащих возбужденных состояний, которые могут заселяться в результате комбинационного рассеяния. Эти состояния должны быть той же четности, что и основное состояние, и иметь времена жизни, сравнимые с длительностью лазерного импульса. Во-вторых, возможность реализации однофотонного резонанса между возбужденным состоянием, заселяющимся в результате комбинационного рассеяния, и более высоколежащим состоянием. Собственно, этот резонанс и проявляется в виде максимума в спектрах многофотонной ионизации. В-третьих, наличие квазирезонанса с реальным состоянием на этапе поглощения первого фотона. В данном случае это состояние $4f^5 5d 6s^2 {}^7F_2^o$, расстройка с которым составляет $\Delta \approx 12 \text{ см}^{-1}$. В-четвертых, все переходы, в том числе и квазирезонансный, должны удовлетворять соответствующим правилам отбора. В случае атома самария можно ограничиться правилами отбора по четности и полному моменту. Что касается правил отбора по квантовым числам S и L , то, учитывая отклонение для тяжелых атомов, к которым относится самарий, от "чистой" LS -связи, можно ожидать их существенного нарушения. Это подтверждается наблюдением в спектрах поглощения и эмиссии самария интенсивных линий, обусловленных переходами, при которых $\Delta S \neq 0$ и $\Delta L \geq 2$ [12].

Именно невыполнением хотя бы одного из этих условий и объясняется, на наш взгляд, тот факт, что в большинстве экспериментов по многофотонной ионизации не наблюдаются максимумы, обусловленные комбинационным рассеянием. Атом самария, ввиду

чрезвычайно высокой плотности его спектра энергетических уровней, удовлетворяет всем перечисленным условиям и в этом плане является очень удобным объектом для исследования таких процессов.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что вклад спонтанного комбинационного рассеяния в процесс многофотонной ионизации атомов может быть весьма существенным. Поэтому его необходимо учитывать как при интерпретации резонансной структуры зависимостей $N^+(\omega)$, так и при теоретическом описании многофотонных процессов.

1. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, *Атом в сильном световом поле*, М.: Энергоатомиздат, 1984.
2. J. L. Dexter, S. M. Juffe, and T. F. Gallagher, *J. Phys. B* **18**, L735 (1985).
3. I. I. Bondar, N. B. Delone, M. I. Dudich et al., *J. Phys. B* **21**, 2763 (1988).
4. S. G. Nakhate, S. A. Ahmad, M. A. N. Razvi et al., *J. Phys. B* **24**, 4973 (1991).
5. A. I. Gomonai and O. I. Plekan, *J. Phys. B* **36**, 4155 (2003).
6. N. C. Martin, R. Zalubas, and L. Hagan, *Atomic Energy Levels. The Rare-Earth Elements – NSRDS-NBS-60*, Washington, DC:US Govt Printing Office, 1978.
7. А. Д. Зюзиков, Препринт ИСАН АН СССР, №21 (1988).
8. T. Jayasekharan, M. A. N. Razvi, and G. L. Bhale, *JOSA B* **13**, 641 (1996).
9. H. Park, Hyun-chaе Kim, Jong-hoon Yi et al., *Journal of the Korean Physical Society* **30**, 453 (1997).
10. T. Jayasekharan, M. A. N. Razvi, and G. L. Bhale, *JOSA B* **17**, 1607 (2000).
11. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, *Нелинейная ионизация атомов лазерным излучением*, М.: Физматлит, 2001.
12. W. Albertson, *Phys. Rev.* **52**, 644 (1937).