

Механизм образования двухзарядных ионов при нелинейной ионизации атомов Ва в области частот 9390–9470 см⁻¹

В.В.Суран, И.И.Бондарь

Исследован механизм образования ионов Ва²⁺ при нелинейной ионизации атомов Ва в области частот 9390–9470 см⁻¹. Показано, что он является двухэлектронным.

Ключевые слова: нелинейная ионизация, образование двухзарядных ионов, двухэлектронный механизм.

Начиная с первых экспериментов, в которых было обнаружено образование двухзарядных ионов при многофотонной ионизации атомов [1], и до настоящего времени ведутся интенсивные исследования закономерностей, особенностей и механизма образования этих ионов в различных областях спектра и при разных длительностях лазерного излучения [2]. В [3] были предложены два возможных механизма образования двухзарядных ионов А²⁺: каскадный и двухэлектронный.

При реализации каскадного механизма образование двухзарядных ионов происходит в два этапа. На первом этапе при поглощении атомами К₀ квантов происходит их ионизация, т. е. образуются однозарядные ионы А⁺. На втором этапе при поглощении однозарядными ионами К₁ квантов происходит их ионизация, т. е. образуются двухзарядные ионы А²⁺. Эти два этапа реализуются в одном лазерном импульсе. При двухэлектронном механизме образование двухзарядных ионов происходит в результате одновременного отрыва двух электронов от атома при поглощении им К₂ квантов. Отметим, что модель, которая объясняла бы одновременный отрыв двух электронов от атома, до настоящего времени не разработана.

Исследования многофотонной ионизации атомов щелочно-земельных элементов в видимой области спектра (15000–19000 см⁻¹) при линейной и циркулярной поляризации лазерного излучения показали, что резонансную структуру в зависимостях N₂₊(ω) (N₂₊ – выход двухзарядных ионов, ω – частота лазерного излучения), которая имеет место при образовании двухзарядных ионов, в большинстве случаев можно однозначно идентифицировать с резонансными переходами в спектре однозарядных ионов этих атомов (см., напр., [4–7]). Данный факт однозначно доказывает, что в видимой области спектра реализуется каскадный механизм образования двухзарядных ионов отмеченных атомов. При этом ионизация однозарядных ионов происходит не только из основного состояния ns²S_{1/2} этих ионов, но также из первых возбужденных состояний nd²D_{3/2,5/2} и np²P_{1/2,3/2}.

Подобные исследования, проведенные в ИК области спектра (8100–9100 и 9390–9500 см⁻¹), показали, что в случае, когда в зависимостях N₂₊(ω) имеет место резонансная структура, реализуется двухэлектронный механизм образования ионов Sr²⁺ и Ва²⁺ [8–10].

Настоящая статья посвящена измерению функциональной зависимости вероятностей образования ионов Ва⁺ и Ва²⁺ от интенсивности лазерного излучения F, а также выяснению механизма образования ионов Ва²⁺ в ИК области в случае, когда в выходе этих ионов не проявляется резонансная структура. Отметим, что ранее при проведении подобных исследований в видимой области спектра (ω = 18790–19000 см⁻¹) была доказана реализация каскадного механизма образования двухзарядных ионов [11].

В наших экспериментах использовался неодимовый лазер с изменяемой частотой генерации (9390–9470 см⁻¹), который излучал на одной поперечной моде. Поляризация этого излучения была линейной при длительности импульса генерации τ = 40 нс. Постановка эксперимента являлась традиционной для измерений зависимостей lg N₊(lg F) и lg N₂₊(lg F) и была детально описана в наших предыдущих работах (см., напр., [4]). Отметим, что для интерпретации измеренных нами зависимостей lg N₊(lg F) и lg N₂₊(lg F) использовались результаты исследований зависимостей N₊(ω) и N₂₊(ω) в диапазоне частот 9390–9470 см⁻¹, приведенные в [8, 12]. В этих исследованиях было обнаружено, что в зависимости N₂₊(ω) для ионов Ва²⁺ имеет место только один резонансный максимум на частоте 9410 см⁻¹. Положение его на частотной шкале и его ширина практически совпадают с положением и шириной резонансного максимума в зависимости N₊(ω) для ионов Ва⁺.

Отметим, что в зависимости N₊(ω) для ионов Ва⁺ кроме упомянутого выше максимума наблюдается резонансный максимум и на частоте 9465 см⁻¹. Один из типичных результатов исследований зависимостей lg N₊(lg F) и lg N₂₊(lg F) при ионизации атомов Ва приведен на рис. 1. Для получения более полной информации эти зависимости исследовались нами на частотах как попадающих в область локализации отмеченных выше резонансных максимумов в выходах ионов Ва⁺ и Ва²⁺, так и не попадающих в нее. Результаты исследований приведенных зависимостей позволяют сделать ряд выводов.

Ужгородский государственный университет, физический факультет, Украина, 88000 Ужгород, ул. Волошина, 54; эл.почта: qel @ iss. univ. uzhgorod. ua

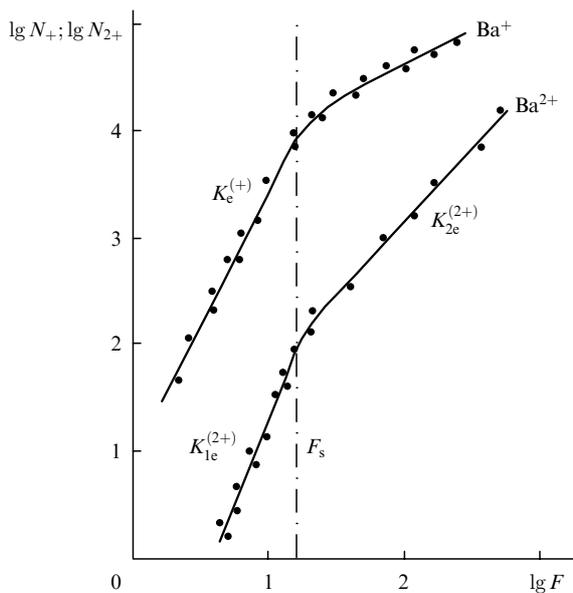


Рис.1. Зависимости выходов одно- и двухзарядных ионов бария от интенсивности лазерного излучения ($\omega = 9395 \text{ см}^{-1}$) при линейной поляризации, а также интенсивность F_s , при которой начинает реализовываться насыщение многофотонной ионизации атомов бария (вертикальная штриховая линия).

Ионы Ba^{2+} образуются не только при тех интенсивностях лазерного излучения, при которых насыщается многофотонная ионизация атомов Ba, но и при тех интенсивностях, при которых такое насыщение не реализуется. Отметим, что при насыщении многофотонной ионизации атомов происходит полная их ионизация в эффективном объеме взаимодействия лазерного излучения с пучком атомов.

Изменение степени нелинейности образования ионов Ba^{2+} происходит при интенсивности лазерного излучения F_s , соответствующей началу насыщения многофотонной ионизации атомов Ba. В условиях нашего эксперимента $F_s = 2.1 \cdot 10^{29} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$.

Зависимости $\lg N_+(\lg F)$ и $\lg N_{2+}(\lg F)$, измеренные при многофотонной ионизации атомов Ba в ИК области спектра, существенно отличаются от таких же зависимостей для этих же атомов в видимой области спектра ($\omega = 18790 - 19000 \text{ см}^{-1}$), когда реализуется каскадный механизм образования двухзарядных ионов [11]. Так, в случае реализации каскадного механизма двухзарядные ионы с большой эффективностью образуются только при интенсивности лазерного излучения, соответствующей насыщению многофотонной ионизации атомов.

Результаты измерений при разных частотах лазерного излучения степеней нелинейности образования ионов Ba^+ при $F < F_s$ ($K_c^{(+)}$) и степеней нелинейности образования ионов Ba^{2+} при $F < F_s$ ($K_{1c}^{(2+)}$) и $F > F_s$ ($K_{2c}^{(2+)}$) приведены в табл.1; $K_{1c}^{(2+)}$, $K_{2c}^{(2+)}$ и $K_c^{(+)}$ – степени нелинейности образования двух- и однозарядных ионов соответственно.

Табл.1. Степени нелинейности образования одно- и двухзарядных ионов бария.

$\omega \text{ (см}^{-1}\text{)}$	$K_c^{(+)}$	$K_{1c}^{(2+)}$	$K_{2c}^{(2+)}$	K_3	K'_3
9395	4.9 ± 0.2	9.1 ± 0.3	2.7 ± 0.2	12–14	7–9
9412	4.1 ± 0.2	7.2 ± 0.3	2.5 ± 0.2	11–13	7–9
9465	2.1 ± 0.1	9.2 ± 0.3	2.6 ± 0.2	9–11	7–9

Рассмотрим сначала возможность интерпретации полученных степеней нелинейности образования ионов Ba^{2+} в модели каскадного механизма образования этих ионов. Отметим, что в использованной области частот для многофотонной ионизации ионов Ba^+ из основного состояния $6s^2S_{1/2}$ необходимо поглощение наибольшего числа квантов ($K_1 = 9$), а для ионизации этих ионов из возбужденного состояния $6p^2P_{3/2}^0$ – наименьшего числа квантов ($K_1 = 7$). Отметим также, что для многофотонной ионизации атомов Ba в этой области частот необходимо поглощение пяти квантов ($K_0 = 5$).

В связи с тем, что ионы Ba^+ при реализации каскадного механизма образования двухзарядных ионов являются мишенью для образования ионов Ba^{2+} , зависимость выхода ионов Ba^{2+} от интенсивности лазерного излучения F в области $F > F_s$ должна экстраполироваться в виде $N_{2+} \sim F^{K_1}$. Это обусловлено тем, что при $F > F_s$ в эффективном объеме V_{eff} , где происходит эффективное образование двухзарядных ионов, из-за полной ионизации атомов концентрация однозарядных ионов n практически не зависит от интенсивности излучения и равна первоначальной концентрации нейтральных атомов ($n \approx n_0$).

В области же интенсивностей $F < F_s$, где насыщение ионизации атомов не реализуется, выход ионов Ba^{2+} должен экстраполироваться зависимостью $N_{2+} \sim F^{K_c^{(+) + K_1}$. Это обусловлено тем, что при $F < F_s$ в эффективном объеме V_{eff} концентрация однозарядных ионов зависит от интенсивности этого излучения как $n \sim F^{K_c^{(+)}}$. Отмеченный выше характер зависимостей $N_{2+}(F)$ должен иметь место при нерезонансной многофотонной ионизации однозарядных ионов. Действительно, лишь в этом случае степень нелинейности ионизации этих ионов, которая наблюдается в эксперименте, должна совпадать с числом квантов K_1 . Кроме того, также предполагается, что при многофотонной ионизации атомов однозарядные ионы образуются только в одном определенном состоянии (в основном или в одном возбужденном).

Из-за отсутствия в исследуемом диапазоне частот экспериментальных данных о распределении по различным состояниям ионов Ba^+ , которые образуются при многофотонной ионизации атомов, будем предполагать, что эти ионы образуются лишь в основном состоянии $6s^2S_{1/2}$ или только в возбужденном состоянии $6p^2P_{3/2}^0$, энергия которого больше энергий состояний $5d^2D_{3/2,5/2}$. Отметим, что при исследовании многофотонной ионизации атомов Ba в видимой области спектра большая эффективность образования ионов Ba^+ была обнаружена только в отмеченных выше состояниях [4–7].

При нерезонансной ионизации ионов Ba^+ из отмеченных выше состояний степень нелинейности ионизации этих ионов K'_1 должна находиться в интервале от $K_1 = 7$ (когда ионы Ba^+ ионизируются только из возбужденного состояния $6p^2P_{3/2}^0$) до $K_1 = 9$ (когда ионы Ba^+ ионизируются только из основного состояния $6s^2S_{1/2}$), т. е. $K'_1 = 7-9$. Из приведенного выше обсуждения следует, что в случае реализации каскадного механизма образования двухзарядных ионов зависимость выхода ионов Ba^{2+} от интенсивности лазерного излучения при $F < F_s$ и $F > F_s$ должна экстраполироваться зависимостью со степенями нелинейности $K_3 = K_c^{(+)} + K'_1$ и $K'_3 = K'_1$ соответственно.

Из табл.1 следует, что степени нелинейности $K_{2c}^{(2+)}$, которые наблюдаются в области насыщения многофотонной ионизации атомов (при $F > F_s$), практически не

зависят от частоты лазерного излучения. Степени же нелинейности $K_{1e}^{(2+)}$, которые наблюдаются в области отсутствия насыщения многофотонной ионизации атомов (при $F < F_s$), являются примерно одинаковыми для тех частот, на которых не реализуется резонансная структура в выходе ионов Ва²⁺. Кроме того, на всех частотах имеют место соотношения $K_{1e}^{(2+)} < K_3$ и $K_{2e}^{(2+)} < K_3'$.

Наблюдение в эксперименте степеней нелинейности $K_{1e}^{(2+)}$ и $K_{2e}^{(2+)}$, которые не совпадают с K_3 и K_3' соответственно, противоречит модели каскадного механизма образования ионов Ва²⁺. В первую очередь это относится к наблюдаемой в эксперименте степени нелинейности $K_{2e}^{(2+)}$ (при $F > F_s$). Действительно, как показали наши исследования [11] и исследования других авторов [13, 14], проведенные в видимой области спектра, при реализации каскадного механизма образования двухзарядных ионов в области интенсивностей $F > F_s$ наблюдаются степени нелинейности $K_{2e}^{(2+)}$, совпадающие со степенью нелинейности K_1 , т.е. с числом квантов, поглощение которых необходимо для реализации нерезонансной многофотонной ионизации однозарядных ионов из определенных начальных состояний.

Кроме того, как уже отмечалось, в видимой области спектра двухзарядные ионы с большой эффективностью образуются только в области насыщения ионизации атомов. Это обусловлено тем, что в эффективном объеме V_{eff} при $F > F_s$ находятся только однозарядные ионы, которые являются мишенью для образования двухзарядных ионов.

Наблюдение степеней нелинейности образования ионов Ва²⁺ ($K_{2e}^{(2+)}$), которые меньше K_3 , также противоречит модели каскадного механизма образования этих ионов. Модели каскадного механизма образования ионов Ва²⁺ противоречит и наблюдаемое аномально большое отношение выходов одно- и двухзарядных ионов ($N_+/N_{2+} \leq 10^2$) в области интенсивностей, где насыщение многофотонной ионизации атомов Ва не реализуется (при $F < F_s$). Так, оценки по методике, приведенной в [5], показывают, что в случае реализации каскадного механизма образования ионов Ва²⁺ расчетное отношение выходов одно- и двухзарядных ионов N_+/N_{2+}^c должно составлять примерно 10^7 и 10^{10} при нерезонансной многофотонной ионизации ионов Ва⁺ из состояний $6p^2P_{3/2}^0$ и $6s^2S_{1/2}$ соответственно. Отметим, что для оценок отношения N_+/N_{2+}^c мы использовали типичные сечения ионизации атомов [15], поскольку, как показали данные работы [11], сечения многофотонной ионизации ионов Sr⁺ и Ва⁺ (при $K_1 = 4$ и $K_1 = 5$) примерно совпадают с сечениями многофотонной ионизации атомов.

Видно, что между экспериментальным отношением N_+/N_{2+} и рассчитанным отношением N_+/N_{2+}^c , которое должно быть при реализации каскадного механизма, существует большое различие. Отметим, что такие же оценки отношения N_+/N_{2+}^c , проведенные для видимой области спектра при реализации каскадного механизма образования двухзарядных ионов, хорошо согласуются с отношением N_+/N_{2+} , которое наблюдается в экспериментах [5], выполненных в этой же области спектра.

Таким образом, результаты исследований зависимостей $\lg N_{2+}(\lg F)$ для ионов Ва²⁺ не могут быть объяснены реализацией каскадного механизма образования этих ионов.

Рассмотрим возможность объяснения полученных результатов в рамках реализации модели двухэлектрон-

ного механизма образования ионов Ва²⁺. В этом случае при образовании двухзарядных ионов мишенью являются нейтральные атомы. Для одновременного отрыва двух электронов от атома Ва (при реализации двухэлектронного механизма) в зависимости от частоты лазерного излучения необходимо поглощение $K_2 = 13$ или 14 квантов. Следовательно, при реализации этого механизма в условиях нерезонансного отрыва двух электронов от атома и интенсивности лазерного излучения $F < F_s$ выход ионов Ва²⁺ должен экстраполироваться зависимостью $N_{2+} \sim F^{K_2}$.

Между величинами $K_{1e}^{(2+)}$ из табл.1 и приведенными выше K_2 имеет место большое различие, причем оно наблюдается и в той области частот, где в частотных зависимостях $N_+(\omega)$ и $N_{2+}(\omega)$ (для ионов Ва⁺ [12] и Ва²⁺ [8] соответственно) резонансная структура не проявляется. Этот факт противоречит нерезонансному механизму отрыва двух электронов от атома.

Как и при анализе реализации каскадного механизма образования двухзарядных ионов, нами были проведены оценки отношения N_+/N_{2+}^c для нерезонансного отрыва двух электронов от атома. Эти оценки показывают, что N_+/N_{2+}^c должно существенно превышать то отношение, которое должно быть в случае реализации каскадного механизма образования двухзарядных ионов (поскольку $K_2 > K_1$), и существенно превышать N_+/N_{2+} , имеющее место в эксперименте. Таким образом, наблюдаемое в эксперименте аномально большое отношение выходов одно- и двухзарядных ионов ($N_+/N_{2+} \leq 10^2$) при $F < F_s$ также противоречит нерезонансному механизму отрыва двух электронов от атома.

Рассмотренные выше два факта могут указывать на реализацию некоторого «резонансного» отрыва двух электронов от атома.

Как уже отмечалось в начале статьи, в настоящее время в литературе отсутствует описание модели, которая объясняла бы этот «резонансный» процесс, т.е. сам механизм одновременного отрыва двух электронов от атома. В связи с этим мы не можем однозначно сказать, какая степень $K_{1e}^{(2+)}$ должна наблюдаться в эксперименте при реализации двухэлектронного механизма образования двухзарядных ионов.

Тем не менее полученные нами результаты исследований все же указывают на двухэлектронный механизм образования ионов Ва²⁺. В первую очередь об этом свидетельствует тот факт, что ионы Ва²⁺ с большой эффективностью образуются при тех интенсивностях лазерного излучения, при которых насыщение многофотонной ионизации атомов Ва не реализуется (при $F < F_s$), т.е. в тех случаях, когда в эффективном объеме V_{eff} концентрация атомов существенно больше концентрации однозарядных ионов. Этот факт указывает на то, что мишенью для образования ионов Ва²⁺ являются нейтральные атомы. Как уже отмечалось, при каскадном образовании двухзарядные ионы с большой эффективностью образуются только при насыщении ионизации атомов, т.е. тогда, когда в эффективном объеме V_{eff} имеется существенно большая концентрация однозарядных ионов, чем атомов [11, 13, 14].

Таким образом, результаты исследований доказывают, что двухэлектронный механизм образования ионов Ва²⁺ реализуется при нелинейной ионизации атомов.

Из зависимостей $\lg N_2(\lg F)$ и $\lg N_{2+}(\lg F)$ можно оценить вероятность реализации двухэлектронного ме-

ханизма образования Ba^{2+} в области интенсивностей, где насыщение ионизации атомов Ba не реализуется. Эти оценки показывают, что в области интенсивностей $F = (1.3-2.1) \cdot 10^{29} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ вероятность W_1 образования ионов Ba^+ изменяется в интервале $10^{6.9} - 10^{7.9} \text{ с}^{-1}$, а вероятность W_2 образования ионов Ba^{2+} – от $10^{4.1}$ до $10^{5.8} \text{ с}^{-1}$.

1. Суран В.В., Запесочный И.П. *Письма в ЖТФ*, **1**, 973 (1975).
2. Delone N.B., Krainov V.P., Suran V.V. *Laser Phys.*, **2**, 815 (1993).
3. Алексахин И.С., Запесочный И.П., Суран В.В. *ЖЭТФ*, **76**, 887 (1979).
4. Бондарь И.И., Дудич М.И., Суран В.В. *ЖЭТФ*, **90**, 1952 (1986).
5. Bondar I.I., Delone N.B., Dudich M.I., Suran V.V. *J.Phys.B*, **21**, 2763 (1988).
6. Suran V.V. *Laser Phys.*, **7**, 665 (1997).
7. Suran V.V. *Laser Phys.*, **7**, 1220 (1997).
8. Delone N.B., Bondar I.I., Suran V.V. Zon B.A. *Optics Comms*, **40**, 268 (1982).
9. Бернат Т.Т., Бондарь И.И., Суран В.В. *Оптика и спектроскопия*, **71**, 22 (1991).
10. Бондарь И.И., Суран В.В. *Письма в ЖЭТФ*, **68**, 796 (1998).
11. Suran V.V. *Laser Phys.*, **7**, 637 (1997).
12. Bondar I.I., Gomony A.I., Delone N.B., Zapesochny I.P., Suran V.V. *J. Phys. B*, **17**, 2049 (1984).
13. Feldmann D., Krautwold J., Chin S.L., Hellfeld A., Welge K.H. *J.Phys.B*, **15**, 1663 (1982).
14. DiMauro L.F., Dalwoo Kim, Courtney M. W., Anselment M. *Phys.Rev. A*, **38**, 2338 (1988).
15. Ammosow M.V., Delone N.B., Ivanov M. Yu., Bondar I.I., Masalov A.V. *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, **29**, 33 (1992).

V.V.Suran, I.I.Bondar: Mechanism of double-charge ion formation under nonlinear ionisation of Ba atoms in a frequency range of 9390 – 9470 cm^{-1} .

A mechanism of Ba^{2+} ion formation under nonlinear ionization of Ba atoms in a frequency range of 9390–9470 cm^{-1} is studied. The ions are shown to be produced by the two-electron mechanism.