

**Российская академия наук
Сибирское отделение
Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова**

На правах рукописи

Бетеров Илья Игоревич

**ФОТОИОНИЗАЦИЯ И СТОЛКНОВИТЕЛЬНАЯ
ИОНИЗАЦИЯ РИДБЕРГОВСКИХ АТОМОВ В ПОЛЕ
ТЕПЛОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

01.04.05 «Оптика»

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

**Научный руководитель
доктор физико-математических наук
Рябцев Игорь Ильич**

Новосибирск – 2008

СОДЕРЖАНИЕ

Введение	4
Глава 1. Обзор литературы по столкновительной ионизации и радиационным процессам в ридберговских атомах щелочных металлов	14
1.1. Основные свойства ридберговских атомов, методы возбуждения, регистрации, процессы ионизации с их участием	16
1.2. Базовая теоретическая модель хемоионизации ридберговских атомов (модель DSMJ).....	23
1.3. Экспериментальные исследования столкновительной ионизации ридберговских атомов щелочных металлов	31
1.4. Радиационные переходы в ридберговских атомах, индуцированные тепловым излучением.....	37
1.5. Фотоионизация ридберговских атомов тепловым излучением	44
Глава 2. Теоретическая модель ионизации ридберговских атомов в столкновениях и под действием теплового излучения	48
2.1. Влияние распределения по скоростям в газовой ячейке, эффузионном пучке и скрещенных пучках на скорость столкновительной ионизации.....	49
2.2. Эффект закручивания траекторий сталкивающихся атомов.....	50
2.3. Перемешивание состояний с различными орбитальными моментами	52
2.4. Стохастическая диффузия ридберговского электрона по энергетическому спектру	54
2.5. Влияние перераспределения заселенностей ридберговских состояний под действием теплового излучения на процессы ионизации	60
2.6. Расчеты скорости прямой фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением	62
2.7. Ионизация высоколежащих ридберговских состояний вытягивающим электрическим полем	74
2.8. Расчеты эффективной скорости ионизации ридберговских атомов тепловым излучением.....	80
2.9. Эффективные константы скорости ассоциативной ионизации в поле теплового излучения.....	86

Глава 3. Методика экспериментального измерения скорости ассоциативной ионизации и тепловой фотоионизации ридберговских атомов натрия	90
3.1. Схема экспериментальной установки.....	90
3.2. Определение концентрации атомов в пучке	93
3.3. Атомарные и молекулярные ионизационные сигналы	96
3.4. Метод измерения скорости ассоциативной ионизации	102
3.5. Измерение распределения по скоростям в эффузионном пучке.....	110
Глава 4. Результаты экспериментального и теоретического исследования процессов ионизации ридберговских атомов натрия	115
4.1. Ионизация ридберговских атомов натрия тепловым излучением...	115
4.2. Ассоциативная ионизация ридберговских атомов натрия в одиночном пучке.....	119
4.3. Ассоциативная ионизация ридберговских атомов натрия в скрещенных пучках.....	122
Заключение.....	130
Список литературы	132

Введение

Интерес к исследованиям атомов в высоковозбужденных (ридберговских) состояниях связан с их уникальными свойствами – большими временами жизни и геометрическими размерами, и, как следствие, большими дипольными моментами переходов и высокой чувствительностью к электромагнитным полям [1]-[3]. Для ридберговских атомов существуют эффективные методы лазерного возбуждения и регистрации, обеспечивающие высокую селективность и чувствительность, поэтому в экспериментах можно исследовать разнообразные процессы с участием ридберговских атомов, например, изучать спектры переходов или столкновительную ионизацию. Особенностью таких экспериментов является то, что ридберговские атомы всегда находятся в поле фонового теплового излучения, которое из-за большой вероятности дипольных переходов между дискретными ридберговскими состояниями и переходов в непрерывный спектр (фотоионизация) оказывает существенное влияние на эволюцию населенностей уровней во времени.

Большие геометрические размеры ридберговских атомов приводят к тому, что роль столкновений с другими атомами становится намного более существенной, чем для атомов в основном или низких возбужденных состояниях [1],[4],[5]. Столкновения могут приводить к рассеянию атомов, перемешиванию ридберговских состояний, а также к ионизации атомов. Процессы ионизации ридберговских атомов играют важную роль в астрофизической и лабораторной плазме, понимание физики столкновений может оказаться существенным при разработке эффективных методов лазерного разделения изотопов [1]. Методы, используемые в теории столкновений с участием ридберговских атомов, принципиально отличаются от тех, что разработаны для изучения столкновений атомов и молекул в основном состоянии. Основное различие заключается в том, что ридберговский атом, сталкивающийся с атомом в основном состоянии, нельзя рассматривать как единое целое. В таких столкновениях система сталкивающихся частиц рассматривается как квазимолекулярный ион, взаимодействующий с ридберговским электроном. При этом важно отметить, что столкновительная ионизация ридберговских атомов происходит в поле

теплового излучения, которое может перемешивать соседние ридберговские уровни и даже фотоионизовать атомы, и, в результате этого, влиять на измеряемые константы скорости столкновительной ионизации.

Особый интерес для сравнения теории и эксперимента представляют процессы ионизации ридберговских атомов щелочных металлов [5]. На внешней электронной оболочке таких атомов находится только один электрон, что позволяет значительно упростить расчеты скорости рассматриваемых процессов и применять для вычислений водородоподобные волновые функции (метод квантового дефекта). Ранее в экспериментах с атомными пучками, в основном, исследовались ридберговские атомы лития, калия и натрия, для возбуждения которых применялись лазеры на красителях. В современных исследованиях холодных ридберговских атомов, в частности, в исследованиях ультрахолодной ридберговской плазмы [6]-[16], образующейся при ионизации ридберговских атомов лазерным или тепловым излучением, широко используются атомы рубидия и цезия [9],[12], возбуждаемые полупроводниковыми лазерами.

Квантово-механическая теория столкновительной ионизации ридберговских атомов была разработана Михайловым, Яневым, Думаном и Шматовым [17]-[19] (модель DSMJ). Особый интерес для исследований столкновительной ионизации ридберговских атомов щелочных металлов представляет диапазон главных квантовых чисел $n=10-20$, так как теоретические расчеты предсказывают существование максимума для констант скорости столкновительной ионизации в данном диапазоне [17]. Однако при сравнении теории с последующими немногочисленными экспериментами были обнаружены значительные расхождения, как по абсолютной величине, так и по форме зависимости констант скорости ионизации от главного квантового числа. Одна из возможных причин заключается в том, что модель DSMJ не учитывает стохастической динамики рассматриваемой системы. Для решения этой проблемы Безугловым и др. [20]-[22] были разработаны новые методы расчета скорости ионизации, учитывающие диффузию ридберговского электрона в пространстве энергетических состояний. Для проверки диффузионной модели столкновительной ионизации необходимы новые экспериментальные данные. Кроме того, необходимы новые теоретические расчеты, описывающие процессы ионизации ридберговских атомов в реальных экспериментальных условиях, в

том числе – учитывающие влияние теплового излучения. Этим обусловлена **актуальность** темы настоящей диссертации.

В настоящее время возобновление интереса к процессам ионизации ридберговских атомов связано с последними исследованиями ультрахолодной плазмы, образующейся в результате ионизации облака холодных ридберговских атомов [7]. В ультрахолодной плазме (температура ионов около 1 К) энергия кулоновского взаимодействия заряженных частиц превышает среднюю кинетическую энергию, и вещество находится в сильно связанном состоянии. По своим свойствам ультрахолодная плазма существенно отличается от широко исследованной высокотемпературной плазмы и представляет значительный интерес для проверки основ теории плазмы в более широком диапазоне температур и концентраций вещества. Ионизация ридберговских атомов в столкновениях с атомами в основном состоянии и фотоионизация тепловым излучением при $n < 40$ являются основными механизмами спонтанной ионизации облака холодных атомов, приводящей к возникновению ультрахолодной плазмы. Для более высоких состояний ($n > 40$) значительную роль играет также взаимодействие ридберговских атомов друг с другом.

Несмотря на то, что взаимодействие ридберговских атомов щелочных металлов с тепловым излучением исследуется довольно давно [23], процессу фотоионизации излучением черного тела уделялось недостаточно внимания и систематических исследований зависимости скорости фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов от главного квантового числа, по имеющимся у нас данным, не проводилось. До сих пор для оценки скорости фотоионизации тепловым излучением применяется простое выражение из работы [24], в котором пренебрегается зависимостью от орбитального момента, что неприменимо для nS , nP и nD состояний щелочных металлов с большими квантовыми дефектами. Необходимы точные расчеты скорости фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов, имеющие экспериментальное подтверждение, и приближенные формулы, пригодные для достаточно точных оценок.

Целью диссертации являлось экспериментальное и теоретическое исследование процессов ионизации тепловым излучением и столкновительной ионизации ридберговских атомов щелочных металлов.

Научная новизна полученных результатов заключается во впервые проведенном систематическом измерении констант скорости ассоциативной ионизации и тепловой фотоионизации ридберговских nS и nD атомов натрия в диапазоне главных квантовых чисел $n=8-20$, и теоретическом расчете зависимости скорости тепловой фотоионизации ридберговских nS , nP и nD атомов лития, натрия, калия, рубидия и цезия от n в более широком диапазоне $n=8-65$. Для измерения констант скорости ассоциативной ионизации был использован оригинальный метод, основанный на измерении отношения скоростей образования атомарных и молекулярных ионов, что позволило связать константы скорости ассоциативной ионизации и скорость тепловой фотоионизации, которая также была измерена в эксперименте. Разработанный нами метод обладает большей надежностью при измерении формы зависимости констант скорости ионизации от главного квантового числа n , по сравнению с методами, применяемыми в других работах. Впервые был проведен количественный анализ вклада в измеряемые ионизационные сигналы от процессов перемешивания ридберговских состояний тепловым излучением и полевой ионизации высоколежащих состояний электрическими импульсами при регистрации ионов. Это позволило провести корректное сравнение теории столкновительной ионизации с экспериментом. Полученные аналитические формулы позволяют быстро выполнять оценку скорости ионизации любых ридберговских атомов тепловым излучением.

Практическая значимость полученных результатов заключается в разработке новой теоретической модели, позволяющей более адекватно описывать ионизационные и радиационные процессы с участием ридберговских атомов. Эти процессы интенсивно исследуются в экспериментах по физике плазмы, в том числе и ультрахолодной ридберговской плазмы. Разработанный нами метод измерения констант скорости ассоциативной ионизации может быть применен для систематических измерений в различных диапазонах квантовых чисел для ридберговских состояний любых щелочных металлов.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Разработанная модель ассоциативной ионизации ридберговских атомов щелочных металлов позволяет улучшить согласие между теорией и экспериментом по абсолютной величине и форме

зависимости от главного квантового числа для скорости ионизации ридберговских nS и nD атомов натрия ($n=8-20$) в одиночном атомном пучке и скрещенных пучках, по сравнению с базовой моделью DSMJ.

2. Учет перемешивания соседних ридберговских состояний полем теплового излучения, а также заселения этим полем высоколежащих ридберговских состояний дает значительный вклад (до 50%) в измеряемые скорости ионизации ридберговских атомов тепловым излучением и константы скорости ассоциативной ионизации.
3. Использование сигнала от атомарных ионов, образованных вследствие ионизации ридберговских атомов тепловым излучением, в качестве опорного сигнала позволяет измерять абсолютные значения скорости ассоциативной ионизации в одиночном и скрещенных атомных пучках без измерения количества ридберговских атомов в объеме возбуждения. В случае скрещенных пучков этот метод позволяет выделить вклад от внутренних столкновений в каждом из двух пучков.
4. Разработанная модель ионизации ридберговских атомов тепловым излучением, учитывающая перемешивание соседних ридберговских состояний тепловым излучением и ионизацию вытягивающими электрическими импульсами высоколежащих ридберговских состояний, заселенных тепловым излучением, хорошо согласуется с экспериментом для nD состояний ($n=8-20$) и nS состояний ($n=8-15$) в атомах натрия.
5. Полученные аналитические формулы для скоростей прямой фотоионизации и ионизации высоколежащих ридберговских состояний правильно описывают форму зависимости скорости ионизации ридберговских nS , nP и nD состояний щелочных металлов с различными квантовыми дефектами от главного квантового числа n и согласуются с точным численным расчетом при $n < 50$.

Краткое содержание работы по главам

Во введении обосновывается актуальность темы диссертации, сформулированы цель и научная новизна работы, изложены основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе диссертации обсуждаются основные свойства ридберговских атомов и проведен обзор современного состояния теоретических и экспериментальных исследований столкновительной ионизации ридберговских атомов и радиационных процессов, индуцированных фоновым тепловым излучением.

Во второй главе диссертации представлена стохастическая модель столкновительной ионизации, обоснована необходимость учитывать в расчетах констант скорости ионизации различие распределений по скоростям сталкивающихся частиц в газовой ячейке, атомном пучке и скрещенных пучках; закручивание траекторий движения сталкивающихся атомов, связанное с их поляризацией; перемешивание состояний с различными орбитальными моментами в результате столкновений, а также заселение соседних и высоколежащих ридберговских состояний под действием теплового излучения. Рассчитаны скорости ионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением в широком диапазоне главных квантовых чисел.

В разделе 2.1 рассматривается влияние распределения по скоростям сталкивающихся атомов в эффузионном пучке и скрещенных пучках на скорость столкновительной ионизации. Распределения по скоростям столкновений в одиночном атомном пучке и скрещенных пучках отличаются от распределения по скоростям в газовой ячейке, что приводит к существенному изменению средних энергий столкновений, для которых измеряются константы скорости столкновительной ионизации [25].

В разделе 2.2 обсуждается эффект закручивания траекторий сталкивающихся атомов в притягивающем потенциале и его влияние на константы скорости ассоциативной ионизации [26]. Закручивание приводит к уменьшению максимальных значений прицельных параметров сталкивающихся

атомов, при которых возможна столкновительная ионизация. Показано, что учет закручивания необходим при теоретическом анализе столкновений в одиночном пучке и менее важен для скрещенных пучков.

В разделе 2.3 рассматривается процесс перемешивания состояний с различными орбитальными моментами, предшествующий столкновительной ионизации. Прежде чем сталкивающиеся атомы натрия сблизятся до расстояний, при которых ионизация становится возможной, ридберговские nD состояния в результате L -перемешивания превратятся в водородоподобный набор состояний с орбитальными моментами $L < n$ [27]. Для ридберговских nS состояний натрия L -перемешиванием можно пренебречь.

В разделе 2.4 описывается явление стохастической диффузии ридберговского электрона по энергетическому спектру [20]-[22]. Уровни энергии квазимолекулы, образованной сталкивающимися атомами, имеют многочисленные пересечения. Во время сближения сталкивающихся атомов в результате диполь-дипольного взаимодействия ридберговского электрона с квазимолекулярным ионом, образованным остовом ридберговского атома и атомом в основном состоянии, происходят переходы между пересекающимися уровнями энергий ридберговского электрона, который стохастически дрейфует по собственному энергетическому спектру к границе ионизации.

В разделе 2.5 исследуется влияние перераспределения заселенностей ридберговских состояний под действием теплового излучения на процессы ионизации. После первоначального возбуждения состояния лазерным импульсом, индуцированные тепловым излучением переходы приводят к заселению соседних состояний. Кроме того, тепловое излучение также индуцирует переходы в высоколежащие ридберговские состояния. В реальных экспериментах эти состояния могут ионизоваться электрическими импульсами, применяемыми для вытягивания ионов в область детектора заряженных частиц. Полученные нами результаты показали, что эти процессы влияют как на абсолютную величину скорости индуцированной тепловым излучением ионизации, так и на форму ее зависимости от главного квантового числа.

В разделе 2.6 приведены результаты численных и аналитических расчетов скорости прямой фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением. Для точных численных расчетов была использована

квазиклассическая модель, разработанная Дьячковым и Панкратовым [28],[29]. Для менее точных аналитических расчетов использовались аналитические формулы для сечений фотоионизации, опубликованные Гореславским, Делоне и Крайновым (модель ГДК) [30]. Нами получено простое выражение для скорости прямой фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением.

В разделе 2.7 рассматривается ионизация заселенных тепловым излучением высоколежащих ридберговских состояний вытягивающим электрическим полем.

В разделе 2.8 приведены результаты расчетов полной скорости ионизации ридберговских атомов тепловым излучением. Показано, что индуцированное тепловым излучением перемешивание может приводить к значительному увеличению измеряемой скорости ионизации, особенно для nS состояний лития.

В разделе 2.9 показано, что аналогично полной скорости ионизации тепловым излучением рассчитываются эффективные константы скорости ассоциативной ионизации в поле теплового излучения.

В третьей главе диссертации описана экспериментальная установка, подробно изложена методика измерений констант скорости ассоциативной ионизации и тепловой фотоионизации ридберговских атомов натрия, приведены результаты экспериментов по измерению констант скорости ассоциативной ионизации и распределения по скоростям в атомном пучке.

В разделе 3.1 приведена схема экспериментальной установки.

В разделе 3.2 описан способ определения концентрации атомов в эффузионном пучке. Концентрация рассчитывалась по геометрическим характеристикам пучка с применением надежных формул Браунинга и Поттера для давления насыщенных паров натрия [31].

В разделе 3.3 обсуждаются наблюдаемые в эксперименте атомарные Na^+ и молекулярные Na_2^+ ионизационные сигналы. Показано, что ионизация ридберговских атомов тепловым излучением является основным источником атомарных ионов, в то время как молекулярные ионы образуются в результате ассоциативной ионизации ридберговских атомов в столкновениях с атомами в основном состоянии.

В разделе 3.4 описан разработанный нами новый метод измерения констант скорости ассоциативной ионизации в одиночном пучке и скрещенных пучках по измеренным отношениям молекулярного Na_2^+ и атомарного Na^+ ионизационных сигналов в одиночных и скрещенных пучках. Предложенный метод позволяет исключить из рассмотрения такой трудно определяемый параметр, как число первоначально возбужденных ридберговских атомов.

В разделе 3.5 приведены результаты измерения распределения по скоростям в эффузионном пучке времяпролетным методом. Показано, что измеренное распределение совпадает с распределением Максвелла [32], поэтому разработанная теоретическая модель соответствует условиям эксперимента.

В четвертой главе диссертации экспериментальные данные сравниваются с теорией и проведен детальный анализ полученных результатов.

В разделе 4.1 приведены измеренные скорости ионизации ридберговских атомов натрия тепловым излучением и сравнение эксперимента с теорией. Обнаружено хорошее согласие теории с экспериментом для nD состояний и для nS состояний с $n < 15$.

В разделе 4.2 приведены результаты измерений констант скорости ассоциативной ионизации ридберговских атомов натрия в одиночном пучке и сравнение эксперимента с модифицированной моделью DSMJ и диффузионной моделью. Учет стохастической диффузии ридберговского электрона по энергетическому спектру позволил улучшить согласие теории с экспериментом по абсолютной величине и форме зависимости от главного квантового числа.

В разделе 4.3 приведены результаты измерений констант скорости ассоциативной ионизации ридберговских атомов натрия в скрещенных пучках и сравнение эксперимента с теорией. Нами были отдельно измерены суммарные константы скорости АИ в столкновениях атомов, происходящих как в скрещенных пучках, так и внутри каждого из отдельных пучков и константы скорости АИ в столкновениях атомов из разных пучков. В первом случае в столкновениях участвуют атомы, движущиеся как перпендикулярно, так и параллельно друг другу. Во втором случае в столкновениях участвуют только атомы, движущиеся в перпендикулярных направлениях. Сравнение эксперимента и теории показало, что применение стохастической модели

улучшает согласие по абсолютной величине по сравнению с модифицированной моделью DSMJ.

В Заключении сформулированы основные выводы и результаты диссертации.

Апробация работы

Основные результаты по теме диссертации докладывались и обсуждались на Международных конференциях по когерентной и нелинейной оптике ICONO/LAT (Санкт-Петербург 2005, Минск 2007), Международных конференциях Европейской группы по атомной спектроскопии EGAS (Брюссель 2003, Дублин 2005, Ишия 2006), Международной конференции по атомной физике ICAP (Рио-де-Жанейро 2004), Международном симпозиуме по молекулярным пучкам ISMB-XXI (Херсонисос 2005), Международной конференции по современным проблемам лазерной физики MPLP (Новосибирск 2004), Международной конференции по лазерной спектроскопии памяти М.Янсона (Рига 2006), Европейской конференции по атомам, молекулам и фотонам ЕСАМР (Крит 2007), Международной конференции по фотонным, электронным и атомным столкновениям ICPEAC (Фрейбург 2007), Международной конференции по квантовой электронике CLEO (Мюнхен 2007) и конференции по фундаментальной атомной спектроскопии ФАС (Звенигород 2007).

Основные результаты работы получены совместно с д.ф.-м.н. И.И. Рябцевым, д.ф.-м.н. Н.Н. Безугловым, м.н.с. Д.Б. Третьяковым, др. К. Мичулисом, др. А. Экерсом, которым автор выражает глубокую благодарность.

Глава 1. Обзор литературы по столкновительной ионизации и радиационным процессам в ридберговских атомах щелочных металлов

Ридберговскими называются атомы с валентным электроном, возбужденным в состояние с большим главным квантовым числом $n \gg 1$ [1]-[3]. Исследования ридберговских атомов начались с работ Амальди и Сегре [33], в которых изучалось рассеяние ридберговского электрона на атомах благородных газов и атомный диамагнетизм. Впоследствии интерес к ридберговским атомам был связан с наблюдением рекомбинационных переходов между ридберговскими состояниями в межзвездном пространстве [34].

Ридберговские атомы обладают целым рядом уникальных свойств [1]-[3]. Прежде всего, это большие геометрические размеры ридберговских атомов (см. Таблицу 1.1), позволяющие описывать атом с использованием полуклассических представлений, а также обуславливающие большие дипольные моменты ридберговских атомов и их высокую чувствительность к электромагнитному полю. Широкомасштабные исследования ридберговских атомов начались с появлением перестраиваемых узкополосных лазеров на красителях с высокой интенсивностью излучения в 1970-х годах, что сделало возможным селективное возбуждение ридберговских атомов в лабораторных условиях [3].

Для теоретического описания ридберговских атомов используется метод квантового дефекта [1]. Энергия ридберговского состояния описывается простой формулой Ридберга (здесь и далее в атомных единицах $e = \hbar = a_B = 1$):

$$E_n = -\frac{1}{2n_{eff}^2}, \quad (1.1)$$

где $n_{eff} = (n - \delta_L)$ – эффективное квантовое число, δ_L -квантовый дефект, зависящий от орбитального момента L валентного электрона. Для состояний с малым L классические орбиты электрона являются эллипсами с большим

Таблица 1.1 Свойства ридберговских атомов.		
	Зависимость от n_{eff}	Значения для Na(10D)
Энергия связи	n_{eff}^{-2}	0,14 эВ
Интервал между соседними состояниями	n_{eff}^{-3}	0,023 эВ
Радиус орбиты	n_{eff}^2	$147 a_B$
Геометрическое сечение	n_{eff}^4	$68000 a_B^2$
Дипольный момент $\langle nd er nf \rangle$	n_{eff}^2	$143 ea_B$
Поляризуемость	n_{eff}^7	$0,21 \text{ МГц} \times \text{см}^2/\text{В}^2$
Радиационное время жизни	n_{eff}^3	1 мкс
Интервал тонкой структуры	n_{eff}^{-3}	92 МГц
Скорость движения электрона по орбите	n_{eff}^{-1}	$2 \times 10^5 \text{ м/с}$

эксцентриситетом, проникающими в остов ридберговского атома (ядро атома и облако электронов, находящихся на внутренних электронных оболочках).

В результате поляризации атомного остова валентным электроном, атом становится неводородоподобным, уровни энергии таких атомов описываются с использованием эмпирически введенного квантового дефекта. С увеличением L орбиты электрона приближаются по форме к окружностям, а атомы становятся водородоподобными, и для них квантовый дефект с большой точностью равен нулю [3]. Квантовый дефект связан с взаимодействием между валентным электроном и электронами внутренних оболочек ридберговского атома, поэтому, в общем случае, квантовый дефект зависит от энергии ридберговского электрона [35].

Поскольку квантовый дефект является важнейшим параметром, используемым для описания ридберговских атомов, целый ряд работ был посвящен измерению и теоретическому расчету квантовых дефектов ридберговских состояний атомов щелочных металлов.

Зависимость квантового дефекта от главного квантового числа выражается расширенной формулой Ритца:

$$\delta_L = A + \frac{B}{(n-A)^2} + \frac{C}{(n-A)^4} + \frac{D}{(n-A)^6} \dots \quad (1.2)$$

Данная формула была получена в работе Хартри [36]. В большинстве задач для расчетов достаточно ограничиться первыми двумя членами разложения (1.2).

В 1983 г. в работе [37] были опубликованы коэффициенты разложения квантового дефекта ридберговских атомов щелочных металлов по степеням n . Впоследствии целый ряд работ был посвящен теоретическому расчету и экспериментальному измерению квантовых дефектов ридберговских nS , nP и nD состояний щелочных металлов с более высокой точностью [38]-[44]. Уточненные значения коэффициентов A , B , C , D разложения (1.2) для ридберговских состояний атомов щелочных металлов сведены в Таблице 1.2. Для nS , nP и nD состояний атомов натрия, калия, рубидия и цезия квантовые дефекты приведены с учетом тонкой структуры. Квантовые дефекты nF состояний (кроме лития) приведены по работе [37].

1.1. Основные свойства ридберговских атомов, методы возбуждения, регистрации, процессы ионизации с их участием

Основные параметры ридберговских атомов, приведенные в Таблице 1.1, имеют выраженную зависимость от эффективного квантового числа n_{eff} [2]. По таким ключевым свойствам, как геометрические размеры, времена жизни, поляризуемость, ридберговские атомы существенно отличаются от атомов в основном или низких возбужденных состояниях. Радиальный матричный элемент дипольного момента для переходов между соседними ридберговскими состояниями пропорционален n^2 , что делает ридберговские атомы чрезвычайно чувствительными к электромагнитному излучению, в частности, к фоновому тепловому излучению [1]-[2].

Возбуждение ридберговских состояний можно осуществить различными способами. Наиболее известны среди них следующие: рекомбинация ионов с электронами, столкновение электронов с атомами и возбуждение лазерным излучением [1].

Таблица 1.2. Квантовые дефекты δ_L ридберговских атомов щелочных металлов.

		<i>A</i>	<i>B</i>	<i>C</i>	<i>D</i>
$nS_{1/2}$	Li	0.39951183	0.02824560	0.02082123	-0.09793152
	Na	1.34796938(11)	0.060989(16)	0.019674(17)	-0.001045(354)
	K	2.1801985	0.13558	0.0759	0.117
	Rb	3.131180 4(10)	0.1784(6)	-	-
	Cs	4.049 352 7	0.238100	0.24688	0.06785
$nP_{1/2}$	Li	0.047161876	-0.02398188	0.01548488	-0.16065777
	Na	0.85544502(15)	0.112067(86)	0.0479(13)	0.0457(43)
	K	1.713892	0.233294	0.16137	0.5345
	Rb	2.6548849(10)	0.2900(6)	-	-
	Cs	3.5914856	0.380223	-0.64771	20.9538
$nP_{3/2}$	Li	-	-	-	-
	Na	0.85462615(12)	0.112344(67)	0.0497(10)	0.0406(34)
	K	1.710848	0.235437	0.11551	1.1015
	Rb	2.641673 7(10)	0.2950(7)	-	-
	Cs	3.5589599	0.392469	-0.67431	22.3531
$nD_{3/2}$	Li	0.00194211	-0.00376875	-0.01563348	0.10335313
	Na	0.014909286(97)	-0.042506(35)	0.00840(31)	
	K	0.276970	-1.0249111	-0.709174	11.839
	Rb	1.348091 71(40)	-0.60286(26)	-	-
	Cs	2.4754562	0.009320	-0.43498	-0.76358
$nD_{5/2}$	Li	-	-	-	-
	Na	0.01492422(16)	-0.042585(43)	0.00840(39)	
	K	0.2771580	-1.025635	-0.59201	10.0053
	Rb	1.3446572(30)	-0.59600(18)	-	-
	Cs	2.4663091	0.014964	-0.45828	-0.25489
$nF_{5/2}$	Li	0.00030862	-0.00099057	-0.00739661	
	Na	0.001453	0.017312	-0.7809	7.021
	K	0.010098	-0.100024	1.56334	-12.6851
	Rb	0.016312	-0.064007	-0.36005	3.239
	Cs	0.033587	-0.213732	0.70025	-3.66216



Рис. 1.1. Схема оптического возбуждения ридберговских атомов.

Наиболее эффективным является последний метод. В отличие от первых двух, он обладает селективностью, то есть позволяет возбуждать ридберговские состояния с заданными квантовыми числами n и L . Оптическое возбуждение ридберговских атомов получило широкое распространение после создания лазеров с перестраиваемой длиной волны. Помимо одноступенчатого возбуждения (ультрафиолетовым излучением из основного состояния в ридберговское) применяется многоступенчатое возбуждение излучением нескольких лазеров видимого или инфракрасного диапазона с различными длинами волн, настроенными на резонансы с переходами между различными промежуточными состояниями атома.

Как правило, энергетический интервал между основным состоянием и границей ионизации попадает в ультрафиолетовую область спектра. На Рис. 1.1 схематически показаны различные способы лазерного возбуждения. Случай 1 – это прямое однофотонное возбуждение атома из основного состояния в ридберговское. Однако вероятности переходов между основным состоянием и ридберговскими состояниями очень малы, и поэтому гораздо удобнее применять многоступенчатое резонансное возбуждение с использованием нескольких лазеров с разными частотами излучения (случай 2). Существуют и другие варианты лазерного возбуждения. В случае 3 используется нерезонансное

многоступенчатое возбуждение через виртуальное состояние, так как энергия первого лазерного фотона недостаточна для возбуждения промежуточного состояния. В случае 4 первый лазерный фотон переводит атом в определенное возбужденное состояние, затем вследствие радиационного распада атом переходит в более низкое метастабильное состояние. Для перевода атома из этого метастабильного состояния в одно из ридберговских состояний используется второй лазер.

Для проведения экспериментов, требующих временного разрешения, удобно применение импульсных лазеров. В ряде случаев применяются лазеры непрерывного действия.

Ряд исследований ридберговских атомов предполагает изучение зависимостей измеряемых величин от главного квантового числа. Основные свойства ридберговских атомов непрерывно зависят от n_{eff} , и при наблюдении различных физических эффектов также должна проявляться регулярная зависимость от эффективного квантового числа, что позволяет проводить надежные и самосогласованные измерения [2].

Столкновения ридберговских атомов с другими частицами и друг с другом представляют особый интерес из-за больших геометрических размеров ридберговских атомов. Однако сечения столкновений с участием ридберговских атомов могут существенно отличаться от геометрических, поскольку в определенных условиях ридберговский атом может оказаться «прозрачным» для сталкивающейся с ним частицы [3].

Столкновения с участием ридберговских атомов можно разделить на две категории: столкновения, в которых другая частица взаимодействует с ридберговским атомом как с целым, и столкновения, в которых взаимодействие происходит по отдельности с ридберговским электроном и положительно заряженным остовом ридберговского атома.

Так как ридберговский электрон находится далеко от остова, необходимо отдельно рассматривать взаимодействие ридберговского электрона и положительно заряженного атомного остова с нейтральным атомом. Заряженные частицы взаимодействуют с ридберговским атомом на больших расстояниях, поэтому, например, для атом-ионных столкновений следует рассматривать взаимодействие с ридберговским атомом как с целым. В столкновениях

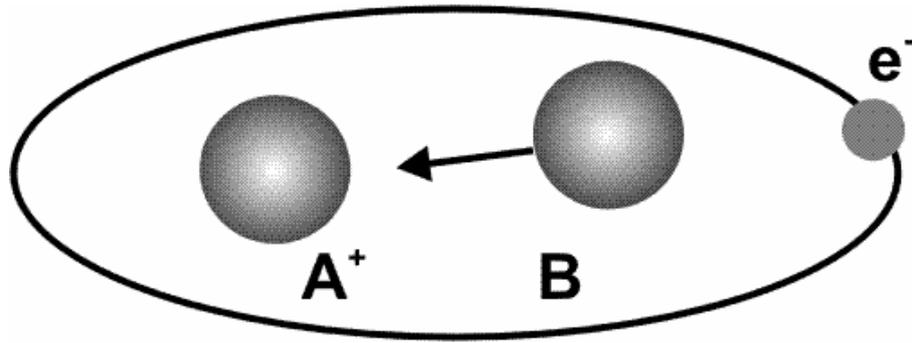


Рис. 1.2. Столкновение ридберговского атома А с нейтральной частицей В.

ридберговского атома с нейтральными невозбужденными атомами и молекулами взаимодействие с остовом ридберговского атома и ридберговским электроном происходит отдельно (Рис. 1.2).

При столкновениях низковозбужденных ридберговских атомов с атомами в основном состоянии, происходящими при тепловых энергиях, скорость ридберговского электрона значительно превышает скорость сталкивающихся ядер, что позволяет использовать адиабатические кривые потенциальных энергий для описания процесса столкновения. Использование такого подхода допустимо, поскольку быстро движущийся электрон успевает адиабатически подстраиваться под движение медленных ядер. В результате, основной вклад в сечение неупругих процессов в медленных столкновениях связан с взаимодействием остова ридберговского атома с атомом в основном состоянии, происходящим на расстояниях $R \sim 10 a_B$, где a_B - борковский радиус.

Столкновения с нейтральными частицами приводят к тушению ридберговских состояний. Полное сечение тушения σ можно представить в виде

$$\sigma = \sigma_n + \sigma_L + \sigma_i, \quad (1.3)$$

где σ_n - сечение процессов с изменением главного квантового числа n , σ_L - сечение процессов с изменением только орбитального момента L , и σ_i - сечение ионизации.

Большой интерес представляют современные эксперименты по исследованию столкновений холодных атомов [45]-[50]. В работе [45] для уменьшения энергии столкновений ЗР атомов натрия до 65 мК применялась селекция по скорости движения атомов в тепловом пучке, возникающая при

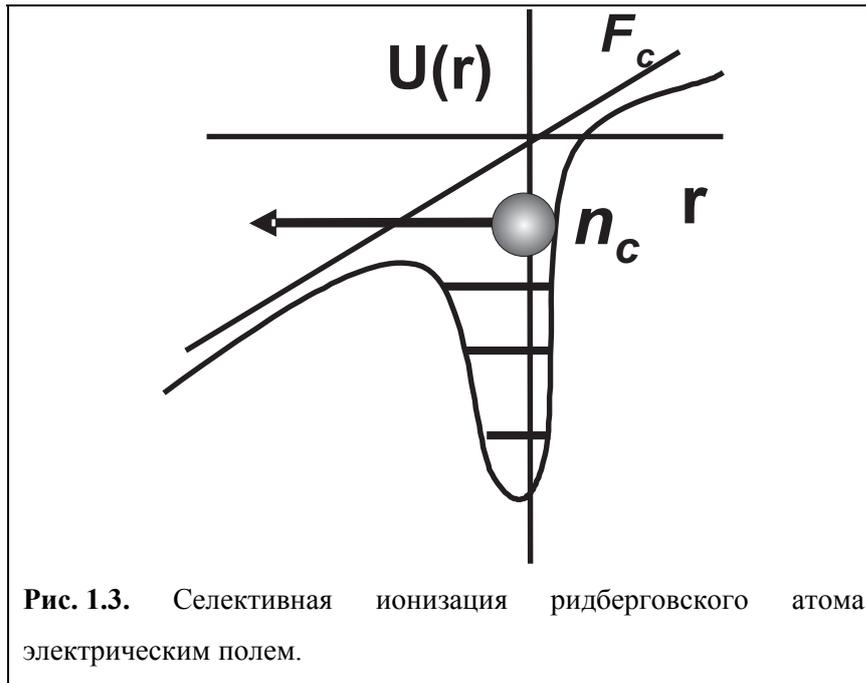
возбуждении атомов узкополосным непрерывным лазером. Обзорная работа [46] посвящена столкновениям холодных атомов в магнито-оптических ловушках. В более поздней работе [47] была исследована передача энергии возбуждения в столкновениях холодных ридберговских атомов. В работе [50] рассматривалось изменение распределения по скоростям в магнито-оптической ловушке в результате столкновений ридберговских атомов друг с другом.

Процессы ионизации ридберговских атомов играют важную роль в физике газового разряда и астрофизике при интерпретации данных об обнаруженных ридберговских атомах в атмосферах звезд, в околозвездных оболочках и в ионизованных зонах межзвездного вещества вблизи скопления горячих звезд, где ридберговские атомы образуются при рекомбинации протонов [4].

Основным методом регистрации ридберговских атомов является селективная ионизация электрическим полем [51]-[54]. В присутствии внешнего электрического поля F , направленного вдоль оси z , потенциал в атомных единицах имеет вид $V = -\frac{1}{r} + Fz$. На Рис. 1.3 приведена потенциальная энергия ридберговского электрона без электрического поля (слева), и во внешнем электрическом поле (справа). В электрическом поле на оси z образуется седловая точка в области отрицательных значений энергии. Согласно полуклассической теории, ионизация ридберговских состояний происходит в том случае, когда энергетический уровень находится выше седловой точки, высота которой определяется выражением $V = -2F^{1/2}$ в атомных единицах. Критическое значение электрического поля F_c , при котором возможна ионизация состояний с эффективным квантовым числом n_{eff} определяется классическим условием ионизации:

$$F_c = -\frac{1}{16n_{eff}^4} \quad (1.4)$$

В работе [54] приводятся формулы для расчета критических полей ионизации ридберговских состояний натрия, полученные при аппроксимации экспериментальных результатов. Введены эффективные квантовые числа n_s , зависящие от главного квантового числа n и орбитального момента атома. Для nS состояний $n_s = n - 3/2$, для nP состояний $n_s = n - 1/2 - 1/n$, для nD состояний $n_s = n - 1/2$. Значение критического поля зависит также от эффективного



квантового числа n_s и проекции орбитального момента электрона M_L на направление электрического поля:

$$\begin{aligned}
 |M_L|=0 \quad F_c &= 3,12(9) \times 10^8 \times (n_s)^{-4} \\
 |M_L|=1 \quad F_c &= 3,37(11) \times 10^8 \times (n_s)^{-4} \\
 |M_L|=2 \quad F_c &= 3,68(9) \times 10^8 \times (n_s)^{-4}
 \end{aligned}
 \tag{1.5}$$

При регистрации ридберговских состояний с помощью селективной полевой ионизации атомы ионизируются импульсом электрического поля. Образовавшиеся свободные электроны ускоряются этим же полем и регистрируются детектором (например, вторичным электронным умножителем или микроканальными пластинами). Этот метод позволяет регистрировать даже небольшие изменения населенностей ридберговских состояний, обусловленные либо спонтанными переходами, либо вызванные лазерным излучением или микроволновыми полями. По значению критического поля, при котором происходит ионизация, можно идентифицировать ридберговские состояния, определив главное квантовое число n и орбитальный момент L . В ряде случаев удастся определить и проекцию орбитального момента на направление электрического поля $|M_L|$. Метод используется как в пороговом режиме, (импульс ионизирующего поля имеет прямоугольную форму) так и в режиме временного разрешения (амплитуда электрического поля линейно возрастает во времени). В первом случае

одновременно ионизируются атомы во всех состояниях выше критического, а во втором случае происходит последовательная ионизация различных ридберговских состояний. В результате, в детектируемом сигнале наблюдается ряд пиков, каждому из которых соответствует определенное состояние атома.

Далее будут рассмотрены процессы ионизации ридберговских атомов щелочных металлов в столкновениях с нейтральными атомами того же сорта (симметричные столкновения), а также ионизация под действием теплового излучения.

Столкновительная ионизация с участием оптически возбужденных атомов относится к процессам хемоионизации [4],[5]. Процессами хемоионизации называются реакции, в которых переход в состояния ионизационного континуума происходит за счет внутренней энергии (энергии возбуждения) сталкивающихся частиц, а энергия относительного движения играет второстепенную роль.

Столкновительная ионизация ридберговских атомов щелочных металлов – один из важных элементарных процессов в низкотемпературной плазме. Сфера практического применения низкотемпературной плазмы включает в себя проблемы разработки ионных ракетных двигателей, МГД-генераторов, термоэмиссионных преобразователей энергии и детекторов излучения субмиллиметрового диапазона [4]. Экспериментальные исследования хемоионизации ридберговских атомов были инициированы в нашей стране в конце 70-х годов. Вслед за этим аналогичные исследования стали проводиться за рубежом, и началось развитие соответствующих разделов теории атомных столкновений.

1.2. Базовая теоретическая модель хемоионизации ридберговских атомов (модель DSMJ)

В теории столкновений ридберговских атомов с атомами в основном состоянии отдельно изучаются столкновения атомов одного типа (симметричные столкновения $A^{**}+A$) и столкновения атомов различных типов (несимметричные столкновения $A^{**}+B$). Симметричные столкновения ридберговского и нормального атомов могут рассматриваться в рамках четырехчастичного механизма с участием квазисвободного ридберговского электрона, валентного

электрона атома-партнера и двух ионных остовов сталкивающихся атомов [5]. Переходы между состояниями ридберговского электрона (в том числе ионизация) происходят благодаря его взаимодействию с электроном атома-партнера в процессе перезарядки ионного остова ридберговского атома A^{**} на движущемся нейтральном атоме A . Теоретическая модель процесса ионизации была независимо разработана Думаном, Шматовым [17] и Михайловым, Яневым [18],[19] и получила название DSMJ по первым буквам фамилий авторов (в англоязычной литературе). Дальнейшее развитие модель DSMJ получила в работах [55],[56], где она была применена для сравнения теории с экспериментом.

Несимметричные столкновения с участием ридберговских атомов также представляют значительный интерес для современных исследований [57]-[59].

При столкновениях ридберговского атома с невозбужденным атомом того же сорта при тепловых энергиях в рамках модели DSMJ возможны два канала ионизации:



Реакция (1.6) известна как ассоциативная ионизация (АИ), или реакция Горнбека-Молнара [4]. Ассоциативная ионизация преобладает при медленных столкновениях. Реакция (1.7) в нашей работе названа ионизацией пеннинговского типа, по аналогии с пеннинговской ионизацией (ПИ), происходящей при столкновении ридберговского атома A^{**} с атомом в первом возбужденном состоянии A^* , в которой также образуются атом в основном состоянии, атомарный ион и свободный электрон:



Определение сечений ионизации в модели DSMJ сводится к изучению временной динамики возбужденного квазимолекулярного комплекса A_2^{**} , составленного из атома в основном состоянии A и ридберговского атома A^{**} .

В модели DSMJ отдельно рассматривается эволюция квазимолекулярного иона A_2^+ и ридберговского электрона. Из-за перезарядки, происходящей между нейтральным атомом A и остовом ридберговского атома A^+ в квазимолекулярном ионе A_2^+ , электрон на внешней электронной оболочке атома в основном состоянии A периодически меняет свое положение между ядрами,

находящимися на расстоянии R друг от друга. Это может быть описано как осцилляция дипольного момента квазимолекулярного иона: $\vec{d} = \vec{R}/2 \cos\{\omega(R)t\}$, где \vec{R} - радиус-вектор, соединяющий ядра сталкивающихся атомов, множитель $1/2$ связан с тем, что максимальное расстояние от середины отрезка, соединяющего ядра (центра симметрии системы) до каждого из ядер, вблизи которых находится валентный электрон, равняется $R/2$.

Асимптотические выражения для энергии электронных термов квазимолекулярного иона были получены Смирновым [60].

Первоначальное состояние квазимолекулярного иона - терм ${}^2\Sigma_u^+$, соответствующий отталкивающему потенциалу:

$$V_u^+(R) = \frac{1}{2} \left(\frac{-\alpha}{R^4} + \Delta(R) \right). \quad (1.9)$$

Конечное состояние после ионизации - терм ${}^2\Sigma_g^+$, соответствующий притягивающему потенциалу:

$$V_g^+(R) = \frac{1}{2} \left(\frac{-\alpha}{R^4} - \Delta(R) \right). \quad (1.10)$$

R - расстояние между ядрами сталкивающихся атомов. Термы квазимолекулярного иона натрия Na_2^+ изображены на Рис. 1.4. Первый член в (1.9) и (1.10) обусловлен дальнедействующим (поляризационным) взаимодействием между Na^+ и Na ($\alpha = 162$ - поляризуемость основного состояния натрия), а второе слагаемое определяется обменным взаимодействием

$$\Delta(R) = BR^{(2/\gamma)-1} \text{Exp}(-\gamma R). \quad (1.11)$$

Параметры B и γ заданы асимптотическими свойствами волновой функции основного состояния атома [60]. Для натрия $B=0.13$ и $\gamma=0.626$.

Частота осцилляций дипольного момента квазимолекулярного иона $\omega(R)$ равна энергетическому интервалу $\Delta(R)$ между ${}^2\Sigma_u^+$ и ${}^2\Sigma_g^+$ состояниями квазимолекулярного иона: $\omega(R) = \Delta(R)$. В результате, диполь генерирует квазимонохроматическое поле $\mathfrak{Z}(t)$. Это поле взаимодействует с ридберговским электроном. Взаимодействие может быть описано оператором возмущения:

$$U_{per}(\vec{r}) = \vec{d} \nabla \left(\frac{1}{r} \right) = -\frac{1}{2} \cos[\omega(R)t] \vec{R} \frac{\vec{r}}{r^3}. \quad (1.12)$$

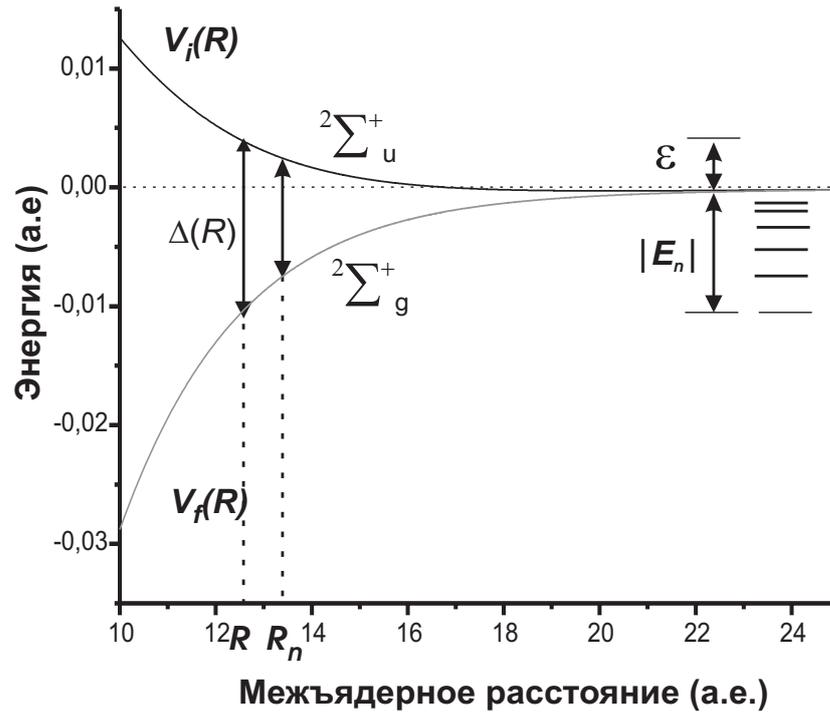


Рис. 1.4. Термы квазимолекулярного иона и процесс столкновительной ионизации.

Радиус-вектор ридберговского электрона \vec{r} направлен от центра масс иона A_2^+ , в то время как дипольный момент $\vec{d} = 1/2 \vec{R}$ квазимолекулярного иона A_2^+ направлен вдоль вектора \vec{R} , соединяющего ядра. Возмущение (1.12) ведет к оптическим дипольным переходам ридберговского электрона в континуум, индуцированным электрическим полем диполя $\mathfrak{Z}(t)$. Такие переходы могут рассматриваться как поглощение виртуального фотона с частотой $\omega(R)$.

Основной вклад в реакцию ионизации вносит область межъядерных расстояний, где ридберговский электрон становится общим для квазимолекулярного иона $A_2^+ = [A^+ + A]$, образованного остовом ридберговского атома A^+ и атомом в основном состоянии A . Движение ядер атомов рассматривается в рамках классической механики.

Ионизация становится возможной, когда частота осцилляций превысит потенциал ионизации ридберговского электрона,

$$\omega(R) = \Delta(R) > |E_n| = \frac{1}{2n_{eff}^2}. \quad (1.13)$$

При этом квазимолекулярный ион переходит на притягивающий терм $^2\Sigma_g^+$, а электрону передается энергия $\Delta(R)$ (см. Рис. 1.4).

При расчете скорости столкновительной ионизации требуется последовательное вычисление вероятности ионизации P , сечения ионизации σ и константы скорости ионизации k . Для этого необходимо определение пороговых значений межъядерного расстояния R_0 , прицельного параметра ρ_{\max} и энергии столкновения E_{\min} .

Кинетическая энергия ε вылетевшего электрона определяется разницей между потенциалом ионизации электрона и энергией, переданной электрону в столкновении:

$$\Delta(R) = |E_n| + \varepsilon. \quad (1.14)$$

Из (1.14) следует, что ионизация становится возможной, если расстояние R между ядрами сталкивающихся атомов будет меньше критического значения R_n , для которого нетрудно получить условие:

$$\Delta(R_n) = |E_n|. \quad (1.15)$$

Когда сталкивающиеся атомы достигают межъядерного расстояния $R < R_n$, состояние $^2\Sigma_u^+$ становится автоионизационным. Автоионизационная ширина терма $W(R)$ была введена Михайловым и Яневым в работе [18]. В случае симметричных столкновений атомов одного и того же химического элемента (например, столкновения $\text{Na}(3S) + \text{Na}(nL)$) автоионизационную ширину терма удастся выразить через сечение фотоионизации ридберговского атома:

$$W(R) = \frac{cR^2\Delta(R)\sigma_{ph}}{8\pi}, \quad (1.16)$$

где $c = 137$ – скорость света, σ_{ph} – сечение фотоионизации ридберговского атома на частоте $\Delta(R)$.

Расчет скорости столкновительной ионизации в модели DSMJ проводится в адиабатическом приближении [55], которое учитывает уменьшение населенности автоионизационного состояния при образовании свободных электронов. В этом случае вероятность ионизации P выражается через автоионизационную ширину:

$$P_{AI}(\rho, E) = 1 - \exp(-J(\rho, E)), \quad (1.17)$$

$$J(\rho, E) = 2g \int_{R_m}^{R_0} \frac{W(R)dR}{v_r(R, \rho, E)}. \quad (1.18)$$

Здесь $g=1/2$ - статистический вес автоионизационного состояния, учитывающий вероятность того, что система первоначально начнет движение по отталкивающему терму, коэффициент 2 в выражении (1.18) отвечает двукратному прохождению области $R_m < R < R_0$ за время столкновения (при сближении и разлете атомов), E - энергия сталкивающихся частиц, $v_r(R)$ - радиальная скорость:

$$v_r(R, \rho, E) = \left(\frac{2}{\mu} \left(E - V_i(R) - E \frac{\rho^2}{R^2} \right) \right)^{1/2}. \quad (1.19)$$

Пределы интегрирования в (1.18) определяются следующим образом: условие равенства нулю радиальной скорости относительного движения атомов $v_r(R, \rho, E) = 0$ задает точку наибольшего сближения ядер R_m при заданном прицельном параметре ρ и энергии столкновения E . Верхний предел интегрирования R_0 есть максимальное расстояние, когда ионизация все еще возможна. При вычислении полного сечения ионизации это расстояние определяется условием (1.15), и следует считать $R_0 = R_n$, но при расчете скорости ассоциативной ионизации необходимо учитывать, что при достижении определенных расстояний канал ассоциативной ионизации закрывается, и происходит ионизация пеннинговского типа.

Разделение каналов ассоциативной ионизации и ионизации пеннинговского типа было подробно рассмотрено в работе [55]. Если учесть различие в энергиях конечных состояний квазимолекулярного иона: в резонансном приближении кинетическая энергия сталкивающихся ядер $T(R) = E - V_i(R)$ не меняется в момент ионизации. В то же время полная энергия квазимолекулярного иона после столкновения изменяется, так как часть энергии электронной оболочки квазимолекулярного иона передается ридберговскому электрону: $E_f = T(R) + V_f(R) = E - \Delta(R)$. При этом изменяется потенциал, в котором происходит движение квазимолекулы. Случай $E_f < 0$ (Рис. 1.5) соответствует финитному движению, то есть образованию устойчивого молекулярного иона. Следовательно, при

$$E < |E_n| + \varepsilon \quad (1.20)$$

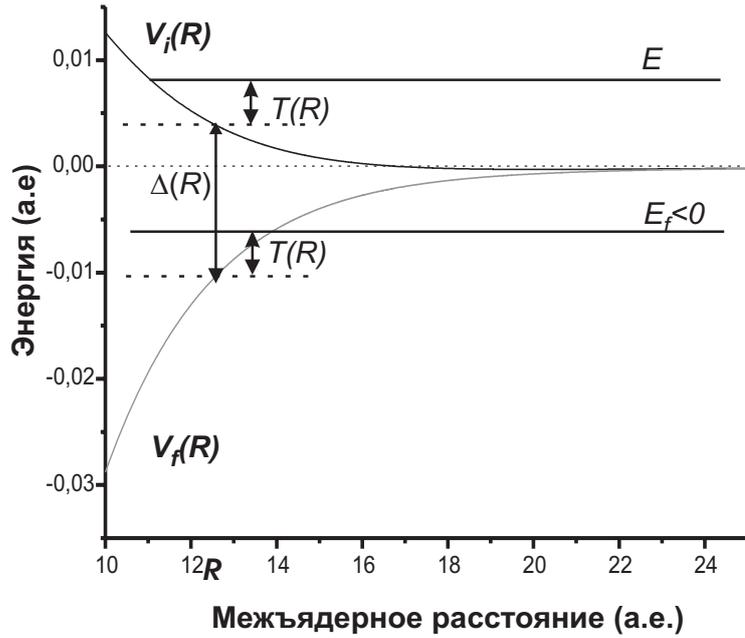


Рис. 1.5. Изменение энергии квазимолекулярного иона при ассоциативной ионизации.

будет происходить ассоциативная ионизация, а при энергиях столкновения

$$E \geq |E_n| + \varepsilon \quad (1.21)$$

будет происходить ионизация пеннинговского типа. Если подставить (1.14) в условие (1.20), то окажется, что ионизация будет ассоциативной на расстояниях $R < R_I$, где разделяющее каналы ионизации расстояние R_I определяется условием:

$$\Delta(R_I) = E. \quad (1.22)$$

Условия (1.22) и (1.15) определяют окончательно верхний предел интегрирования в (1.18) для расчета вероятности ассоциативной ионизации [55]:

$$R_0 = \min(R_n, R_I). \quad (1.23)$$

Как уже было отмечено, для расчета полной скорости столкновительной ионизации следует полагать $R_0 = R_n$.

Сечение столкновительной ионизации в модели DSMJ выражается с учетом (1.16-1.23):

$$\sigma_{AI}(E) = 2\pi \int_0^{\rho_{\max}(E)} P_{AI}(\rho, E) \rho d\rho, \quad (1.24)$$

где $\rho_{\max}(E)$ – максимально возможное значение прицельного параметра, при котором сближение ядер до критического расстояния R_0 еще возможно. Значение

$\rho_{max}(E)$ можно получить, положив радиальную скорость $v_r(R, \rho, E) = 0$ равной нулю в критической точке R_0 :

$$\rho_{max} = R_0 \left(1 - \frac{V_i(R_0)}{E} \right)^{1/2}. \quad (1.25)$$

Усреднение сечения $\sigma(E)$ по относительным скоростям сталкивающихся частиц позволяет вычислить константы скорости столкновительной ионизации в зависимости от температуры T :

$$k(T) = \langle \sigma_{AI} v \rangle = \int_{E_{min}}^{\infty} \sigma_{AI}(E) \left(\frac{2E}{\mu} \right)^{1/2} f(E, T) dE. \quad (1.26)$$

где $f(E, T)$ – распределение по относительным скоростям сталкивающихся частиц при заданной температуре T , μ – приведенная масса, $E = \frac{\mu v^2}{2}$ – энергия столкновения, v – начальная скорость сталкивающихся атомов. Нижний предел интегрирования E_{min} – это энергетический порог реакции. Как было отмечено, ионизация становится возможной только при достижении критического расстояния R_n , что происходит, если выполняется условие:

$$E > V_i(R_n). \quad (1.27)$$

В противном случае в отталкивающем потенциале $V_i(R)$ не произойдет сближения атомов до критического расстояния.

Выражение (1.27) можно получить, положив равными нулю прицельный параметр ρ и радиальную скорость $v_r(R, \rho, E)$ (1.17) в точке R_n .

Для состояний с главным квантовым числом $n > 14$ точка R_n находится в области отрицательных значений потенциала ($V_i(R_n) < 0$), и порог реакции в этом случае отсутствует. Это требует уточнения выражения (1.27), что было сделано в работе [55]:

$$E_{min} = \max(0, V_i(R_n)). \quad (1.28)$$

Разделение каналов ассоциативной ионизации и ионизации пеннинговского типа также потребовало дополнительного уточнения, проведенного в работе [62]. Выражение (1.17) для вероятности ассоциативной ионизации P_{AI} не учитывает уменьшения населенности автоионизационного терма $V_u(R)$ вследствие ионизации пеннинговского типа.

Как было показано выше, траектория столкновения $R_{\rho,E}^{(u)}(t)$, описывающая изменение межъядерного расстояния R в процессе столкновения при заданных величинах прицельного параметра ρ и энергии столкновения E , имеет три характерные критические точки: (i) точка поворота R_m , где радиальная скорость $v_r(R)$ уменьшается до нуля, $v_r(R_m) = 0$ (то есть достичь расстояний $R < R_m$ невозможно), (ii) критическое расстояние R_n , когда ионизация при энергии E_n связи становится возможной при $R \leq R_n$ [см. Уравнение (1.15)], и (iii) расстояние R_0 , при котором открывается канал ассоциативной ионизации для $R < R_0$ [см. уравнения (1.22), (1.23)].

Вероятность ионизации P_{AI} будет описываться следующим уравнением [62]:

$$P_{AI}(\rho, E) = \exp\left(-g\theta(R_n - R_1) \int_{R_1}^{R_n} \frac{W(R)}{v_r(R)} dR\right) \left[1 - \exp\left\{-2g \int_{R_m}^{R_0} \frac{W(R)}{v_r(R)} dR\right\}\right]; \quad (1.29)$$

Первый множитель в уравнении (1.29) описывает уменьшение заселенности первоначального nL состояния в интервале межъядерных расстояний (R_1, R_n) . С этим связано присутствие функции Хевисайда θ в уравнении (1.29), $\theta(x \geq 0) = 1$ и $\theta(x < 0) = 0$. Этот множитель не был учтен в работе [55]. Второй множитель в уравнении (1.29) описывает вероятность испускания электрона в области ассоциативной ионизации при межъядерных расстояниях $R_m < R < R_0$.

Авторы модели DSMJ для получения простых аналитических формул линеаризовали уравнения (1.17) и (1.18). Необходимость учета нелинейности данных уравнений в расчете скоростей столкновительной ионизации ридберговских атомов была показана в работе [55].

1.3. Экспериментальные исследования столкновительной ионизации ридберговских атомов щелочных металлов

Наибольшее внимание в экспериментальных исследованиях хемоионизации ридберговских атомов уделялось атомам щелочных металлов [5]. Для регистрации заряженных продуктов ионизации (усиления слабых ионных токов) первоначально применялся метод компенсации объемного заряда электронов положительными ионами, который и в настоящее время

используется для того, чтобы связать слабый ионизационный сигнал с поглощением света на определенном атомном переходе. Все применяемые модификации этого метода являются различными вариантами электрического диода с парами щелочного металла, работающего в режиме ограничения тока через диод пространственным объемным зарядом у поверхности накаливаемого катода. В межэлектродном пространстве такого диода может образовываться плазма, поэтому следует считаться с возможностью ионизации возбужденных атомов плазменными электронами. Коэффициент усиления такой системы регистрации зависит от целого ряда параметров – сорта положительных ионов, их подвижности и скорости, давления паров и температуры в паронаполненной ячейке. Абсолютная калибровка коэффициента усиления также представляет собой достаточно сложную задачу.

Хотя ассоциативная ионизация называется процессом Горнбека-Молнара, исторически первой работой по измерению сечений АИ была работа Ф.Молера [5], выполненная методом компенсации объемного заряда. Несмотря на невысокую точность полученных данных, эта работа в течение длительного времени была единственным источником данных по сечениям АИ.

В работах Ключарева [5] впервые были измерены константы скорости ассоциативной ионизации ридберговских nP атомов рубидия и цезия в симметричных столкновениях в газовой ячейке при температуре 500 К. Применялась схема оптического возбуждения в выделенном направлении – по лучу света. Для селективного возбуждения ридберговских состояний источником сплошного спектра (ксеноновая лампа сверхвысокого давления ДКсР-3000) использовались монохроматоры (полуширина аппаратных контуров 0,3-0,7 нм). Количество заряженных продуктов реакций измерялось в режиме насыщения по ионному току. Измерялось отношение тока заряженных частиц к спектральной плотности облучения паров рубидия и цезия в зависимости от длины волны излучения. Ионный ток на зонд коллектора ионов измерялся электрометрическим усилителем. Масс-спектроскопический анализ образующихся ионов при этом не проводился. Концентрация атомов в основном состоянии определялась по величине сигнала прямой фотоионизации вблизи порога (с использованием опубликованных в других работах сечений фотоионизации). На основе экспериментальных зависимостей ионного тока от

длины волны, известных времен жизни возбужденных атомов и значений сил осцилляторов линий главной серии, были определены константы скорости ионизации ридберговских атомов. Была обнаружена тенденция быстрого роста констант скорости ионизации с увеличением главного квантового числа при энергиях связи оптического электрона, сравнимых с энергией диссоциации молекулярного иона. При дальнейшем увеличении главного квантового числа (и уменьшении энергии связи ридберговского электрона) константы скорости ионизации начинали уменьшаться.

Наблюдаемая зависимость констант АИ от главного квантового числа качественно может быть объяснена следующим образом: при больших энергиях связи ридберговского электрона реакция АИ имеет энергетический порог, быстро снижающийся с увеличением главного квантового числа. С этим связан быстрый рост констант скорости АИ. При дальнейшем увеличении n_{eff} начинает преобладать n_{eff}^{-3} зависимость вероятности перехода между квазимолекулярными термами, что приводит к уменьшению констант скорости АИ.

Вслед за работами Ключарева и др. по измерению констант АИ nP состояний [5],[65] рубидия и цезия, группой французских физиков были измерены константы скорости АИ $9S$ [66], $6D$, $7D$ и $8S$ [67] состояний рубидия, а позже были измерены константы скорости как ассоциативной, так и пеннинговской ионизации ридберговских nD ($n=5-9$) и nS ($n=7-11$) состояний рубидия [68]. Эксперименты проводились в газовой ячейке при температуре 470 К. Атомы возбуждались в ридберговские состояния непрерывными лазерами на красителе. Концентрация атомов в основном состоянии и в ридберговских состояниях измерялась по сигналу фотоионизации аргоновым и криптоновым лазерами. Ионный ток измерялся с помощью наноамперметра, часть ионов направлялась на квадрупольный масс-спектрометр. В результате каскадного заселения нижних высоковозбужденных уровней после лазерного возбуждения ридберговского nL состояния, устанавливается распределение относительной заселенности $\rho_{nl}(n'L')$ соседних $n'L'$ ридберговских состояний. Вследствие такого перераспределения, ионный ток будет пропорционален эффективной константе скорости ионизации [68]:

$$k_{eff} = \sum k(n'L')\rho_{nl}(n'L'). \quad (1.30)$$

Экспериментально измеренные константы скорости значительно отличались от результатов расчетов в модели DSMJ. Альтернативное теоретическое рассмотрение было проведено авторами в модели единичной вероятности ионизации при достижении границы континуума. Такое рассмотрение позволяет оценить максимально возможную эффективность ионизации для одного пересечения термов. Полученные значения констант оказались больше, чем следовало из расчетов в модели DSMJ, и меньше, чем измеренные экспериментально константы, вследствие чего авторы работы [68] предположили, что используемые в DSMJ предположения о малой вероятности ионизации, допускавшие использовать теорию возмущений, неверны.

Измерения констант скорости хемоионизации nP ($n=4-20$) состояний атомов лития были проведены в одиночном тепловом пучке при селективном оптическом возбуждении ридберговских состояний источником сплошного спектра [5]. Известны результаты по хемоионизации ридберговских nP ($n=6-14$) атомов калия, полученные в условиях газовой ячейки также с использованием селективного возбуждения источником сплошного спектра. Скорости ионизации ридберговских nS , nP и nD ($n=18-60$) атомов цезия были измерены в работе [68] с использованием термоионного диода.

Первые исследования хемоионизации атомов натрия с использованием одиночного теплового пучка были проведены Загребиным и Самсоном [70],[71]. Преимущество пучковой методики заключается в том, что она наилучшим образом приспособлена для регистрации и масс-анализа ионов. В экспериментах ридберговские nP ($n=5-21$) атомы натрия селективно возбуждались источником сплошного спектра (ксеноновой лампой ДКсШ-3000). Регистрация ионов проводилась в режиме счета с использованием вторично-электронного умножителя и счетчика. Система позволяла уверенно регистрировать отдельные ионные импульсы.

Для масс-анализа ионов была применена времяпролетная методика. Особенность системы регистрации состояла в том, что она могла работать в режиме накопления сигнала, что позволяло измерять малые ионные токи. В измеренной зависимости констант скорости АИ от главного квантового числа наблюдался выраженный максимум в районе $n=10-11$.

Измерения констант скорости АИ ридберговских состояний натрия также проводились с использованием импульсного возбуждения лазерами в скрещенных атомных пучках при возбуждении nP ($n=5-15$) состояний [55] и в одиночном пучке при возбуждении nS , nP и смешанного набора nL состояний ($n=17-27$, $L \geq 2$) [56]. Преимущество импульсного возбуждения заключается в том, что оно позволяет эффективно разделить каналы хемоионизации ридберговских атомов и фотоионизации тепловым излучением от ионизации лазерным излучением. Кроме того, импульсное возбуждение позволяет изучать влияние зависимости заселенности ридберговских состояний от времени на измеряемые скорости ионизации.

В работе [55] константы скорости ассоциативной ионизации ридберговских nP состояний ($n=5-15$) натрия были измерены в скрещенных пучках при температуре 600 К. Концентрация атомов в основном состоянии в области взаимодействия составляла $n_{3S} \sim 10^{10} \text{ см}^{-3}$. Для защиты от теплового излучения область взаимодействия была закрыта экраном, охлаждаемым жидким азотом ($T=77 \text{ К}$). Атомарные и молекулярные ионы, образовавшиеся в области взаимодействия, разделялись времяпролетным методом и регистрировались вторичным электронным умножителем. Концентрация атомов в ридберговских состояниях измерялась по сигналу резонансной флуоресценции, а концентрация атомов в основном состоянии измерялась по сигналу двухступенчатой фотоионизации. Данная методика определения концентрации потребовала абсолютных измерений интенсивности излучения и использования расчетных значений сечений фотоионизации.

В работе [56] были измерены константы скорости ионизации nS , nP и набора смешанных nL состояний ($L \geq 2$) натрия в диапазоне $n=17-27$ в атомарном пучке при концентрации $n_{3S} = 1.5 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$ и температуре 1000 К. Ридберговские nS и nP состояния, а также смешанные nL состояния возбуждались импульсными лазерами на красителе по двухступенчатой схеме с использованием штарковского переключения. Электрическое поле напряженностью 50-200 В/см, включенное в момент возбуждающего лазерного импульса, снимает вырождение ридберговских состояний. Спектральная ширина лазера второй ступени (6 ГГц) была достаточной для селективного возбуждения ридберговских nS и nP состояний, но nD состояния заселялись неселективно.

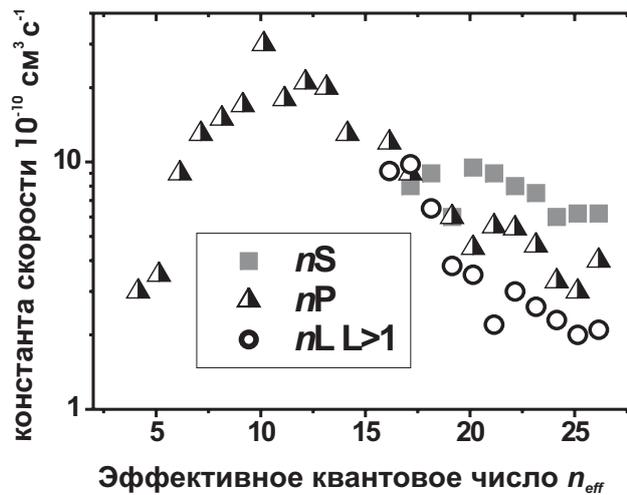


Рис. 1.6. Экспериментально измеренные константы скорости ассоциативной ионизации для nS , nP , nL ($L \geq 2$) состояний [55],[56].

Для нормировки измеряемых сигналов на концентрацию ридберговских атомов использован метод селективной полевой ионизации - прямой и надежный метод измерения числа ридберговских атомов [51]-[53]. Абсолютные величины констант скорости не измерялись, полученные данные были масштабированы для согласования с измеренными ранее константами скорости ионизации nP состояний в скрещенных пучках [55]. Некорректность такого масштабирования позже была отмечена самими авторами в работе [72]. Результаты измерений [55],[56] приведены на Рис. 1.6.

В последние годы представляют особый интерес столкновения с участием холодных атомов, в том числе – их ионизация. Впервые ассоциативная ионизация ультрахолодных атомов Na в возбужденном состоянии $3P$ наблюдалась в работе [73]. При низких энергиях столкновения оказывается неприменимым квазиклассическое рассмотрение задачи. Ионизация холодных ридберговских атомов под действием теплового излучения и в столкновениях с ридберговскими атомами приводит к образованию ультрахолодной плазмы [8],[12].

Дальнейшее развитие теории атомных столкновений, особенно для низких энергий столкновений, требует новых систематических исследований процессов столкновительной ионизации ридберговских состояний щелочных металлов.

Например, до сих пор в диапазоне главных квантовых чисел $n=8-20$ константы скорости столкновительной ионизации натрия были измерены только для nP состояний, и экспериментальные данные разных авторов существенно отличаются. Для nS состояний натрия измерения были сделаны только в диапазоне $n=17-27$, при этом абсолютная величина констант скорости в эксперименте не измерялась [55]. Данные для nD состояний натрия в случае селективного их возбуждения отсутствуют. Следовательно, есть необходимость получения новых экспериментальных данных, в первую очередь для nS и nD состояний атомов натрия.

1.4. Радиационные переходы в ридберговских атомах, индуцированные тепловым излучением

Фоновое тепловое излучение (излучение черного тела) приводит к индуцированию переходов и сдвигам энергии атомных уровней [1]-[3]. Благодаря большим электрическим дипольным моментам переходов между ридберговскими состояниями, ридберговские атомы оказываются очень чувствительными к электромагнитному полю, в том числе и к тепловому излучению. Кроме того, низкие частоты переходов между ридберговскими состояниями попадают в область достаточно высокой спектральной интенсивности излучения черного тела при всех температурах, за исключением самых низких. Взаимодействие с тепловым излучением оказывает заметное влияние на результаты любых экспериментов с ридберговскими атомами, в которых важна заселенность ридберговских состояний, в том числе на измерения времен жизни, исследования спектров переходов между ридберговскими состояниями, столкновений и фотоионизации.

Типичные электрические дипольные переходы из основного состояния атома имеют частоты $\sim 10^{14}$ Гц, а переходы между ридберговскими состояниями $\sim 10^{11}$ Гц. Тепловое излучение действует на атом в основном состоянии как медленно меняющееся, почти постоянное поле, а ридберговский атом воспринимает его как быстро меняющееся поле [1].

Под действием излучения черного тела в ридберговских атомах возникают переходы, связанные с его поглощением и вынужденным излучением. Быстрое

перераспределение населенности под действием излучения черного тела должно учитываться в экспериментах с ридберговскими состояниями. Поскольку вероятности спонтанных переходов на близлежащие состояния очень малы, они не приводят к перераспределению населенности. В результате столкновений также только малая часть (<1%) населенности первоначально возбужденного состояния передается на другие близлежащие состояния. В то же время, излучение черного тела при температуре 300 К приводит к быстрому перераспределению населенности, что ограничивает селективность возбуждения ридберговских состояний в экспериментах. Этот эффект может быть устранен установкой вокруг области возбуждения ридберговских атомов охлаждаемых экранов, но для уменьшения более чем на порядок вероятности переходов, вызванных излучением черного тела, требуется охлаждение экранов жидким гелием.

Для вычисления вероятностей переходов под действием теплового излучения удобно перейти к числам фотонов на моду поля излучения, то есть к числам заполнения фотонов каждой моды с частотой ω [1]:

$$\bar{n}_\omega = \frac{1}{\exp(\omega/T) - 1}. \quad (1.31)$$

Здесь T -температура излучения в атомных единицах. Для атомов в основном и низколежащих состояниях с большими частотами переходов между ними при температуре 300 К $\bar{n} \ll 1$, и вероятность индуцированных тепловым излучением переходов мала. Для ридберговских состояний с волновыми числами переходов 10^4 см^{-1} мы имеем $\bar{n} \sim 10$, поэтому вероятность индуцированных тепловым излучением переходов может быть на порядок больше, чем при спонтанном испускании.

Вероятность спонтанного излучения при переходе атома с уровня nL на уровень $n'L'$ определяется коэффициентом Эйнштейна:

$$A(nL \rightarrow n'L') = -2\alpha^3 \omega_{nn'}^2 f(nL \rightarrow n'L'), \quad (1.32)$$

где $\alpha=1/137$ – постоянная тонкой структуры, $\omega_{nn'}$ – частота перехода между состояниями n и n' , а $f(nL \rightarrow n'L')$ – сила осциллятора:

$$f(nL \rightarrow n'L') = \frac{2}{3} \omega_{nn'} |R(nL \rightarrow n'L')|^2 \frac{L_{\max}}{2L+1}, \quad (1.33)$$

где $L_{\max} = \max(L, L')$, $R(nL \rightarrow n'L')$ - радиальный матричный элемент электрического дипольного момента. Полная скорость спонтанного распада определяется как сумма вероятностей переходов на все нижележащие состояния $n' < n$:

$$\Gamma_{nr} = \sum_{L'=L\pm 1} \sum_{n'}^n R(nL \rightarrow n'L'). \quad (1.34)$$

Вероятности индуцированных излучением черного тела переходов также выражаются через силы осцилляторов и числа заполнения фотонов на частоте $\omega_{nn'}$:

$$W(nL \rightarrow n'L') = 2\alpha^3 \omega_{nn'}^2 |f(nL \rightarrow n'L')|^2 \bar{n}_\omega. \quad (1.35)$$

Тепловое излучение заселяет как нижележащие, так и вышележащие уровни. Полная скорость индуцированных тепловым излучением переходов определяется суммой скоростей переходов по всем состояниям $n'L'$:

$$\Gamma_{BBR} = \sum_{L'=L\pm 1} \sum_{n'} W(nL \rightarrow n'L'). \quad (1.36)$$

Под действием теплового излучения заселяются преимущественно ближайшие к данному состоянию с $n' = n \pm 1$, которые и дают основной вклад в полную скорость индуцированных тепловым излучением переходов, а в результате спонтанного распада – самые низколежащие состояния. Таким образом, вклад теплового излучения в полную скорость распада возбужденных состояний оказывается существенным.

Эффективное время жизни обратно пропорционально полной скорости распада возбужденного состояния в результате спонтанных переходов и переходов, индуцированных тепловым излучением:

$$\frac{1}{\tau_{eff}} = \Gamma_{eff} = \Gamma_{nr} + \Gamma_{BBR}. \quad (1.37)$$

Первым экспериментальным наблюдением взаимодействия ридберговских атомов с полем теплового излучения была работа Галлагера [23]. В этой работе было измерено время жизни ридберговских 17P и 18P состояний натрия.

В обзорной работе [1] измерение времени жизни ридберговских атомов, взаимодействующих с тепловым излучением, было подробно рассмотрено на примере 18S состояния натрия. Согласно расчетам, радиационное время жизни 18S состояния натрия равно 6,37 мкс, в результате действия излучения черного

тела при температуре 300 К оно уменьшается до 4,87 мкс. Время жизни 18S состояния, полученное измерением зависимости интенсивности флуоресценции на переходе 18S-3P от времени, оказалось в точности равным 4,87 мкс, что соответствует теории. Время жизни 18S состояния также может быть измерено методом селективной полевой ионизации. Если атомы в состоянии 18S возникли в момент $t=0$, то населенность этого состояния в любой более поздний момент времени может быть определена с помощью ионизации электрическим полем, достаточным для ионизации атомов из 18S состояния. Измеренное таким способом время жизни оказалось равным 7,8 мкс, что превышает даже радиационное время жизни.

Это было объяснено следующим образом: если напряженности поля достаточно для ионизации 18S состояния, то электрическое поле будет ионизовать также все долгоживущие вышележащие nP состояния, которые заселяются под действием излучения черного тела. В данном эксперименте порог ионизации 17P состояния, лежащего ниже 18S состояния, близок к порогу ионизации состояния 18S. Поле выбиралось таким, чтобы ионизовать как 18S, так и 17P состояния, чтобы исключить возможную неоднозначность результатов. Когда поле было уменьшено так, что происходила ионизация только состояний 18P и выше, то оказалось, что в более поздние времена именно nP состояния дают основной вклад в наблюдаемый сигнал. Когда этот вклад был учтен, вместе с рассчитанным вкладом от 17P состояния, было получено хорошее согласие с расчетным временем жизни 4,87 мкс.

Арош [74] наблюдал, что тушение 25S состояния натрия сопровождается заселением ближайших состояний, в частности, 25P состояния, которое лежит выше и не может быть заселено в результате спонтанного распада. Единственной причиной его заселения может быть взаимодействие ридберговского атома с тепловым излучением, которое заселяет как нижележащие, так и вышележащие уровни. Впоследствии, в широко известной работе [75] были вычислены эффективные времена жизни ридберговских nS , nP , nD и nF состояний щелочных металлов с $n < 20$ в поле теплового излучения с температурами 0, 350, 410 и 600 К. Для расчетов применен метод модельного потенциала, обладающий высокой точностью.

Перераспределение заселенностей ридберговских состояний атомов ксенона под действием теплового излучения было измерено методом селективной полевой ионизации в работе [75]. Численные расчеты полных скоростей опустошения ридберговских nS , nP , nD ($n < 30$) состояний атомов щелочных металлов тепловым излучением были опубликованы в работе [77]. Радиальные матричные элементы электрических дипольных переходов для состояний с $n < 15$ вычислялись методом Бейтса-Дамгаард, а для более высоких значений n расчеты были сделаны в кулоновском приближении с использованием алгоритма Нумерова [78]. Заселенность соседних ридберговских состояний была рассчитана в одноступенчатой модели, которая учитывает только переходы из возбужденного состояния в близлежащие состояния. Предположим, что первоначально возбуждено nS состояние. Зависимость числа ридберговских атомов в этом состоянии от времени будет выражаться через эффективное время жизни при данной температуре:

$$N_{nS}(t) = N_{nS}(0) \exp(-t/\tau_{eff}^{nS}). \quad (1.38)$$

где $N_{nS}(0)$ – число ридберговских атомов в nS состоянии в момент $t=0$. Число атомов в соседних $n'P$ состояниях определяется двумя конкурирующими процессами: спонтанными переходами из nS состояний со скоростью $A(nS \rightarrow n'P)$ и индуцированными тепловым излучением переходами со скоростью $W(nS \rightarrow n'P)$ (в сумме $\sim 10^4$ с $^{-1}$) и распадом $n'P$ состояний со скоростью $\Gamma_{eff}^{n'P}$ ($\sim 10^5$ с $^{-1}$):

$$\frac{dN_{n'P}(t)}{dt} = W(nS \rightarrow n'P)N_{nS}(t) - \Gamma_{eff}^{n'P} N_{n'P}(t). \quad (1.39)$$

Решение уравнения (1.39) с учетом (1.38) и начальным условием $N_{n'P}(0) = 0$ (первоначально $n'P$ состояния не заселены) дает:

$$N_{n'P}(t) = \frac{[W(nS \rightarrow n'P) + A(nS \rightarrow n'P)]N_{nS}(0)}{\Gamma_{eff}^{n'P} - \Gamma_{eff}^{nS}} (\exp(-\Gamma_{eff}^{nS}t) - \exp(-\Gamma_{eff}^{n'P}t)). \quad (1.40)$$

Границы применимости одноступенчатой модели, а также многоступенчатое заселение ридберговских атомов тепловым излучением были исследованы экспериментально и теоретически в работе [79]. Эксперименты проводились в атомном пучке натрия, возбуждаемом в ридберговские состояния двумя импульсными лазерами на красителях с накачкой азотным лазером.

Концентрация атомов в основном состоянии в области взаимодействия варьировалась в диапазоне от $8 \times 10^9 \text{ см}^{-3}$ до $2 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$.

Через заданное время t_d ридберговские состояния детектировались методом селективной полевой ионизации электрическим импульсом с амплитудой, достигавшей 1 кВ, достаточной для ионизации всех ридберговских состояний с $n \geq 24$. Детектирование происходило в режиме временного разрешения, длительность ионизирующего импульса 4 мкс. С увеличением задержки t_d перед регистрацией ридберговских состояний от 0 до 40 мкс наблюдалось появление дополнительных пиков в сигнале селективной полевой ионизации, что связано с заселением близлежащих ридберговских состояний тепловым излучением.

Заселенность ридберговских N_i состояний с учетом многоступенчатых переходов получается решением системы дифференциальных уравнений [79]:

$$\frac{dN_i}{dt} = -N_i \sum_j \Gamma_j^i + \sum_k N_k \Gamma_i^k . \quad (1.41)$$

Первый член в правой части уравнения (1.41) соответствует распаду состояния i в состояния j , второй член – заселению состояния i при распаде из состояний k . В работе [79] система из 32 уравнений (1.41) была решена для $(n+1)S$, nP , nD и nF состояний с $n=25-32$. Таким образом, в модели учитывались трехступенчатые переходы. Для учета следующих ступеней необходимо рассматривать состояния с большими орбитальными моментами, но поскольку уже заселенность nF состояний была достаточно мала, вкладом от состояний с большими значениями L можно пренебречь.

Расчеты радиальных матричных элементов были проведены методом Ван Регермортера [80], который отличается высокой скоростью вычислений и согласуется с расчетами в кулоновском приближении методом Нумерова с точностью 1%. Вычислялась заселенность ридберговских состояний, дающих вклад в наблюдаемые пики в сигнале селективной полевой ионизации.

Результаты расчетов в рамках многоступенчатой модели показали, что при временах сравнимых, или превышающих время жизни первоначально возбужденного состояния, многоступенчатые процессы начинают играть заметную роль в перераспределении населенности ридберговских состояний, которая уже не может быть описана в рамках одноступенчатой модели. Сравнение эксперимента и теории показало, что соотношения амплитуд

измеряемых пиков в сигнале селективной полевой ионизации также лучше описываются многоступенчатой моделью.

В дальнейшем, также были исследованы индуцированные тепловым излучением переходы во внешнем электрическом поле [81].

В приведенном выше рассмотрении индуцированных тепловым излучением переходов между ридберговскими состояниями использовано дипольное приближение и теория возмущений. Область применимости данного подхода анализировалась в работе [77]. При комнатной температуре $T=300\text{K}$, энергия тепловых фотонов становится сравнимой с энергией кулоновского взаимодействия ридберговского электрона и атомного остова при $n\sim 120$, что приведет к нарушению условий применимости теории возмущений. Дипольное приближение становится неприменимым, когда длина волны теплового излучения сравнима с радиусом орбиты ридберговского электрона ($n\sim 200$ при комнатной температуре).

Одним интересным примером практического применения ридберговских атомов является детектор инфракрасного диапазона, идея которого была предложена в 1976 г. [1]. Наиболее простой прибор такого типа можно создать, если приготовить мишень, атомы которой находятся в одном ридберговском состоянии А, заселенном при помощи лазера. Мишень подвергается облучению, которое регистрируется на частоте ω_{AB} инфракрасного диапазона, равной частоте перехода из начального состояния А в более высокое состояние В. Под действием инфракрасного излучения с частотой ω_{AB} атом перейдет в состояние В, что может быть обнаружено с помощью селективной полевой ионизации. В результате поглощения каждого фотона инфракрасного излучения возникают один ион и электрон, которые могут быть зарегистрированы с помощью канальных умножителей частиц, обладающих чувствительностью к отдельным электронам.

Другой подход состоит в регистрации оптического излучения, образующегося при распаде состояния В, когда при поглощении фотона с частотой ω_{AB} возникает оптический фотон, который можно зарегистрировать с помощью ФЭУ [1]. Поскольку частоты ридберговских состояний нетрудно перестроить с помощью умеренных электрических полей, детектор инфракрасного излучения на ридберговских атомах сочетает в себе свойства

фильтра и детектора, может иметь ряд привлекательных параметров, таких, как высокая чувствительность, высокое спектральное разрешение и широкая входная апертура. Единственный его недостаток – это медленная реакция, постоянная времени составляет около 1 мкс.

Принцип действия такого прибора впервые был реализован в радиоспектроскопических резонансных экспериментах на ридберговских состояниях гелия, возбужденных электронным пучком [1]. В современных работах по детектированию излучения черного тела [82] исследуется перераспределение заселенности вращательных уровней ионов HD^+ , захваченных в ловушку, под действием теплового излучения.

1.5. Фотоионизация ридберговских атомов тепловым излучением

Взаимодействие ридберговских атомов с тепловым излучением приводит не только к переходам в дискретном спектре, но и к ионизации атома:



Здесь $\hbar\omega_{BBR}$ - энергия поглощенного теплового фотона, A^+ - атомарный ион и e^- - свободный электрон, эмитированный в результате ионизации. Хотя взаимодействие ридберговских атомов с тепловым излучением исследовалось достаточно широко, лишь небольшое число работ было посвящено непосредственно фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением. Фотоионизация ридберговских атомов тепловым излучением исследовалась экспериментально [24],[83] и теоретически [24],[84]. В последнее время интерес к индуцированной тепловым излучением фотоионизации связан с работами по исследованию ультрахолодной плазмы, спонтанно образующейся вследствие ионизации облака холодных ридберговских атомов тепловым излучением [9],[12]. В наших работах [61]-[64] сигнал тепловой ионизации использовался в качестве опорного при измерении констант скорости ассоциативной ионизации (см. далее).

В работе [24] была экспериментально измерена и теоретически рассчитана зависимость скорости фотоионизации ридберговских $17D$ атомов натрия от температуры равновесного теплового излучения. В этой работе также была

приведена простая формула для зависимости скорости фотоионизации от температуры и энергии ридберговского электрона:

$$W_{BBR} \sim E_n^2 \left[\exp\left(\frac{E_n}{kT}\right) - 1 \right]^{-1}. \quad (1.43)$$

В работе [83] исследовались процессы ионизации ридберговских атомов натрия в газовой ячейке при температуре 500 К. Атомы возбуждались в ридберговские nS и nD состояния с $18 \leq n \leq 35$ импульсными лазерами на красителе с накачкой Nd:YAG лазерами. Были измерены зависимости ионизационных сигналов от главного квантового числа. Показано, что при концентрациях атомов в основном состоянии $n_{3S} \sim 10^{11} \text{ см}^{-3}$ фотоионизация ридберговских атомов тепловым излучением является основным источником атомарных ионов, и на ее фоне пеннинговской ионизацией в столкновениях можно пренебречь. Была измерена скорость тепловой фотоионизации водородоподобного набора ридберговских состояний с $n=18$, наблюдалось хорошее согласие с расчетным значением, вычисленным с использованием формулы (1.43).

В работе [85] исследовались процессы столкновительного перемешивания ридберговских состояний бария. Сигнал фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением применялся для измерения относительных заселенностей ридберговских состояний при высоких концентрациях паров бария ($n_{3S} = 10^{12} \text{ см}^{-3}$), когда метод селективной полевой ионизации было использовать уже невозможно из-за электрического пробоя в газе. Для расчета скорости тепловой ионизации также применялась формула (1.43).

Эта приближенная формула использовалась для оценки скоростей ионизации и в современных работах, посвященных исследованию ультрахолодной плазмы рубидия [9],[12]. В то же время, до сих пор аккуратные теоретические расчеты скорости тепловой фотоионизации ридберговских атомов в широком диапазоне главных квантовых чисел $n=10-40$ при температурах 77-625 К были опубликованы только для водорода и натрия в работе Лемана [84]. Расчеты были выполнены методом модельного потенциала.

Теоретическому и экспериментальному исследованию взаимодействия ридберговских атомов водорода и щелочных металлов с инфракрасным излучением лазера на свободных электронах была посвящена серия работ [86]-[89]. Обнаружен минимум в зависимости вероятности перехода между

дискретными ридберговскими nS состояниями лития от частоты резонансного излучения, аналогичный куперовскому минимуму в сечении фотоионизации [90]. Радиальные матричные элементы переходов между связанными и свободными ридберговскими состояниями были рассчитаны численно, и проведено сравнение с простыми полуклассическими формулами [91].

Систематических экспериментальных исследований зависимости скорости тепловой фотоионизации ридберговских атомов от главного квантового числа, по имеющимся у нас данным, не проводилось. Это стало мотивом для экспериментального измерения и теоретического расчета скорости тепловой фотоионизации ридберговских атомов натрия. Вслед за нашей работой [61], были опубликованы дальнейшие теоретические исследования тепловой фотоионизации [92]. Методом модельного потенциала были вычислены скорости фотоионизации nS , nP и nD атомов гелия и получена аналогичная (1.43), но более точная формула, являющаяся аппроксимацией результатов численного расчета:

$$W_{BBR} = (a_1x^2 + a_2x^3 + a_3x^4) \frac{1}{\exp(x) - 1}, \quad x = \frac{E_n}{kT}. \quad (1.44)$$

где a_1, a_2, a_3 - коэффициенты, зависящие от температуры:

$$a_i = \sum_{k=0}^3 b_{ik} \left(\frac{T}{100} \right)^k. \quad (1.45)$$

Здесь b_{ik} –коэффициенты, отдельно вычисляемые для синглетных и триплетных S, P и D состояний гелия и не зависящие от главного квантового числа n . Авторы работы [92] также провели численные расчеты времен жизни ридберговских атомов гелия и щелочных металлов [93].

При рассмотрении фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением важно учитывать, что заселенности ридберговских атомов перераспределяются тепловым излучением (как было указано в предыдущей главе). Существует необходимость в более детальном исследовании процесса ионизации, учитывая реальные условия эксперимента (главное квантовое число n , температуру окружающей среды, отношение времени измерения к времени жизни возбужденного ридберговского состояния, амплитуду электрических импульсов, применяемых для вытягивания ионов из области взаимодействия). В связи с ведущимися в настоящее время исследованиями

ультрахолодной плазмы, представляет интерес определение скорости тепловой фотоионизации атомов с более высокими квантовыми числами $n \sim 50$.

Хотя указанные выше факторы, влияющие на результаты измерений скорости тепловой фотоионизации, были отмечены в работе Спенсера [24], они не исследовались ни экспериментально, ни теоретически. В частности, в работе Спенсера влияние перераспределения заселенности ридберговских состояний на измеренную скорость ионизации $17D$ состояния не наблюдалось из-за короткого времени измерения (500 нс) по сравнению с временем жизни ридберговского $17D$ состояния (4 мкс при температуре 300 К), а также малых амплитуд электрического поля (8 В/см), применяемого для вытягивания ионов. Тем не менее, наши вычисления показывают, что для низколежащих ридберговских состояний с $n \sim 8$ и временами жизни ~ 500 нс трудно устранить влияние перемешивания, и оно должно учитываться в расчетах.

Глава 2. Теоретическая модель ионизации ридберговских атомов в столкновениях и под действием теплового излучения

В этой главе рассматривается стохастическая модель столкновительной ионизации ридберговских атомов и фотоионизация ридберговских атомов тепловым излучением. В соответствии с моделью DSMJ, столкновительная ионизация - это переход ридберговского электрона в непрерывный спектр под действием дипольного излучения, возникающего в результате обменного взаимодействия в квазимолекулярном ионе, образованном сталкивающимися атомами. Во внимание принимается изученное в работах Безуглова и др. [20]-[22],[62] перераспределение заселенности ридберговских состояний, предшествующее ионизации. Это перераспределение связано с неадиабатическими процессами в перекрывающихся пересечениях ридберговских уровней квазимолекулы, и моделируется как диффузия ридберговского электрона по энергетическому спектру с использованием уравнений типа Фоккера-Планка. Также учитывается вклад процессов L -перемешивания ридберговских состояний при больших межъядерных расстояниях и закручивание траекторий сталкивающихся атомов в притягивающем поляризованном потенциале. Показано, что выбор распределения по скоростям сталкивающихся атомов имеет первостепенное значение при анализе условий эксперимента. Данные результаты, полученные при участии автора диссертации, опубликованы в работе [62].

Особое внимание уделено перераспределению заселенности ридберговских состояний под действием теплового излучения. Показано, что тепловое излучение оказывает существенное влияние на измеряемые константы скорости ионизации в столкновениях. Данные результаты получены при определяющем личном участии автора диссертации и опубликованы в работах [61]-[64].

Систематически исследована фотоионизация ридберговских nS , nP и nD атомов щелочных металлов тепловым излучением, получены простые аналитические формулы для оценки скорости фотоионизации с учетом квантового дефекта, которые хорошо согласуются с результатами численного расчета, проведенного автором диссертации с использованием

квазиклассической модели Дьячкова и Панкратова [28],[29]. Результаты расчетов и сравнение с полученными нами экспериментальными данными для натрия опубликованы в работах [61]-[64],[95]-[97].

2.1. Влияние распределения по скоростям в газовой ячейке, эффузионном пучке и скрещенных пучках на скорость столкновительной ионизации

В работе Безуглова и др. [25] показано, что использование аналитических формул модели DSMJ возможно только для таких условий эксперимента, в которых имеет место классическое распределение Максвелла по скоростям сталкивающихся частиц. Такое распределение адекватно описывает скорости относительного движения только в газовой ячейке:

$$F_{Maxwell}(v) = \frac{2\mu v}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{1}{T}\right)^{3/2} \sqrt{\frac{\mu v^2}{2}} \text{Exp}\left[-\frac{\mu v^2}{2T}\right]. \quad (2.1)$$

На Рис. 2.1. видно, что распределения по скоростям сталкивающихся частиц в атомарном пучке и скрещенных пучках существенно отличаются от максвелловского распределения [25]. Распределение по скоростям в одиночном пучке выражается формулой:

$$F_{beam}(v) = \frac{2.96}{\sqrt{2\pi\mu T}} \frac{\mu}{\sqrt{1 + \frac{9\pi\mu v^2}{128T}}} \text{Exp}\left(-\frac{\mu v^2}{T}\right). \quad (2.2)$$

Распределение по скоростям в перпендикулярно скрещенных пучках [25] выглядит следующим образом:

$$F_{cb}(v) = \frac{\mu^3 v^5}{T^3} \text{Exp}\left(-\frac{\mu v^2}{T}\right). \quad (2.3)$$

При расчете констант скорости ионизации необходимо учитывать применимость распределений по скоростям (2.1)-(2.3) в конкретных условиях эксперимента.

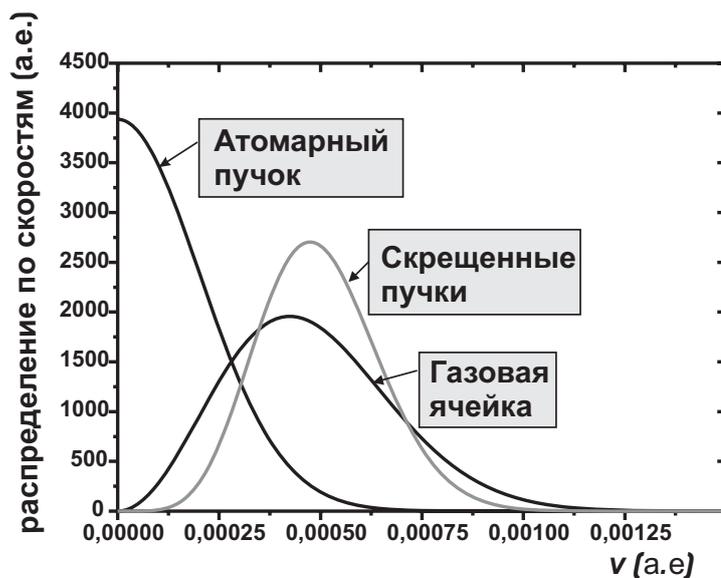


Рис. 2.1. Распределение по скоростям столкновений атомов в атомарном пучке, скрещенных пучках и газовой ячейке.

2.2. Эффект закручивания траекторий сталкивающихся атомов

В работе [55] расчет констант скорости в атомном пучке проводился в модели DSMJ с учетом нелинейности уравнений, но с использованием максвелловского распределения по скоростям столкновений (2.1), неприменимого для одиночного атомного пучка. Позже, в работе [72] была сделана попытка учесть распределение по скоростям в атомном пучке (2.2) для тех же самых экспериментальных условий, но в упрощенной форме, не учитывающей нелинейность. Сделанные авторами расчеты представляются не вполне корректными также по следующим причинам: при малых относительных скоростях v распределение по скоростям в атомарном пучке $F_b(v) \sim \text{const}$.

Сечение ионизации при малых скоростях $\sigma(v) \sim \pi \rho_{\text{max}}^2 \sim \frac{1}{v^2}$. Тогда

подынтегральное выражение в (1.24) будет пропорционально $\frac{1}{v}$. Следовательно, интеграл в (1.24) логарифмически расходится при расчете констант скорости ионизации в атомарном пучке для всех состояний с $n > 14$, то есть таких состояний, для которых энергетический порог реакции отсутствует.

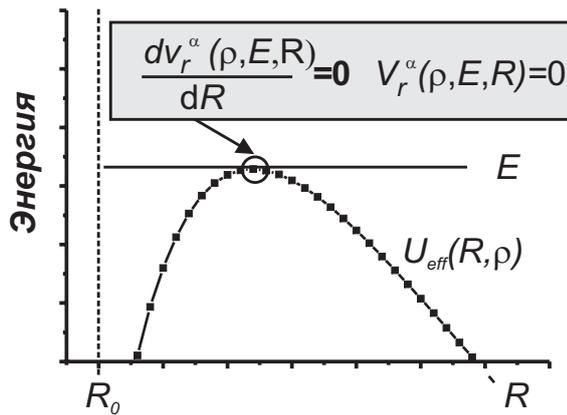


Рис. 2.2. Эффект закручивания сталкивающихся атомов в притягивающем потенциале.

Физическая природа такой расходимости заключается в том, что в модели DSMJ не учитывается закручивание траекторий сталкивающихся частиц, которое возникает при движении в потенциалах с дальнедействующим притяжением. Влияние закручивания на скорость столкновительных процессов было исследовано Девдариани в работе [26]. Закручивание в поляризованном потенциале $U(R) = -\frac{\alpha}{2R^4}$ приводит к образованию потенциального барьера в эффективном центробежном потенциале, что препятствует сближению сталкивающихся частиц до критических расстояний R_0 .

Учесть закручивание в модели DSMJ удастся следующим образом: выражение для радиальной скорости движения в поляризованном потенциале аналогично (1.19):

$$v_r^\alpha(R, E, \rho) = \left(\frac{2}{\mu} \left(E \left(1 - \frac{\rho^2}{R^2} \right) + \frac{\alpha}{2R^4} \right) \right). \quad (2.4)$$

Условия

$$\begin{cases} v_r^\alpha(R, E, \rho) = 0 \\ \frac{\partial v_r^\alpha(R, E, \rho)}{\partial R} = 0 \end{cases}. \quad (2.5)$$

определяют предельную ситуацию, когда центробежный энергетический порог при данной энергии и прицельном параметре все еще может быть преодолен (Рис. 2.2). При больших значениях прицельного параметра ρ порог будет выше, и в этом случае критическая точка R_n достигнута не будет. Это позволяет

определить критическое значение прицельного параметра ρ_{twist} , исключая R из (2.5).

$$\rho_{twist} = \left(\frac{2\alpha}{E} \right)^{1/4}. \quad (2.6)$$

Тогда максимальное значение прицельного параметра в (1.24) следует переопределить:

$$\rho_{max} = \min \left[\left(\frac{2\alpha}{E} \right)^{1/4}, R_0 \left(1 - \frac{V_i(R_0)}{E} \right)^{1/2} \right]. \quad (2.7)$$

В этом случае расходимость интеграла (1.24) исчезает.

Влияние закручивания траекторий на измеряемые константы скорости ионизации менее выражено для столкновений в газовой ячейке и скрещенных пучках с большими значениями наиболее вероятных скоростей столкновений и наиболее существенно при рассмотрении столкновений в одиночном атомном пучке, где наиболее вероятная скорость столкновения равна нулю (Рис. 2.1).

2.3. Перемешивание состояний с различными орбитальными моментами

Столкновения ридберговского электрона с атомом в основном состоянии приводят не только к ионизации, но и к перемешиванию состояний с различными орбитальными моментами, то есть к реакции вида:



Для nL состояний щелочных металлов с $L \geq 2$, сечения L -перемешивания $\sigma_{mix}(E)$ [101],[102] близки к геометрическому сечению ридберговского атома [103]:

$$\sigma_{geom} = \pi \langle r^2 \rangle = \frac{1}{2l+1} \sum_{m=-l}^l \frac{|m|}{\sqrt{l(l+1)}} = \pi \frac{n^2}{2} [5n^2 + 1 - 3l(l+1)] \frac{\sqrt{l(l+1)}}{2l+1}. \quad (2.9)$$

Суммирование происходит по $2L+1$ возможным ориентациям орбиты ридберговского электрона. Предположим, что сечение L -перемешивания выражается через геометрическое сечение отношением $\sigma_{mix}(E) = \Lambda \sigma_{geom}$, где параметр перемешивания $\Lambda \approx 1$ для $L \geq 2$. Прежде чем сталкивающиеся атомы достигнут критического расстояния R_n , при котором становится возможной ионизация, первоначально возбужденное состояние, например nD , превратится в

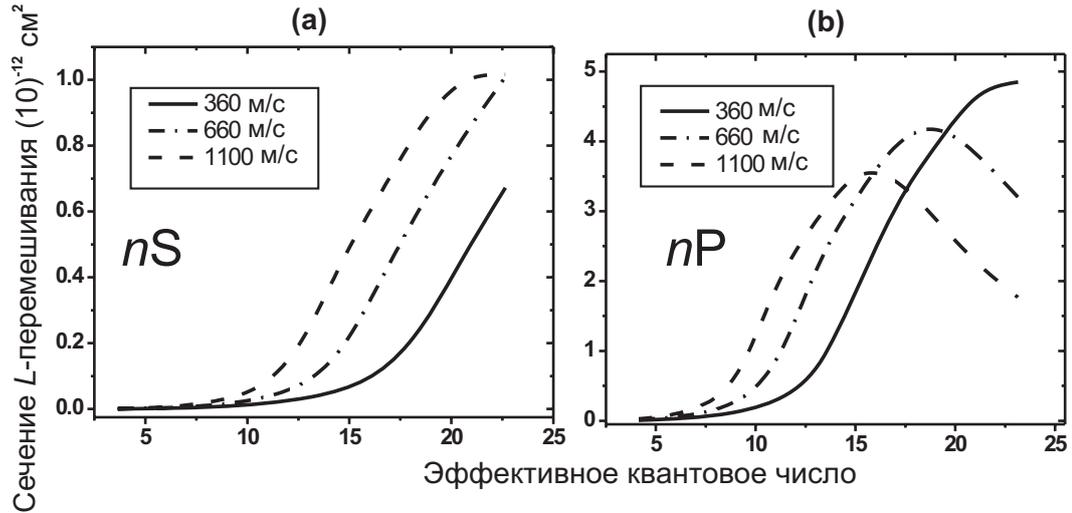


Рис. 2.3. Сечение L -перемешивания (а) nS и (б) nP состояний Na для средних скоростей столкновения 360 м/с, 660 м/с и 1100 м/с.

водородоподобный набор n -состояний с орбитальными моментами $0 \leq \tilde{L} < n$ [27]. При полном перемешивании ($\Lambda \approx 1$) сечение фотоионизации, входящее в выражения для автоионизационной ширины (1.16), будет приблизительно описываться формулой Крамерса [103]:

$$\sigma_{ph} = \frac{8\pi}{3\sqrt{3}c} \frac{1}{n_{eff}^5 \omega^3}. \quad (2.10)$$

Для nS состояний с $L = 0$, параметр перемешивания $\Lambda \ll 1$, что делает перемешивание неэффективным, и в расчете автоионизационной ширины следует использовать сечение фотоионизации nS состояния, которое существенно отличается от формулы Крамерса (2.10) (см. [104],[105]).

На Рис. 2.3 показаны результаты расчетов сечения L -перемешивания $\sigma_{mix}(E)$ для nS и nP состояний Na, опубликованные в работе [62]. Сравнение с геометрическим сечением (2.9) показывает, что для Na(nS) состояний параметр перемешивания $\Lambda < 0.06$. Для nP состояний перемешивание более существенно, например, для Na^{**}(12P) состояния $\Lambda = 0.9, 0.6,$ и 0.2 для скоростей сталкивающихся атомов 1100 м/с, 660 м/с и 360 м/с, соответственно. Такая сильная зависимость от скорости столкновений связана с энергетическим интервалом между nP состоянием и другими состояниями водородоподобного n -набора, участвующими в процессе L -перемешивания. В наших условиях эксперимента (атомарный пучок при температуре $T=600$ К, средняя скорость

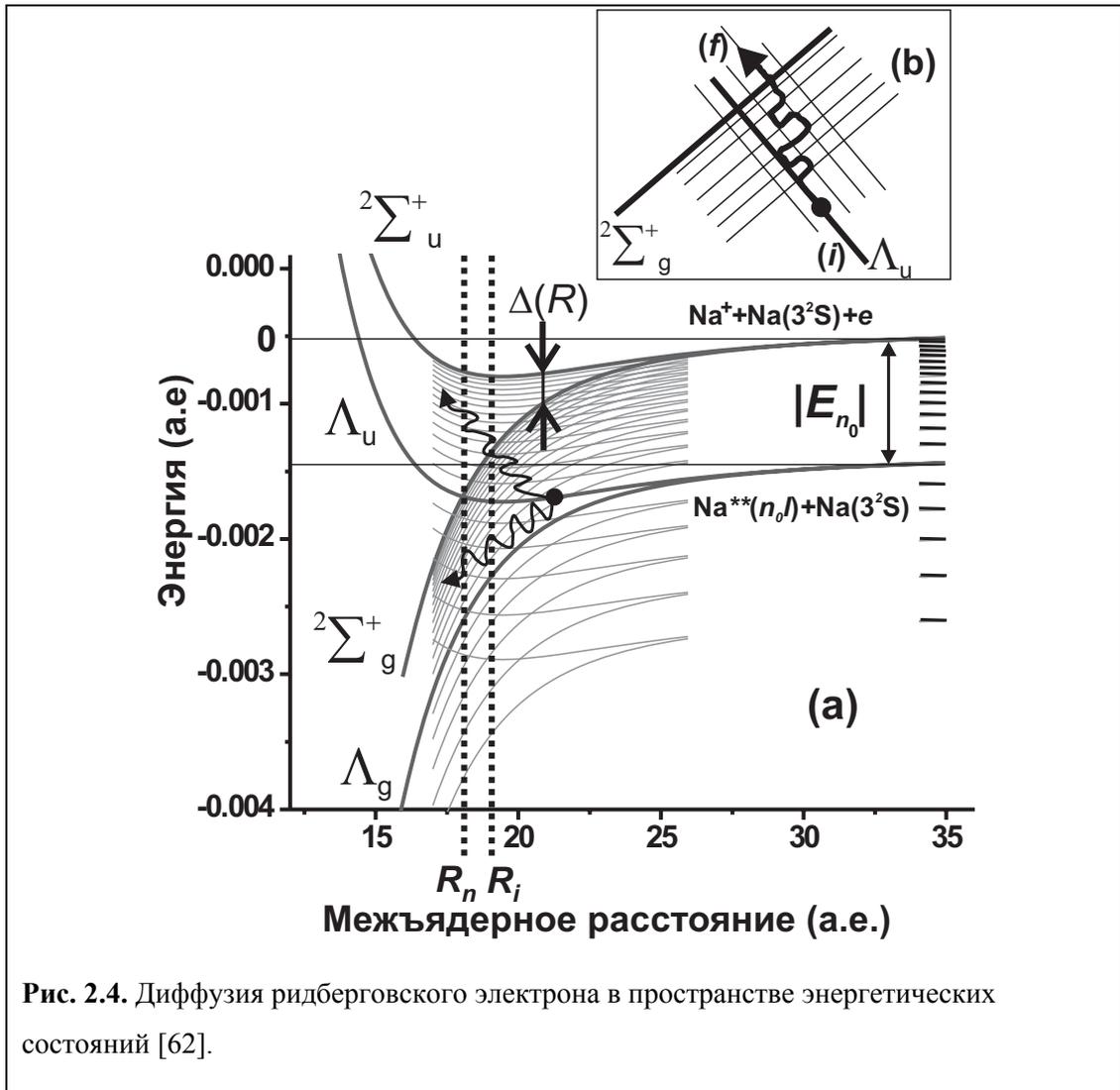
столкновений 350 м/с) происходит полное перемешивание для nD состояний, а перемешиванием для nS состояний можно пренебречь.

2.4. Стохастическая диффузия ридберговского электрона по энергетическому спектру

С квантовомеханической точки зрения, динамика $A^{**}(nL) + A$ столкновений определяется переходами между различными состояниями квазимолекулы $[A^{**} + A]$, индуцированными относительным движением ядер. Эти процессы имеют место при межъядерных расстояниях R , существенно меньших, чем радиус орбиты ридберговского электрона, так что электрон взаимодействует с обоими ядрами. Это позволяет обозначить состояния квазимолекулы как $|\lambda, n_{eff}, L\rangle$, где симметрия $\lambda = g, u$ отличает притягивающий $V_g^+(R)$ и отталкивающий $V_u^+(R)$ потенциалы, а квантовые числа n_{eff} и L характеризуют состояние ридберговского электрона.

На Рис. 2.4(а) изображена система уровней квазимолекулы $[Na^{**} + Na]$. Отталкивающий $V_u^+(R)$ и притягивающий $V_g^+(R)$ потенциалы термов $^2\Sigma_u^+$ и $^2\Sigma_g^+$ вычислены с использованием учитывающего поляризацию остова метода, описанного в работе [25]. Уровни энергии квазимолекулы $V_u(R) = V_u^+(R) - |E_n|$ и $V_g(R) = V_g^+(R) - |E_n|$ получаются сдвигом уровней энергии квазимолекулярного иона вниз на величину энергии связи ридберговского электрона $|E_n|$.

Переходы между состояниями квазимолекулы связаны с диполь-дипольным взаимодействием (1.12) между ридберговским электроном и ионным остовом. Формально, квантовое состояние электрона может быть описано с помощью мнимых квантовых чисел, таких, как $E_n = -0.5(in_{eff})^{-2} > 0$ [104]. В этом случае $1/n_{eff}$ равно импульсу p свободного электрона.



В модели DSMJ пренебрегается связанными $|\lambda, n_{eff}, L\rangle \rightarrow |\lambda', n'_{eff}, L'\rangle$ переходами между наборами состояний квазимолекулы с притягивающим и отталкивающим потенциалом. Это эквивалентно игнорированию всех пересечений между ковалентными состояниями, показанными на Рис. 2.4(a), и предположению, что система сталкивающихся частиц останется в состоянии Λ_u вплоть до достижения критического расстояния R_n [см. Уравнение (1.15)], при котором энергия обменного взаимодействия в квазимолекулярном ионе будет равна энергии связи ридберговского электрона. Критическое расстояние R_n соответствует пересечению уровня V_u квазимолекулы и уровня $2^2\Sigma_g^+$ квазимолекулярного иона. При расстояниях $R \leq R_n$ энергия обменного взаимодействия в ионном остове A_2^+ ридберговской квазимолекулы достаточна для перехода ридберговского электрона в континуум, в результате которого в

квазимолекуле произойдет переход между ковалентным состоянием V_u в состояние иона ${}^2\Sigma_g^+$. Это соответствует переходу между ${}^2\Sigma_u^+$ и ${}^2\Sigma_g^+$ состояниями A_2^+ .

Осциллирующее электромагнитное поле $\mathfrak{Z}(t)$, порождаемое обменным взаимодействием в электронной оболочке ионного остова A_2^+ , приводит к сильной связи ридберговского электрона с внутренним дипольным моментом ионного остова квазимолекулы [56],[100]. В результате, ионизация квазимолекулы $[A^{**}(nL) + A]$ происходит с практически единичной вероятностью, как только ядра сталкивающихся атомов достигнут критической дистанции R_n . Сильное возмущение ридберговского электрона имеет два важных следствия: (i) линейное приближение при рассмотрении взаимодействия ридберговского электрона с полем $\mathfrak{Z}(t)$ становится неприменимым; (ii) переходы Ландау-Зинера становятся эффективными в области множественных пересечений ридберговских состояний квазимолекулы [Рис. 2.4(b)]. Таким образом, критическое расстояние R_n становится неопределенным, поскольку неадиабатические переходы в множественных пересечениях уровней приводят к изменению критического расстояния до величины R_i , которая может быть больше, чем R_n [Рис. 2.4(a)]. Рассмотрение множественных и частично перекрывающихся пересечений уровней является нетривиальной задачей, поскольку стандартное приближение Ландау-Зинера предполагает, что все пересечения хорошо изолированы друг от друга. Для ридберговских состояний с высокой плотностью уровней энергии это условие не выполняется.

Альтернативный подход в рассмотрении множественных пересечений уровней был предложен в работах [20],[21], в которых исследовалась возможность применения аппарата динамического хаоса [106],[107] в описании динамики ридберговского электрона. С точки зрения нелинейной механики, каждое пересечение уровней соответствует динамическому резонансу, через который проходит ридберговский электрон во внешнем дипольном поле $\mathfrak{Z}(t)$ [105]. Некоторые обертоны k частоты $\omega_L = 1/n_{eff}^3$, с которой ридберговский электрон движется по кеплеровской орбите, могут соответствовать частоте обмена заряда в ионном остове A_2^+ : $k\omega_n = \Delta(R)$ [108]. Если возмущение ридберговского электрона полем $\mathfrak{Z}(t)$ достаточно сильное, происходит

перекрывание резонансов. Такое перекрывание приводит к установлению глобального хаоса [107] в классическом движении ридберговского электрона, как следует из критерия Чирикова [106]. Можно использовать преимущества такого режима стохастической динамики. Вместо отдельного рассмотрения каждого пересечения уровней на Рис. 2.4(а), можно рассмотреть миграцию системы сталкивающихся атомов по набору ридберговских состояний как диффузию ридберговского электрона в пространстве эффективных квантовых чисел n_{eff} [108],[110].

В нескольких исследованиях были предприняты попытки вывести кинетические уравнения, описывающие хаотическое движение ридберговского электрона. Целью было найти зависящее от времени распределение заселенности ридберговских состояний $f(n_{eff}, t)$. В большинстве исследований рассматривались проблемы стохастической ионизации стабильных (связанных) систем, таких, как атомы [108],[110] или молекулы [111],[112]. Наиболее важные результаты были получены с применением подхода Чирикова, в котором используется перекрывание динамических резонансов как критерий кинетического описания эволюции стохастической системы [106],[107]. Адекватность этого подхода была также доказана применительно к описанию короткоживущих систем, таких, как системы, вовлеченные в процесс ионизации, где динамика системы определяется диффузионной миграцией электронов по энергетическому спектру [20],[21].

В случае *медленных* столкновений, то есть когда скорость движения ядер значительно меньше скорости движения ридберговского электрона по орбите, возмущение (1.12) может быть сведено к оператору взаимодействия ридберговского электрона с однородным электрическим полем [20]. При рассмотрении медленных столкновений предполагается выполнимость адиабатического приближения, что верно для $n < 25$ при тепловых скоростях столкновения [113]. В этом случае, теория стохастического дрейфа кулоновского электрона в микроволновом поле [108]-[110] может быть использована для описания распределения заселенности $f(n_{eff}, t)$ в области Ω_{chaos} в n_{eff} -пространстве, где движение ридберговского электрона хаотическое. Это сделано с применением уравнения типа Фоккера-Планка [20]:

$$\frac{\partial}{\partial t} f(n_{eff}, t) = \frac{\partial}{\partial n_{eff}} j. \quad (2.11)$$

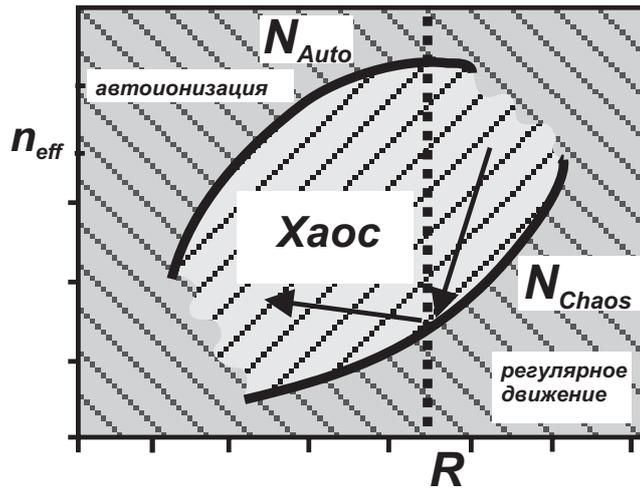


Рис. 2.5. Зоны регулярного и хаотического движения ридберговского электрона, и область автоионизации.

Здесь j – диффузионный поток,

$$j = D(n_{eff}, R) \frac{\partial f(n_{eff}, t)}{\partial n_{eff}}, \quad (2.12)$$

$D(n_{eff}, R)$ – коэффициент диффузии.

Адиабатическое приближение предполагает, что движение электрона адиабатически подстраивается под относительно медленное изменение относительного положения ядер в процессе столкновения. Медленное изменение межъядерного расстояния $R = R(t)$ со временем подразумевает, что коэффициент диффузии $D(n_{eff}, R)$ является зависящей от времени величиной в уравнении (2.12). Зависимость $R(t)$ определяется точно так же, как и в модели DSMJ, то есть рассмотрением движения ядер в отталкивающем потенциале $V_u^+(R)$.

При значениях R , близких к критическому, в n_{eff} –пространстве можно выделить три характерные области [27],[105]-[107], показанные на Рис. 2.5. Ω_{chaos} – зона множественных пересечений уровней $N_{chaos}(R) < n_{eff} < N_{auto}(R)$, где ридберговский электрон движется хаотически. Зависящее от R квантовое число $N_{chaos}(R)$ ограничивает область хаотического движения ридберговского электрона достаточно высокими значениями n_{eff} . Состояния с $n_{eff} < N_{chaos}(R)$ определяют зону Ω_{reg} , в которой происходит регулярное движение ридберговского электрона. В области Ω_{reg} диффузия невозможна, поскольку большой энергетический зазор между соседними уровнями приводит к тому, что динамические резонансы не

перекрываются. В результате, в процессе хаотического движения в зоне Ω_{chaos} ридберговские электроны не имеют возможности попасть в область Ω_{reg} . Точка $N_{chaos}(R)$, следовательно, играет роль отражающей границы, на которой диффузионный поток j [уравнение (2.11)] становится равным нулю. Положение границы зависит от $R = R(t)$, что делает граничные условия зависящими от времени.

Третья зона Ω_{ion} соответствует ридберговским уровням с $n_{eff} > N_{auto}(R)$. В этой зоне ридберговские электроны могут быть ионизованы внутренним дипольным полем $\mathfrak{Z}(t)$. Квантовые переходы в континуум при данном значении R возможны, если $\omega(R) = \Delta(R) > 1/2n_{eff}^2$, то есть:

$$n_{eff} > N_{auto}(R) = \frac{1}{\sqrt{2\omega(R)}}. \quad (2.13)$$

Поскольку в области автоионизации нет пересечений уровней (Рис. 2.4), диффузии заселенности не происходит. Вместо этого, по мере того, как ридберговский электрон движется за пределами $N_{auto}(R)$, происходит ионизация ридберговских уровней со скоростью $W(R)$, определяемой автоионизационной шириной в модели DSMJ [уравнение (1.16)].

Решение уравнения Фоккера-Планка (2.11) позволяет определить вероятность диффузионной ионизации $P_{dif}(\rho, E)$ ридберговского электрона в столкновении при заданной энергии столкновения и прицельном параметре ρ .

Согласованность данной модели с моделью DSMJ была проверена путем точного воспроизведения результатов модели DSMJ, если зона Ω_{chaos} пренебрежимо мала. Данная модель ионизации основывается на предположении, что возмущение ридберговского электрона (1.12) имеет исключительно дипольный характер. Это допущение верно для умеренно высоких ридберговских состояний. Начиная с $n_{eff} = 25$, значительный вклад в процесс ионизации связан с встряхиванием электрона [102],[113]. Этот механизм связан с изменением локализации валентного электрона атома в основном состоянии между двумя ядрами сталкивающихся атомов, что воспринимается ридберговским электроном как внезапные изменения скорости движения эффективного кулоновского центра. В нашей работе исследуются ридберговские состояния с $n_{eff} < 25$, для которых адиабатическое приближение верно при

тепловых энергиях столкновения [113]. Критерий Чирикова требует перекрытия соседних пересечений Ландау-Зинера на Рис. 2.4(b). Такое перекрытие приводит к сильному дефазированию различных траекторий Ландау-Зинера, соединяющих начальное и конечное состояния на Рис. 2.4(b). Как было показано в [106], в таких условиях следует рассматривать квантовую кинетику [114]. Хотя в работе [62] работе применялся квазиклассический подход для вычисления коэффициента диффузии [21], полученные результаты идентичны результатам квантово-кинетического рассмотрения.

2.5. Влияние перераспределения заселенностей ридберговских состояний под действием теплового излучения на процессы ионизации

Как уже было указано в литературном обзоре, фотоионизация ридберговских атомов тепловым излучением – сложный процесс, включающий (i) прямую фотоионизацию первоначально возбужденного состояния nL , (ii) ионизацию вытягивающими электрическими импульсами высоколежащих ридберговских состояний, заселенных тепловым излучением $n'L'$, (iii) прямую фотоионизацию ридберговских $n'L'$ ($n' \sim n$) состояний, соседних первоначально возбужденному и заселенных тепловым излучением и, (iv) ионизацию электрическими импульсами высоколежащих состояний, заселенных в результате двухступенчатого процесса $nL \rightarrow n'L' \rightarrow n''L''$.

Рассмотрим случай, когда первоначально возбуждено состояние $16S$ натрия. После лазерного возбуждения, индуцированные тепловым излучением переходы ведут к заселению соседних $n'P$ состояний [Рис. 2.6(a)]. Скорости спонтанных и индуцированных тепловым излучением переходов из $16S$ и $16D$ состояний натрия в соседние $n'P$ состояния, рассчитанные нами в работе [61], приведены на Рис. 2.6(b) и (c). Из расчетов следует, что скорости прямой фотоионизации $n'P$ состояний натрия значительно выше, чем скорости ионизации nS состояний. Поэтому заселение соседних состояний вносит заметный вклад в полную скорость тепловой фотоионизации.

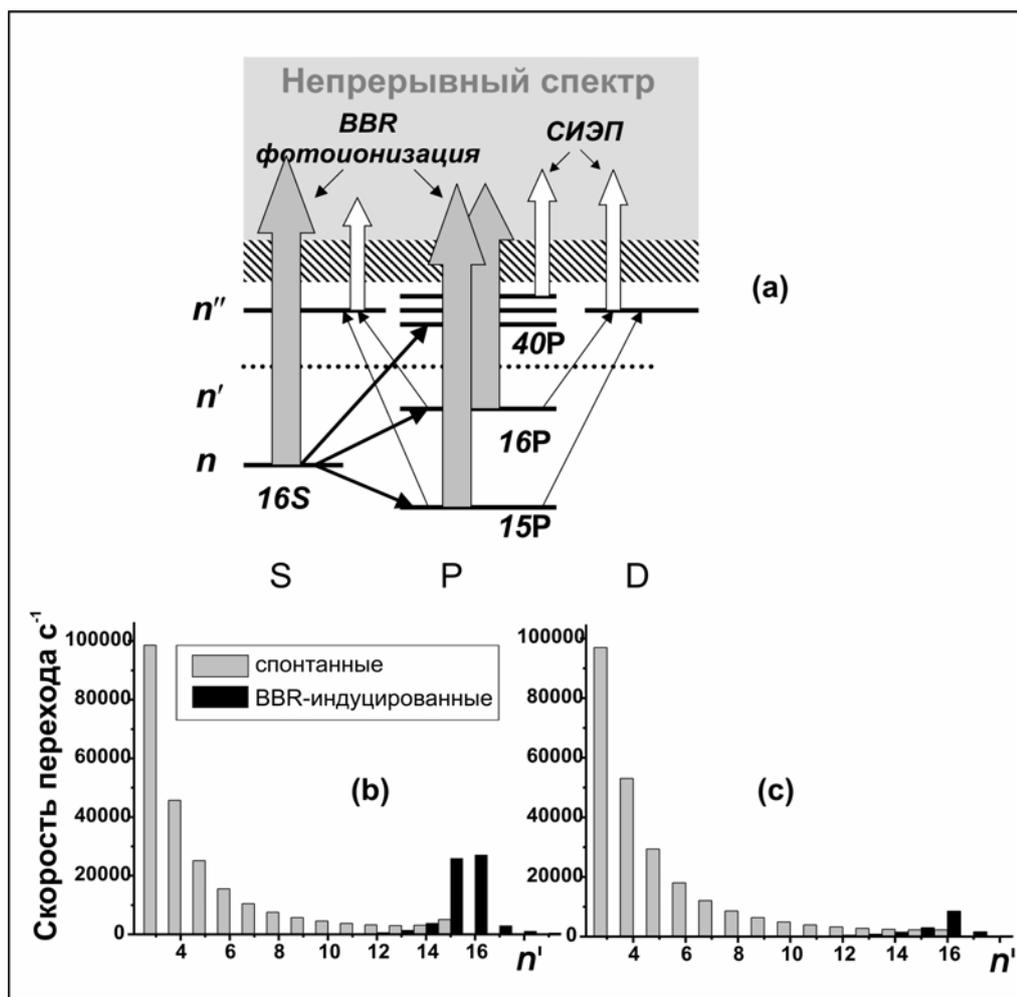


Рис. 2.6. (а) Схема ионизации $16S$ состояния натрия тепловым излучением; (б) Скорости индуцированных тепловым излучением переходов из состояния $16S$ в состояние $n'P$; (с) Скорости индуцированных тепловым излучением переходов из состояния $16D$ в состояние $n'P$.

Кроме того, тепловое излучение также индуцирует переходы в высоколежащие ридберговские состояния, на Рис. 2.6(а) обозначенные n'' . Эти состояния ионизируются электрическими импульсами, применяемыми для вытягивания ионов для их последующего детектирования вторичными электронными умножителями или микроканальными пластинами.

Полученные нами результаты показали, что эти процессы влияют как на амплитуду измеряемых ионизационных сигналов, так и на форму зависимости скорости индуцированной тепловым излучением ионизации от главного квантового числа.

Таким образом, полная скорость ионизации ридберговских атомов тепловым излучением может быть представлена в виде суммы:

$$W_{BBR}^{tot} = W_{BBR} + W_{SFI} + W_{BBR}^{mix} + W_{SFI}^{mix}. \quad (2.14)$$

Первый член W_{BBR} - скорость прямой фотоионизации первоначально возбужденного nL состояния. Второй член W_{SFI} - скорость ионизации атомов в высоколежащих $n''L'$ состояниях, заселенных тепловым излучением, электрическим полем. Третий член W_{BBR}^{mix} - полная скорость прямой ионизации всех атомов в близлежащих к первоначально возбужденному $n'L'$ состояниях. Последний член – скорость W_{SFI}^{mix} ионизации высоколежащих состояний, заселенных в результате двухступенчатого процесса $nL \rightarrow n'L' \rightarrow n''L''$.

Аналогичное рассмотрение должно быть сделано и при расчете констант скорости ассоциативной ионизации ридберговских атомов. Мы ввели эффективные значения скорости ассоциативной ионизации:

$$k_{AI}^{eff} = k_{AI} + k_{AI}^{mix}. \quad (2.15)$$

Здесь k_{AI} - скорость ассоциативной ионизации первоначально возбужденного состояния, а k_{AI}^{mix} - скорость ассоциативной ионизации соседних состояний, заселенных тепловым излучением. Наибольший вклад в k_{AI}^{mix} связан также с ближайшими состояниями с $n' = n \pm 1$.

2.6. Расчеты скорости прямой фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением

Скорость прямой тепловой фотоионизации ридберговских атомов с энергией E_n определяется следующим выражением [24]:

$$W_{BBR} = c \int_{\omega_{nL}}^{\infty} \sigma_{\omega} \rho_{\omega} d\omega. \quad (2.16)$$

где c – скорость света, $\omega_{nL} = 1/(2n_{eff}^2)$ - пороговая частота фотоионизации атома в ридберговском nL состоянии с эффективным квантовым числом $n_{eff} = (n - \delta_L)$, и σ_{ω} - сечение фотоионизации на частоте ω . Объемная плотность тепловых фотонов при температуре T определяется распределением Планка:

$$\rho_{\omega} = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3 [\exp(\omega/T) - 1]}, \quad (2.17)$$

где T – температура излучения в атомных единицах. Для изотропного неполяризованного теплового излучения сечение фотоионизации σ_{ω} выражается через радиальные матричные элементы $R(nL \rightarrow E, L \pm 1)$ дипольного перехода между состояниями nL дискретного спектра и состояниями непрерывного спектра с орбитальным моментом $L \pm 1$ и энергией фотоэлектрона E :

$$\sigma_{\omega} = \frac{4\pi^2 \omega}{3c(2L+1)} \sum_{L'=L \pm 1}^{L_{\max}} R^2(nL \rightarrow E, L \pm 1), \quad (2.18)$$

где L_{\max} – наибольшее из L и L' .

Наиболее сложной задачей при вычислении скорости тепловой фотоионизации является расчет радиальных матричных элементов для переходов из связанных состояний в континуум [94]. Для аккуратного вычисления сечений фотоионизации наиболее удобны аналитические квазиклассические формулы Дьячкова и Панкратова [28],[29]. В сравнении с другими квазиклассическими методами [30],[115],[116] метод Дьячкова и Панкратова имеет ряд преимуществ. Используются ортогональные нормированные квазиклассические волновые функции. Сделанные с их использованием расчеты сечений фотоионизации находятся в хорошем согласии с результатами наиболее сложных и точных вычислений [117], использующих метод модельного потенциала.

При рассмотрении фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением, крайне полезны приближенные аналитические выражения для W_{BRR} , поскольку они иллюстрируют зависимость скорости ионизации от главного квантового числа n , орбитального момента L и температуры T . Такие выражения были получены нами на основе аналитических формул для радиальных матричных элементов дипольных переходов, выведенных в работе Гореславского, Делоне и Крайнова [30] (модель ГДК) в квазиклассическом приближении. Сечение фотоионизации ридберговского nL состояния в модели ГДК выражается через функцию Макдональда $K_{\nu}(x)$:

$$\sigma_{\omega}(nL \rightarrow E, L \pm 1) = \frac{4L^4}{9cn^3 \omega} \left[K_{2/3}^2 \left(\frac{\omega L^3}{3} \right) + K_{1/3}^2 \left(\frac{\omega L^3}{3} \right) \right], \quad (2.19)$$

Это выражение было первоначально получено для описания фотоионизации атома водорода. Предполагалось, что область ее применения может быть расширена для атомов щелочных металлов заменой главного квантового числа n на $n_{eff} = (n - \delta_L)$, где δ_L – квантовый дефект. В действительности, точность выражения (2.19) для сечения фотоионизации достаточно высока только для водородоподобных состояний с малыми квантовыми дефектами. Недостаток модели ГДК заключается в том, что она не учитывает неводородоподобные фазовые члены в интеграле перекрытия волновых функций при вычислении радиальных матричных элементов.

Для ридберговских состояний с $n \gg 1$ и малыми орбитальными моментами L выполняется условие $(\omega L^3/3) \ll 1$. Тогда уравнение (2.19) может быть упрощено посредством асимптотического разложения функции Макдональда:

$$\sigma_{\omega}(nL \rightarrow E, L \pm 1) \approx \frac{1}{9cn^3} \left[\frac{6^{4/3} \Gamma^2(2/3)}{\omega^{7/3}} + \frac{6^{2/3} \Gamma^2(1/3)}{\omega^{5/3}} L^2 \right]. \quad (2.20)$$

Комбинируя уравнения (2.16), (2.17) и (2.20), получаем приближенное выражение:

$$W_{BBR} \approx \frac{1}{\pi^2 c^3 n^3} \int_{\omega_{nL}}^{\infty} \left[2.22 \omega^{-1/3} + 2.63 \omega^{1/3} L^2 \right] \frac{d\omega}{\exp(\omega/T) - 1}. \quad (2.21)$$

Выражение в квадратных скобках – медленно меняющаяся функция частоты по сравнению с $\frac{1}{\exp(\omega/T) - 1}$ при $\omega > T$. С увеличением частоты ω подынтегральное выражение в (2.21) спадает экспоненциально, поэтому основной вклад в W_{BBR} связан с частотами вблизи порога ионизации $1/2n^2$. Следовательно, в квадратных скобках можно заменить ω на $1/2n^2$. В результате такой замены интеграл (2.21) может быть вычислен аналитически, что приводит к следующему выражению для скорости прямой фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением:

$$W_{BBR} \approx \frac{T}{\pi^2 c^3} \left[\frac{2.80}{n^{7/3}} + \frac{2.09L^2}{n^{11/3}} \right] \ln \left(\frac{1}{1 - \exp\left(-\frac{\omega_{nL}}{T}\right)} \right). \quad (2.22)$$

При расчете скоростей фотоионизации щелочных металлов в выражении (2.22) главное квантовое число n следует заменить эффективным квантовым числом n_{eff} . Сравнение значений W_{BBR} , полученных с помощью (2.22), с численным расчетом в модели Дьячкова и Панкратова [29] показало, что для неводородоподобных состояний щелочных металлов с $L \sim 0$ и большими значениями квантового дефекта δ_L результаты численных и аналитических расчетов существенно различаются по абсолютной величине, но имеют близкие формы зависимостей от главного квантового числа n . Эти расхождения связаны с тем, что формула (2.19) была получена для водорода, и в ней не учитывается связанный с квантовым дефектом фазовый сдвиг радиальных волновых функций ридберговских состояний щелочных металлов. В частности, в модели ГДК сечения фотоионизации nS , nP и nD состояний натрия близки по абсолютной величине, а результаты точных численных расчетов показывают, что сечения фотоионизации nS состояний значительно меньше, чем сечения фотоионизации nP и nD состояний.

В то же время, совпадение форм зависимостей W_{BBR} от главного квантового числа, даже для неводородоподобных состояний атомов щелочных металлов, позволяет использовать выражение (2.22) для достаточно точных оценок скоростей фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов после масштабирования с помощью эмпирического коэффициента C_L , зависящего от орбитального момента L . Тем не менее, точные результаты должны быть получены численно.

Удобно получить выражение для скорости фотоионизации W_{BBR} щелочных металлов тепловым излучением в сек^{-1} (здесь температура T выражается в градусах Кельвина):

$$W_{BBR} = C_L T \left[\frac{14423}{n_{eff}^{7/3}} + \frac{10770L^2}{n_{eff}^{11/3}} \right] \ln \left(\frac{1}{1 - \exp\left(-\frac{157890}{Tn_{eff}^2}\right)} \right) \quad [\text{сек}^{-1}]. \quad (2.23)$$

Значения коэффициентов C_L , позволяющие получить наилучшее согласие между численным расчетом и аналитическими формулами, были рассчитаны нами и приведены в Таблице 2.1. Для неводородоподобных ($\delta_L \cong 1.348$) nS состояний натрия согласие между численными и аналитическими расчетами достигается при введении масштабного коэффициента $C_L=0.15$. Для nD состояний натрия с малым квантовым дефектом $\delta_L \cong 0.014$ введение масштабных коэффициентов не требуется. Для nP состояний натрия ($\delta_L \cong 0.855$) масштабный коэффициент также оказался равным единице. Это связано с тем, что, хотя nP состояния натрия не являются водородоподобными, зависимость радиальных матричных элементов от квантового дефекта имеет периодический характер, поскольку квантовый дефект определяет фазовый сдвиг волновой функции ридберговского состояния.

Ридберговские nS , nP и nD состояния атомов калия, рубидия и цезия имеют достаточно большие квантовые дефекты ($\delta_L \cong 3.13, 2.66$, и 1.34 для nS , nP и nD состояний рубидия соответственно), что потребовало введения масштабных коэффициентов, не равных единице. Оказалось, что для различных атомов значения C_L существенно отличаются друг от друга, так, для рубидия $C_S \approx 0.2$, а для лития $C_S \approx 0.003$. В связи с этим целесообразно получение более общей формулы для оценки скорости тепловой фотоионизации атомов щелочных металлов, в которой вместо эмпирических коэффициентов входили бы известные значения квантовых дефектов δ_L .

В работе Делоне, Гореславского и Крайнова [91] было предложено

Таблица 2.1 Масштабные коэффициенты C_L в уравнении (2.23).			
	C_S	C_P	C_D
литий	0.003	1	1
натрий	0.15	1	1
калий	0.12	0.15	0.4
рубидий	0.2	0.2	0.4
цезий	0.1	0.6	0.3

приближенное выражение для расчета радиального матричного элемента переходов в непрерывном спектре для неводородоподобных атомов:

$$R_{EL}^{EL'} \approx \frac{0.4744}{\omega^{5/3}} \cos\left(\Delta_L \pm \frac{\pi}{6}\right), \quad (2.24)$$

где $\Delta_L = |\pi(\delta_{L'} - \delta_L)|$ - разность квантовых дефектов, знак (+) в скобках соответствует переходам с $L' > L$ и знак (-) соответствует переходам с $L' < L$. Выражение (2.24) позволяет учесть связанный с квантовым дефектом фазовый сдвиг волновых функций. Для учета фазового сдвига в расчетах скорости фотоионизации тепловым излучением, используя формулу (2.24), мы эмпирически ввели радиальные матричные элементы с учетом квантового дефекта:

$$\tilde{R}_{nL}^{EL+1} \sim R_{nL}^{EL+1} \cos\left(\Delta_L^+ + \frac{\pi}{6}\right), \quad \tilde{R}_{nL}^{EL-1} \sim R_{nL}^{EL-1} \cos\left(\Delta_L^- - \frac{\pi}{6}\right), \quad (2.25)$$

где $\Delta_L^+ = \pi(\delta_L - \delta_{L+1})$, $\Delta_L^- = \pi(\delta_{L-1} - \delta_L)$, $R_{nL}^{EL\pm 1}$ - радиальные матричные элементы для связанно-свободных переходов, вычисленные для атома водорода. В Таблице 2.2 приведены значения разностей квантовых дефектов $\delta_L - \delta_{L'}$ для переходов из ридберговских состояний щелочных металлов с $n \sim 20$ в непрерывный спектр, полученные на основе известных значений квантовых дефектов [см. Таблицу 1.2].

Таблица 2.2. Разность квантовых дефектов ридберговских состояний щелочных металлов			
	$\delta_S - \delta_P$	$\delta_P - \delta_D$	$\delta_D - \delta_F$
Li	0.352417	0.0451664	0.00162407
Na	0.493519	0.840023	0.0148029
K	0.466733	1.43762	0.264237
Rb	0.490134	1.29456	1.34636
Cs	0.458701	1.12661	2.43295

Таблица 2.3. Масштабные коэффициенты A_L в уравнении (2.26).			
	A_S	A_P	A_D
Li	1	1	0.9
Na	1	1	1.1
K	0.9	0.45	1.3
Rb	1	1	0.6
Cs	0.85	1.1	0.35

При расчете скорости фотоионизации для малых значений L , членами, пропорциональными L и L^2 , можно пренебречь. С учетом (2.25), после перемасштабирования для получения наилучшего согласия с численными расчетами, выражение (2.23) для скорости фотоионизации тепловым излучением может быть преобразовано к окончательному виду (температура T выражается в градусах Кельвина):

$$W_{BRR} = A_L \frac{11500T}{n_{eff}^{7/3}} \left[\cos\left(\Delta_L^+ + \frac{\pi}{6}\right)^2 + \cos\left(\Delta_L^- - \frac{\pi}{6}\right)^2 \right] \ln \left(\frac{1}{1 - \exp\left(-\frac{157890}{Tn_{eff}^2}\right)} \right) \quad [\text{сек}^{-1}] \quad (2.26)$$

Здесь $A_L \sim 1$ - слабозависящие от орбитального момента коэффициенты, которые близки для различных ридберговских состояний, в отличие от коэффициентов C_L , изменяющихся в сотни раз ($C_L \sim 1$ для nD состояний натрия и $C_L \sim 0.003$ для nS состояний лития). Для nS состояний в скобках в уравнении (2.26) необходимо оставить только один член, соответствующий переходу $L' = L + 1$.

Для оценки скорости фотоионизации атомов щелочных металлов тепловым излучением с точностью до 50% достаточно положить $A_L = 1$. Для более точных расчетов следует воспользоваться значениями A_L из Таблицы 2.3, подобранными для достижения наилучшего согласия с численными расчетами. Коэффициенты A_L близки к единице, за исключением nP состояний калия и nD состояний рубидия и цезия.

На Рис. 2.7(a) представлены результаты численных и аналитических [уравнение (2.26), $A_L=1$] расчетов скорости прямой фотоионизации тепловым излучением ридберговских 30S атомов лития, натрия, калия, рубидия и цезия при температуре 300 К в зависимости от разности квантовых дефектов. Наблюдается хорошее согласие между приближенной аналитической формулой (2.26) и точным численным расчетом. Для ридберговских nP и nD состояний переходы в непрерывный спектр идут одновременно по двум каналам с $L' = L \pm 1$, что не позволяет получить зависимости скорости фотоионизации от квантового дефекта столь простого вида, как для nS состояний.

На Рис. 2.7(b)-(d) приведены результаты численных расчетов скорости фотоионизации ридберговских nS состояний лития при температурах теплового излучения $T=77, 300$ и 600 К в широком диапазоне главных квантовых чисел $n=8-65$ и сравнение с аналитической формулой (2.26). Для nP и nD состояний аналитический расчет [см. Рис. 2.7 (c) и (d)] согласуется с численным расчетом, в то время как для nS состояний [Рис. 2.7(b)] формы аналитических и численных зависимостей существенно различаются. Это связано с принципиально неводородоподобным характером ридберговских nS состояний лития, который будет подробно проанализирован при рассмотрении ионизации высоколежащих состояний электрическими импульсами (см. Глава 2.7).

На Рис. 2.8 и 2.9 приведены результаты расчетов скорости фотоионизации nP состояний атомов натрия, калия, рубидия и цезия тепловым излучением. Также наблюдается хорошее согласие между численным расчетом и аналитической формулой (2.26). В области больших главных квантовых чисел $n>50$ точность формулы (2.26) снижается и для nP состояний с $n\sim 100$ не превышает 50%, поскольку с увеличением орбитального момента L увеличивается вклад членов, пропорциональных L и L^2 , которыми мы пренебрегли при выводе формулы (2.26). Следует отметить, что сохранение этих членов приводит к существенному усложнению формулы (2.26), которая становится неудобной для применения.

Вычисленные нами скорости прямой фотоионизации ридберговских атомов натрия [Рис. 2.8(a)-(c)] находятся в согласии с результатами расчетов [84], выполненных методом модельного потенциала.

Для вывода аналитической формулы (2.26) мы использовали асимптотическое разложение функций Макдональда, положив $\omega L^3 \ll 1$ и

заменяв ω в медленно меняющейся части интеграла (2.16) на $1/2n_{eff}^2$, что допустимо при $\omega_{nL} > T$ (при температуре $T=300$ К выполняется для состояний с $n < 20$). Сравнение с численным расчетом показало, что формула (2.26) позволяет получить правильные оценки скорости фотоионизации даже при больших значениях главного квантового числа, вплоть до $n \sim 50$. Данная формула применима для $L \ll n$ и позволяет с высокой точностью рассчитать скорость фотоионизации ридберговских nS атомов щелочных металлов тепловым излучением и оценивать скорость фотоионизации атомов в nP и nD состояниях.

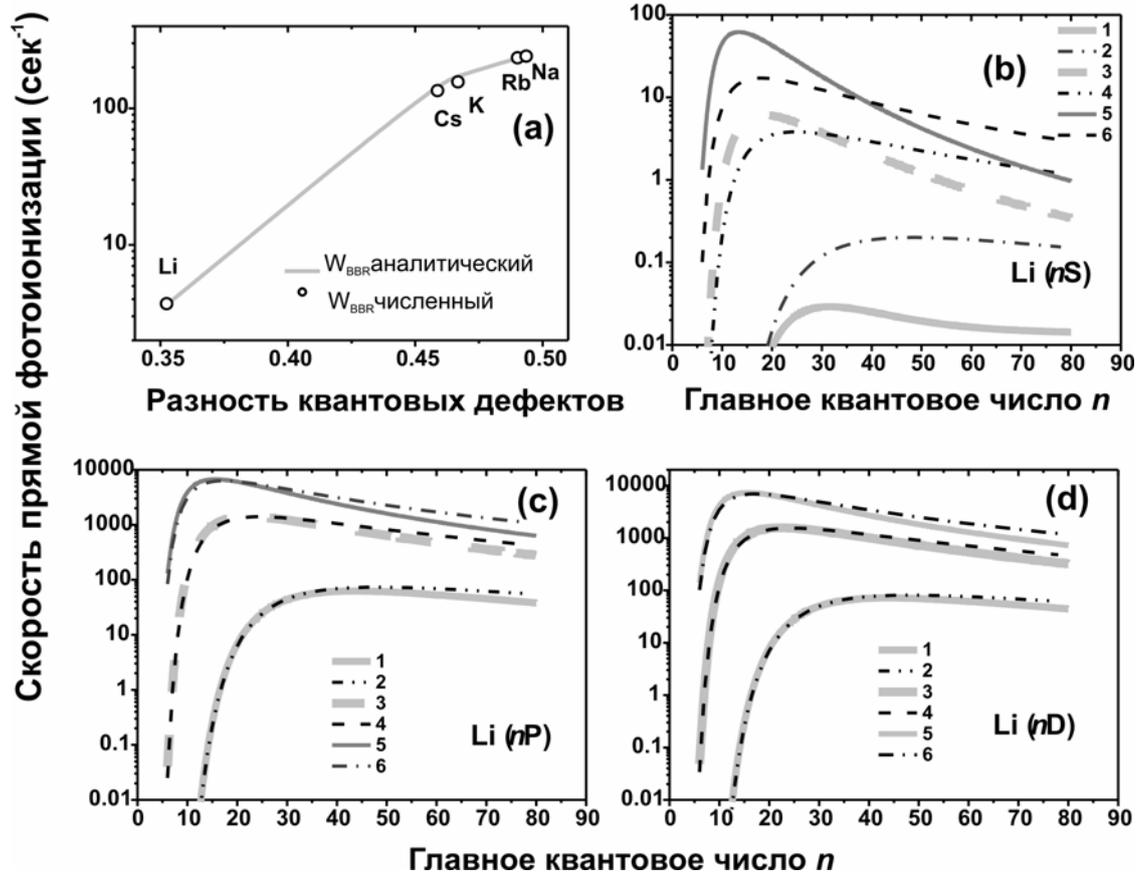


Рис. 2.7. Скорость прямой фотоионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением: (а) – зависимость скорости фотоионизации 30S состояний лития, натрия, калия, рубидия, цезия тепловым излучением при температуре $T=300$ К от разности квантовых дефектов $\delta_S - \delta_P$; (б), (с), (д) - зависимость скорости nS , nP , и nD соответственно атомов лития тепловым излучением. Кривые (1), (3), (5) - результат численного расчета в модели Дьячкова и Панкратова при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (2), (4), (6) – аналитические результаты в модели ГДК, полученные с использованием формулы (2.26) при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно.

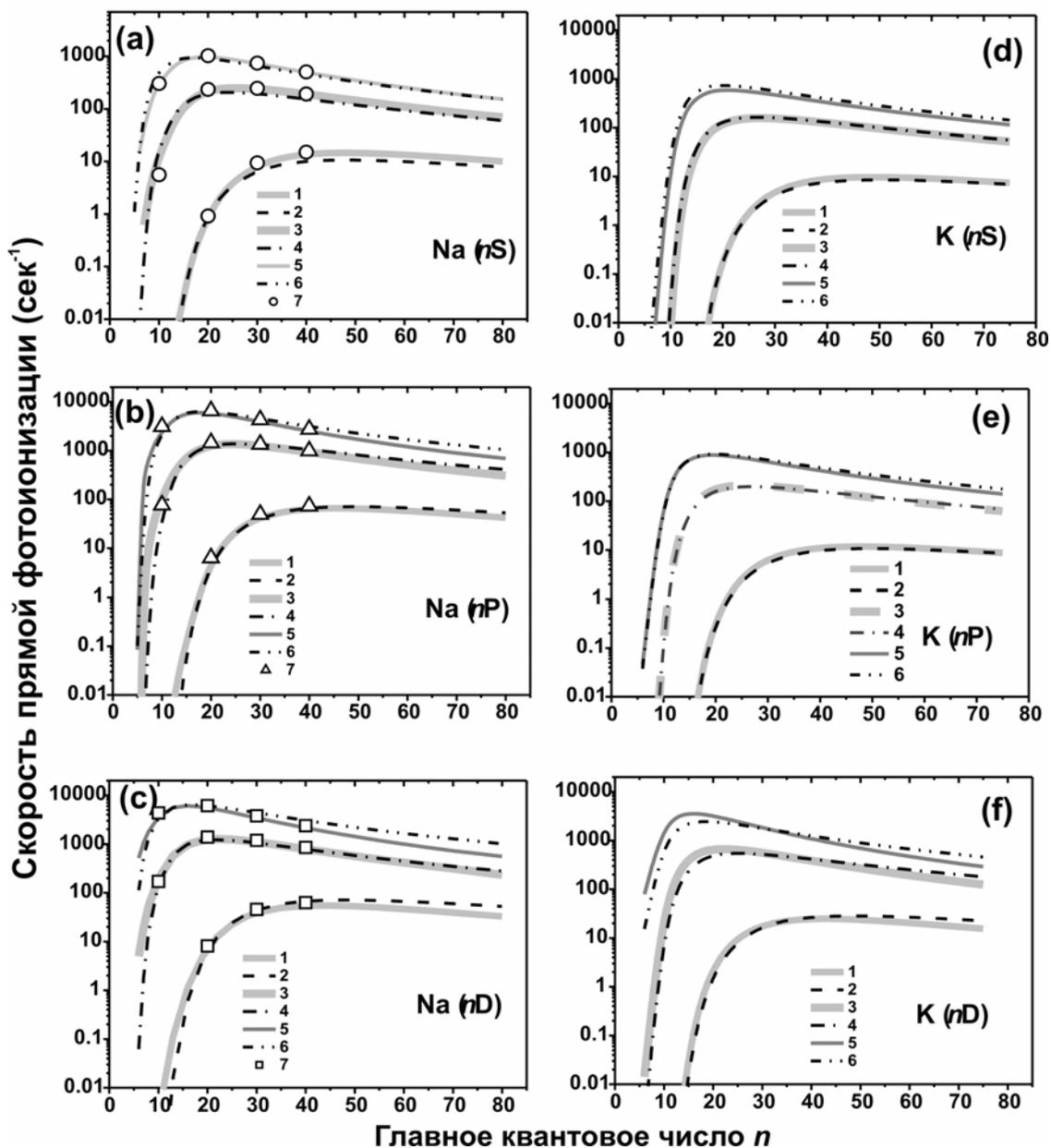


Рис. 2.8. Скорость прямой фотоионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов натрия и nS (d), nP (e), и nD (f) атомов калия тепловым излучением. Кривые (1), (3), (5) - результат численного расчета в модели Дьячкова и Панкратова при температурах $T=77$, 300 и 600 К соответственно. Кривые (2), (4), (6) – аналитические результаты в модели ГДК, полученные с использованием формулы (2.26) при температурах $T=77$, 300 и 600 К соответственно. (7) – результаты численного расчета, проведенного Леманом [84] методом модельного потенциала.

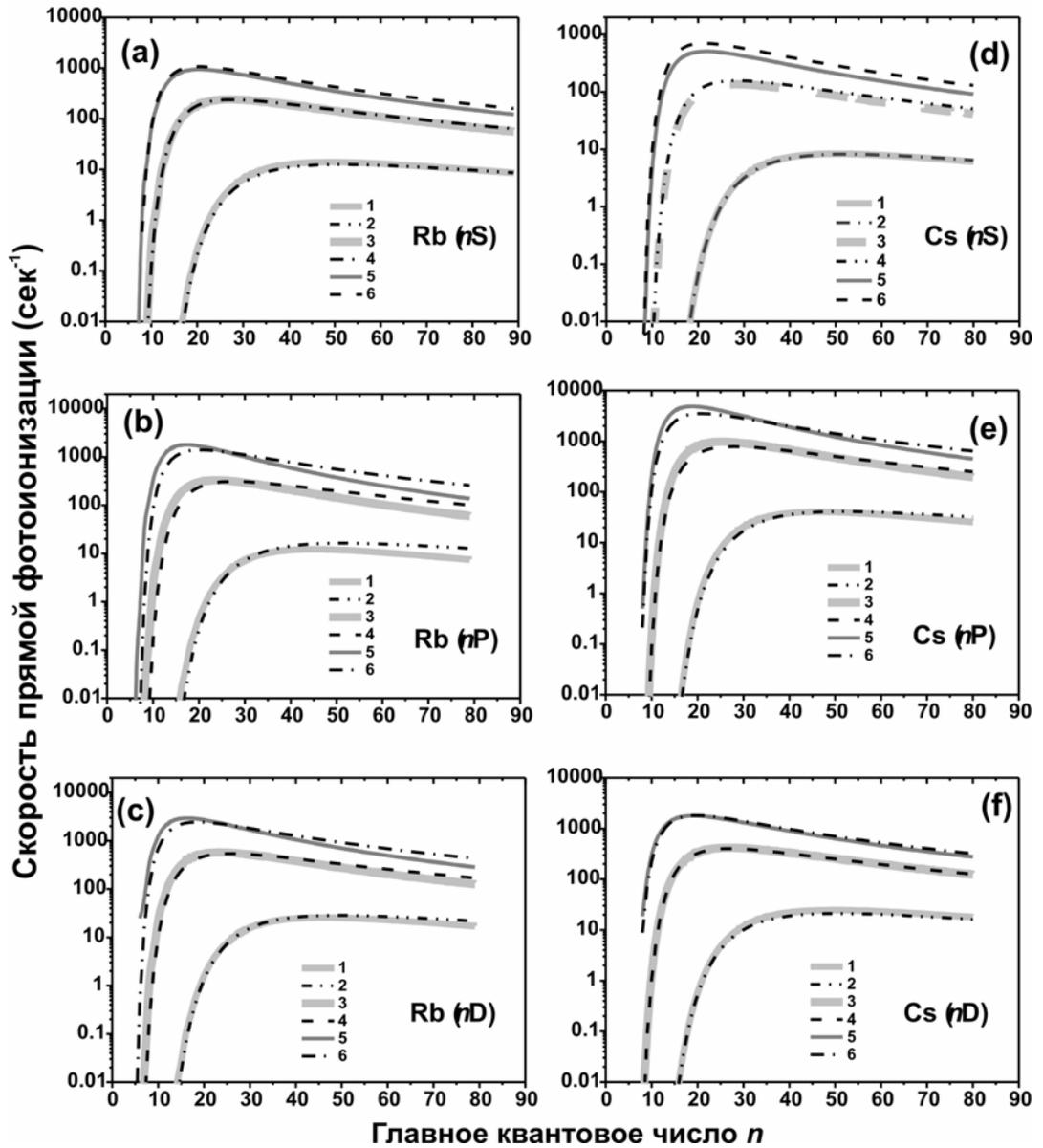


Рис. 2.9. Скорость прямой фотоионизации ридберговских nS (a), nP (b), и nD (c) атомов рубидия и nS (d), nP (e), и nD (f) атомов цезия тепловым излучением. Кривые (1), (3), (5) - результат численного расчета в модели Дьячкова и Панкротова при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (2), (4), (6) – аналитические результаты в модели ГДК, полученные с использованием формулы (2.26) при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно.

2.7. Ионизация высоколежащих ридберговских состояний вытягивающим электрическим полем

Электрические импульсы с практически единичной вероятностью ионизируют состояния с эффективным квантовым числом $n_{eff} > n_c$, где критическое значение n_c зависит от амплитуды электрического поля и в классическом приближении описывается формулой [51]-[53]:

$$F_c \approx 3.2 \cdot 10^8 n_c^{-4} \quad (\text{В/см}). \quad (2.27)$$

где F_c – критическое поле для n_c . Следовательно, если тепловое излучение заселяет ридберговские состояния с $n' \geq n_c$, эти состояния будут ионизованы и дадут вклад в наблюдаемый ионизационный сигнал, сопоставимый с вкладом прямой фотоионизации тепловым излучением [24]. Поскольку вероятность полевой ионизации состояний с $n' \geq n_c$ практически равна единице, для расчета скорости полевой ионизации W_{SFI} достаточно рассчитать скорость заселения высоколежащих состояний тепловым излучением:

$$W_{SFI} = \sum_{n' \geq n_c} \sum_{L=L \pm 1} W(nL \rightarrow n'L'). \quad (2.28)$$

Мы рассчитали скорости дипольных переходов $W(nL \rightarrow n'L')$ во все состояния $n'L'$ [$L' = (L \pm 1)$] с использованием квазиклассических формул Дьячкова и Панкратова [29]. Значения W_{SFI} были рассчитаны для различных напряженностей электрического поля.

Мы также сравнили результаты численных расчетов с аналитическими формулами, полученными на основе модели ГДК, аналогично уравнению (2.21):

$$W_{SFI} \approx \frac{1}{\pi^2 c^3 n^3} \int_{\frac{1}{2n^2} - \frac{1}{2n_c^2}}^{\omega_{nL}} [2.22 \omega^{-1/3} + 2.63 \omega^{1/3} L^2] \frac{d\omega}{e^{\omega/T} - 1}. \quad (2.29)$$

Пределы интегрирования выбраны так, чтобы учесть вклад от переходов в состояния, для которых частота перехода $\left(\frac{1}{2n^2} - \frac{1}{2n_c^2} \right) < \omega < \omega_{nL}$ (то есть состояния выше порога полевой ионизации). Интегрирование уравнения (2.29) позволяет получить удобную аналитическую формулу для W_{SFI} , аналогичную (2.26):

$$W_{SFI} = A_L \frac{11500T}{n^{7/3}} \left[\cos\left(\Delta_L^+ + \frac{\pi}{6}\right)^2 + \cos\left(\Delta_L^- - \frac{\pi}{6}\right)^2 \right] \times \left(\ln \frac{1}{1 - \exp\left(\frac{157890}{Tn_c^2} - \frac{157890}{Tn^2}\right)} - \ln \frac{1}{1 - \exp\left(-\frac{157890}{Tn^2}\right)} \right) [\text{сек}]^{-1} \quad (2.30)$$

где T – температура в градусах Кельвина, а W_{SFI} вычисляется в обратных секундах.

Результаты численных и аналитических расчетов для скорости ионизации ридберговских атомов щелочных металлов электрическим полем с амплитудой импульсов 5 и 10 В/см при температуре $T=300$ К приведены на Рис. 2.10-2.12. Используются масштабные коэффициенты A_L из Таблицы 2.3. Обнаружено, что для ридберговских nS состояний лития в численных расчетах наблюдается аномальная форма зависимости, не имеющая аналогов среди других ридберговских состояний, исследованных в данной работе - ярко выраженный минимум в районе $n \sim 30$. Теоретический анализ показывает, что аномалия обусловлена явлением, аналогичным возникновению куперовского минимума в дискретном спектре для переходов между nS и $n'P$ состояниями лития [86]. Для атома водорода радиальные матричные элементы переходов между ридберговскими состояниями монотонно уменьшаются с увеличением энергетического интервала между рассматриваемыми уровнями. В то же время, радиальные волновые функции ридберговских состояний атомов щелочных металлов имеют меняющиеся в разных сериях значения фазового сдвига $\pi\delta_L$, что может вызвать зануление интеграла перекрытия в матричных элементах дипольного момента для некоторых энергий перехода [90]. Последнее приводит к возникновению минимумов для вероятности оптического перехода, пропорциональной квадрату радиального матричного элемента. Как и в случае прямой фотоионизации ридберговских nS атомов лития, водородоподобная модель ГДК [пунктир на Рис. 2.10(a)] оказывается неадекватной, поскольку она игнорирует фазовые сдвиги волновых функций, связанные с квантовым дефектом.

Для водородоподобных nP и nD состояний лития [Рис. 2.10(b) и (c) соответственно] численные и аналитические расчеты дают близкие значения,

хотя согласие между ними несколько хуже, чем для прямой фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением. Аналогичная картина наблюдается и для ридберговских nS , nP и nD состояний натрия, калия, рубидия и цезия [Рис. 2.10-2.12].

Амплитуды электрического поля 5 и 10 В/см соответствуют условиям экспериментов с холодными ридберговскими атомами, поскольку такие электрические поля не приводят к полевой ионизации первоначально возбуждаемых ридберговских состояний с достаточно большими главными квантовыми числами $n \sim 30-50$, представляющими интерес для исследования ультрахолодной плазмы [12], и позволяют вытягивать только ионы, образовавшиеся в результате ионизации в столкновениях и под действием теплового излучения. При $n \sim 30$ скорость ионизации электрическим полем оказывается приблизительно на порядок меньше, чем скорость прямой фотоионизации тепловым излучением. С увеличением n до 60 скорости прямой фотоионизации и ионизации электрическими импульсами становятся сравнимыми [см, например, Рис. 2.8(f) и 2.11(f)].

В эксперименте, описанном в Главе 3, нами использовались ридберговские состояния натрия с меньшими квантовыми числами ($n \sim 8-20$), представлявшими интерес для исследования ассоциативной ионизации в столкновениях. Условия эксперимента потребовали использования для вытягивания ионов электрические импульсы с большей амплитудой (100 В/см). Результаты расчетов скорости ионизации ридберговских nS и nD атомов натрия электрическими импульсами амплитудой 100 и 200 В/см приведены на Рис. 2.13. Расчеты проведены в диапазоне главных квантовых чисел $n=5-35$, поскольку уже nS состояния с $n=37$ ионизируются электрическим полем напряженностью 200 В/см. При $n \sim 20$ скорость прямой фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением превышает скорость ионизации электрическим полем не более чем в два раза, что делает необходимым учет вклада ионизации электрическими импульсами в наблюдаемый ионизационный сигнал.

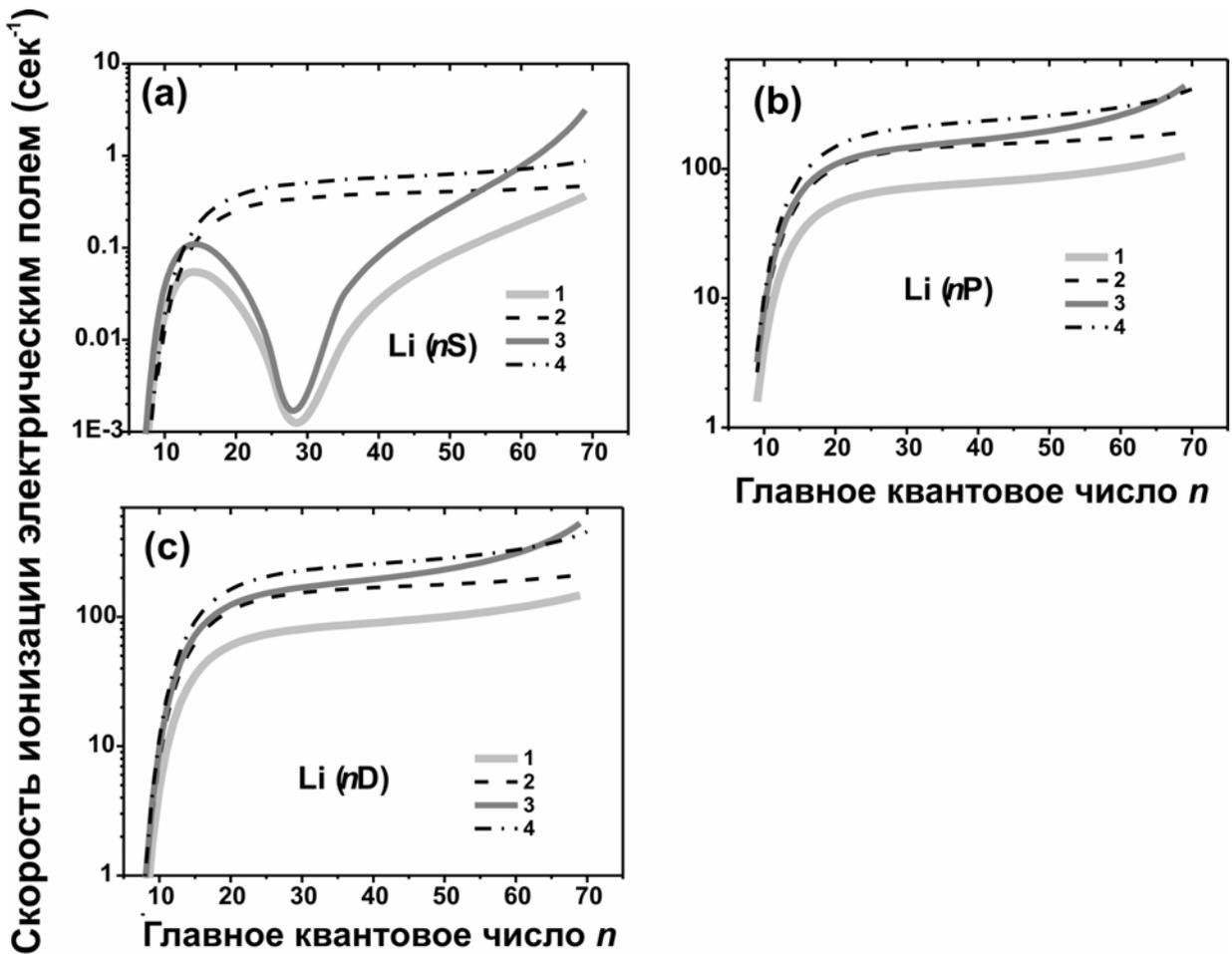


Рис. 2.10. Скорость ионизации ридберговских nS (а), nP (б) и nD (в) атомов лития электрическим полем при температуре $T=300$ К. Кривые (1), (3) - результаты численного расчета в модели Дьячкова и Панкратова для амплитуды электрических импульсов 5 и 10 В/см соответственно. Кривые (2), (4) – аналитические результаты в модели ГДК, полученные с использованием формулы (2.30) для амплитуды электрических импульсов 5 и 10 В/см соответственно.

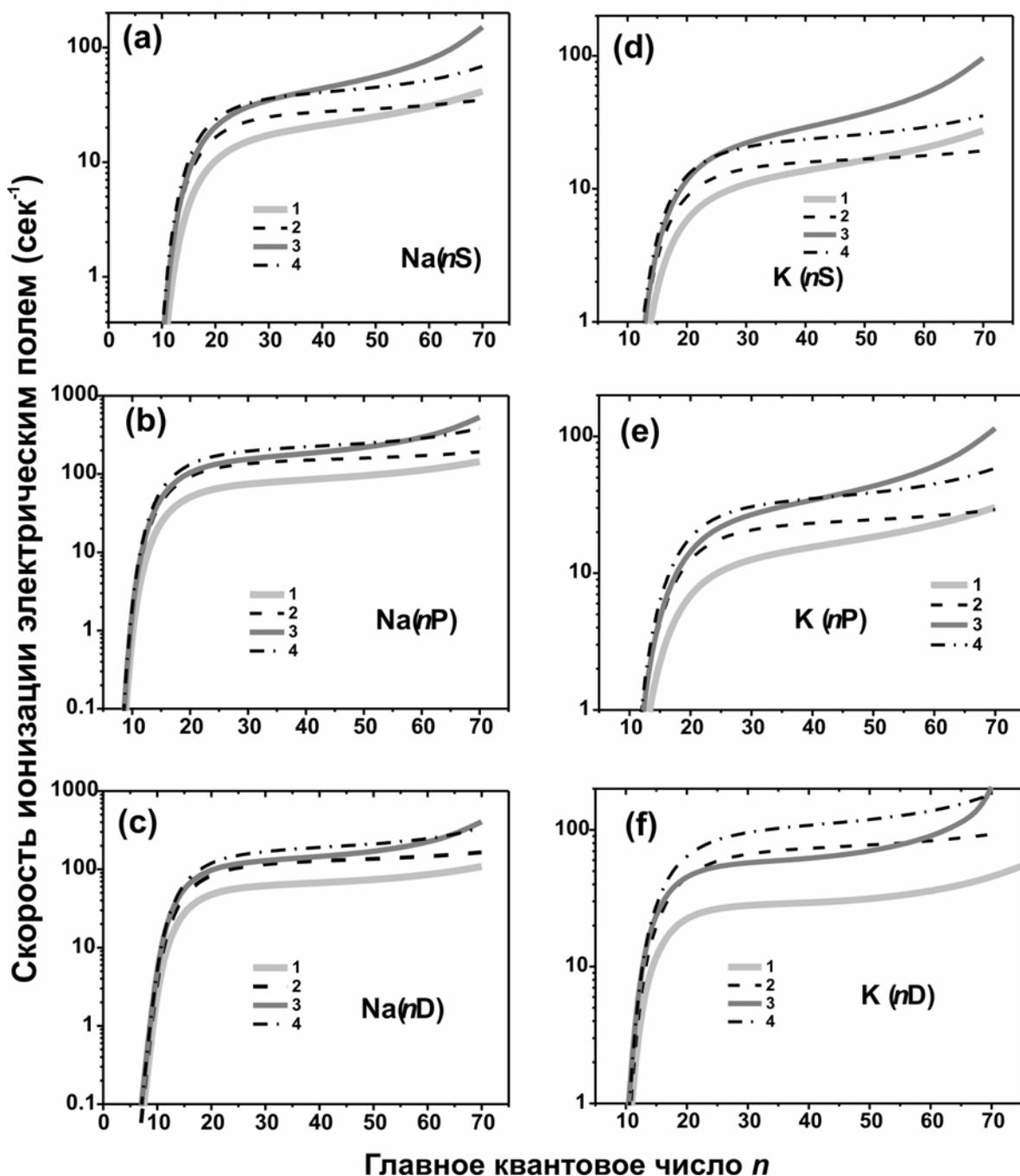


Рис. 2.11. Скорость ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов натрия и nS (d), nP (e), и nD (f) атомов калия электрическим полем при температуре $T=300$ К. Кривые (1), (3) - результаты численного расчета в модели Дьячкова и Панкраторова для амплитуды электрических импульсов 5 и 10 В/см соответственно. Кривые (2), (4) – аналитические результаты в модели ГДК, полученные с использованием формулы (2.30) для амплитуды электрических импульсов 5 и 10 В/см соответственно.

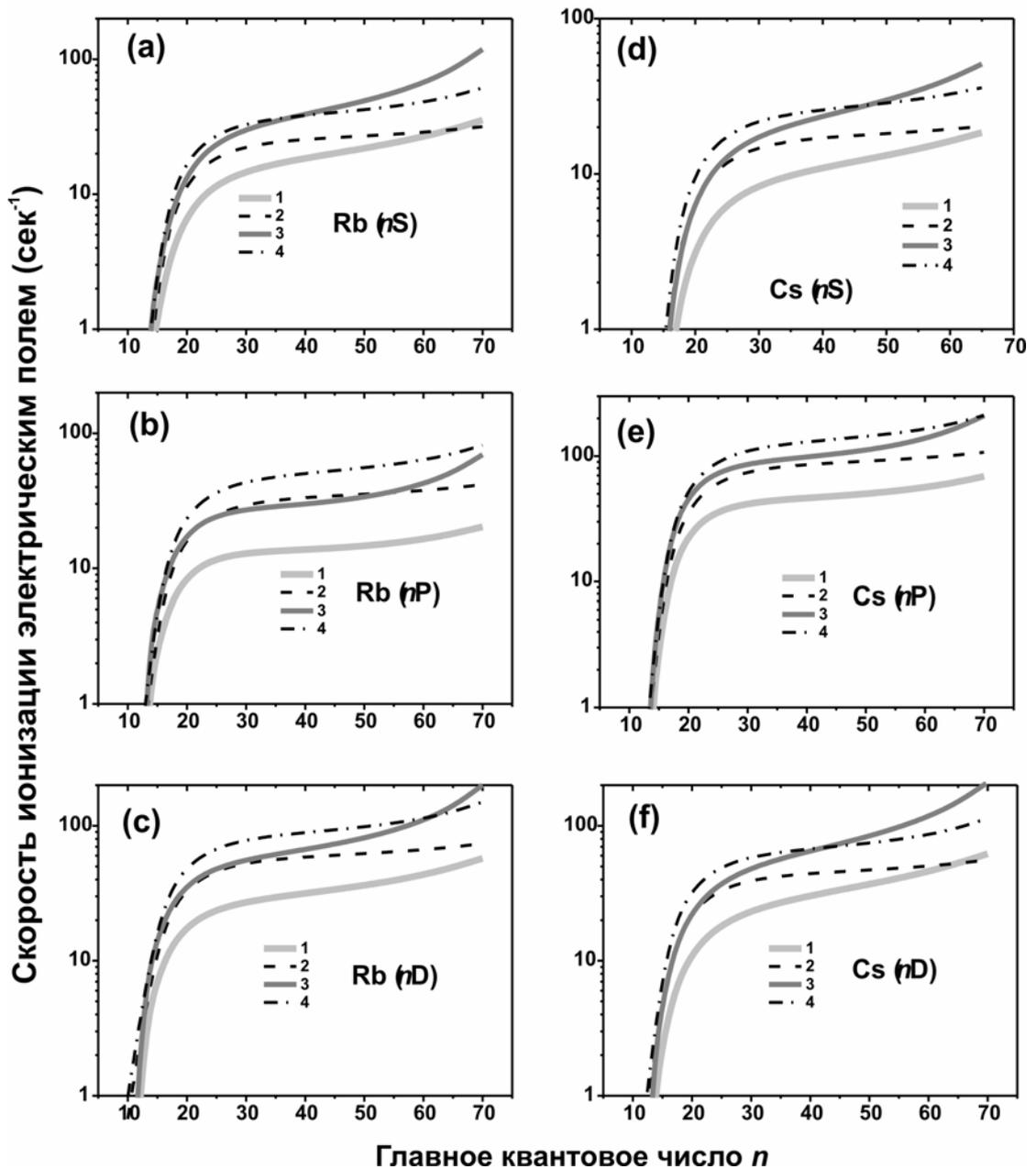


Рис. 2.12. Скорость ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов рубидия и nS (d), nP (e), и nD (f) атомов цезия электрическим полем при температуре $T=300$ К. Кривые (1), (3) - результаты численного расчета в модели Дьячкова и Панкратова для амплитуды электрических импульсов 5 и 10 В/см соответственно. Кривые (2), (4) – аналитические результаты в модели ГДК, полученные с использованием формулы (2.30) для амплитуды электрических импульсов 5 и 10 В/см соответственно.

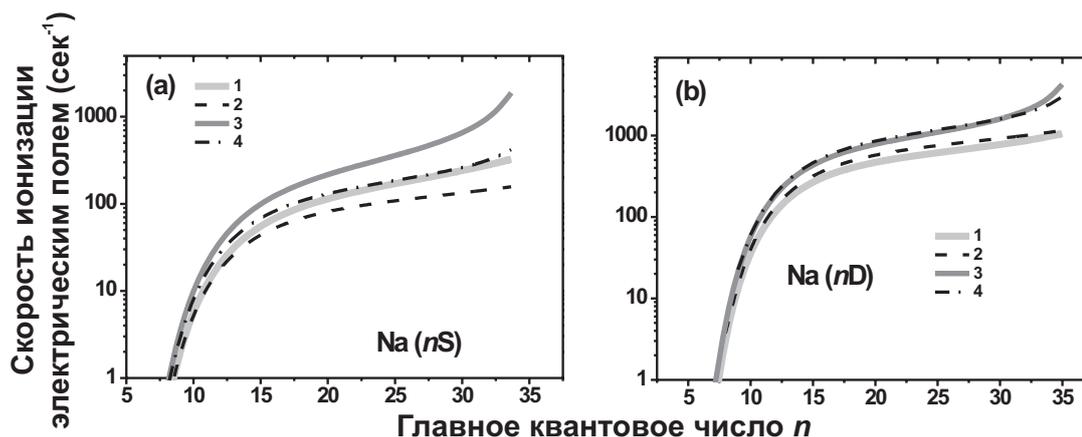


Рис. 2.13. Скорость ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов натрия электрическим полем при температуре $T=300$ К. Кривые (1), (3) - результаты численного расчета в модели Дьячкова и Панкратова для амплитуды электрических импульсов 100 и 200 В/см соответственно. Кривые (2), (4) – аналитические результаты в модели ГДК, полученные с использованием формулы (2.30) для амплитуды электрических импульсов 100 и 200 В/см соответственно.

Возможность получить удовлетворительное согласие между численными и аналитическими результатами на Рис. 2.10-2.13 показывает, что с использованием коэффициентов масштабирования A_L аналитическая формула (2.30) пригодна для оценок скорости индуцированной тепловым излучением полевой ионизации ридберговских атомов.

2.8. Расчеты эффективной скорости ионизации ридберговских атомов тепловым излучением

Временная зависимость заселенности ридберговских состояний в поле теплового излучения рассматривалась в Главе 1. Теперь рассмотрим влияние перераспределения заселенности между ридберговскими состояниями на полную скорость ионизации. Временная диаграмма нашего эксперимента, описанного в Главе 3 (Рис. 3.2) является типичной для экспериментальных задач, требующих импульсного лазерного возбуждения ридберговских атомов и детектирования ионов. Первый электрический импульс следует немедленно за лазерным возбуждением и извлекает атомные A^+ и молекулярные A_2^+ ионы, образовавшиеся при ионизации атомов и молекул лазерами, а также в результате

фотоассоциативных процессов с последующей ионизацией [98],[99]. Затем атомы взаимодействуют с тепловым излучением в течение временного интервала (t_1, t_2) . Второй электрический импульс извлекает ионы, образовавшиеся в результате ионизации тепловым излучением, а также столкновительной ионизации.

Рассмотрим вновь простой случай, когда первоначально возбуждено одно nS состояние. Число атомарных ионов, образовавшихся при ионизации атомов, находившихся в первоначально возбужденном nS состоянии, дается выражением:

$$\frac{dN_{A^+}(t)}{dt} = W_{BBR}N_{nS}(t), \quad (2.31)$$

где $N_{nS}(t) = N_{nS}(t=0)\exp(-t/\tau_{eff}^{nS})$ [см. Уравнение (1.38)] - полное число ридберговских атомов, остающихся в nS состоянии в зависимости от времени t , τ_{eff}^{nS} - эффективное время жизни nS состояний при данной температуре. Регистрируемые ионы образуются в течение временного интервала (t_1, t_2) . Полное число ионов, образовавшихся в течение этого времени в результате прямой фотоионизации атомов в nS состояниях, может быть найдено интегрированием уравнения (2.26) в пределах (t_1, t_2) .

$$N_{A^+} = N_{nS}(t=0)W_{BBR}\tau_{eff}^{nS}[\exp(-t_1/\tau_{eff}^{nS}) - \exp(-t_2/\tau_{eff}^{nS})]. \quad (2.32)$$

Полученный результат может быть выражен через эффективное время взаимодействия t_{eff}^{nS} :

$$N_{A^+} = N_{nS}(t=0)W_{BBR}t_{eff}^{nS}, \quad t_{eff}^{nS} = \tau_{eff}^{nS}[\exp(-t_1/\tau_{eff}^{nS}) - \exp(-t_2/\tau_{eff}^{nS})]. \quad (2.33)$$

Тепловое излучение заселяет соседние состояния $n'P$. Временная зависимость заселенности $n'P$ состояний найдена из скоростных уравнений:

$$\frac{dN_{n'P}(t)}{dt} = [W(nS \rightarrow n'P) + A(nS \rightarrow n'P)]N_{nS}(t) - N_{n'P}(t)/\tau_{eff}^{n'P}, \quad (2.34)$$

где $A(nS \rightarrow n'P)$ и $W(nS \rightarrow n'P)$ - скорости заселения состояния $n'P$ в результате спонтанных переходов (вниз по отношению к первоначально возбужденному nS состоянию) и индуцированных тепловым излучением переходов (вниз и вверх по

отношению к первоначально возбужденному nS состоянию). $\tau_{eff}^{n'P}$ - эффективное время жизни атомов в $n'P$ состоянии.

Комбинируя уравнение (2.34) с уравнениями (2.32) и (2.31), получаем:

$$W_{BBR}^{mix}(nS) = \sum_{n'} \frac{[W(nS \rightarrow n'P) + A(nS \rightarrow n'P)]W_{BBR}(n'P)}{1/\tau_{eff}^{n'P} - 1/\tau_{eff}^{nS}} \left(1 - \frac{\tau_{eff}^{nS}}{\tau_{eff}^{n'P}}\right), \quad (2.35)$$

Основной вклад в сумму в уравнении (2.35) связан с состояниями $n'P$ с $n' = n \pm 1$ (см. Рис. 2.6). Эффективная скорость тепловой ионизации для nP и nD состояний определяется аналогично, с учетом вклада, связанного с заселением $n'(L+1)$ и $n'(L-1)$ состояний.

Скорость W_{SFI}^{mix} описывает процесс второго порядка – индуцированные тепловым излучением переходы из соседних $n'L'$ состояний в высоколежащие состояния $n''L''$ с $n'' > n_c$ [Рис. 2.6 (а)] с последующей ионизацией вытягивающими электрическими импульсами. Эта скорость может быть рассчитана с использованием уравнения (2.35), в котором W_{BBR} заменено на W_{SFI} , и происходит суммирование по состояниям с $n' < n_c$.

На Рис. 2.14-2.16 приведены результаты расчетов полных скоростей тепловой ионизации ридберговских атомов тепловым излучением W_{BBR}^{tot} ридберговских nS , nP и nD состояний щелочных металлов. Расчеты проведены в широком диапазоне главных квантовых чисел ($n=8-65$) и температур ($T = 77, 300, 600$ К), при амплитудах электрического поля 5 (сплошные линии) и 10 В/см (пунктирные линии). Для сравнения на рисунках приведены скорости прямой фотоионизации тепловым излучением (штрих-пунктирные линии).

Интересной особенностью обладают результаты расчетов полной скорости ионизации ридберговских nS состояний лития, приведенные на Рис. 2.14(а). Учет процессов перемешивания приводит к значительному увеличению измеряемой скорости ионизации. Поскольку скорости фотоионизации ридберговских nP состояний лития на два порядка превышают скорости фотоионизации ридберговских nS состояний, основной вклад в полный ионизационный сигнал связан с заселением $n'P$ состояний, соседних с первоначально возбужденным. Видно, что учет полевой ионизации высоколежащих состояний и фотоионизации соседних ридберговских состояний тепловым излучением существенно влияет

как на абсолютные значения скорости ионизации, так и на форму зависимости от главного квантового числа.

Значения W_{BBR}^{tot} зависят от временного интервала, в течение которого происходит накопление ионов для регистрации. Для натрия и рубидия вычисления были проведены для $t_1=0.3$ мкс и $t_2=2.1$ мкс, что соответствует условиям эксперимента, описанного в Главе 3. Для лития, цезия и калия в расчетах использованы значения $t_1=0$ мкс и $t_2=2$ мкс, что, впрочем, не приводит к существенному изменению результатов и может быть важно только для низколежащих состояний с малыми временами жизни. Значения скорости ионизации W_{BBR}^{tot} ридберговских атомов цезия от главного квантового числа n для различных интервалов $\Delta t = t_2 - t_1$ приведены на Рис. 2.17. Для $\Delta t = 2$ мкс и $\Delta t = 5$ мкс существенных различий не обнаружено.

Расчеты эффективных времен жизни τ_{eff}^{nL} ридберговских nL состояний щелочных металлов были также проведены с использованием метода Дьячкова и Панкратова. Полученные нами результаты, опубликованные в работе [95], являются первым систематическим исследованием процесса тепловой фотоионизации с учетом перемешивания ридберговских состояний тепловым излучением, и могут быть полезны при анализе экспериментальных условий, в которых происходит формирование ультрахолодной плазмы [9],[12].

Показано, что для определения скорости ионизации ридберговских атомов тепловым излучением в реальных экспериментальных условиях необходимо учитывать вклад ионизации заселенных тепловым излучением соседних и высоколежащих ридберговских состояний в регистрируемый ионизационный сигнал.

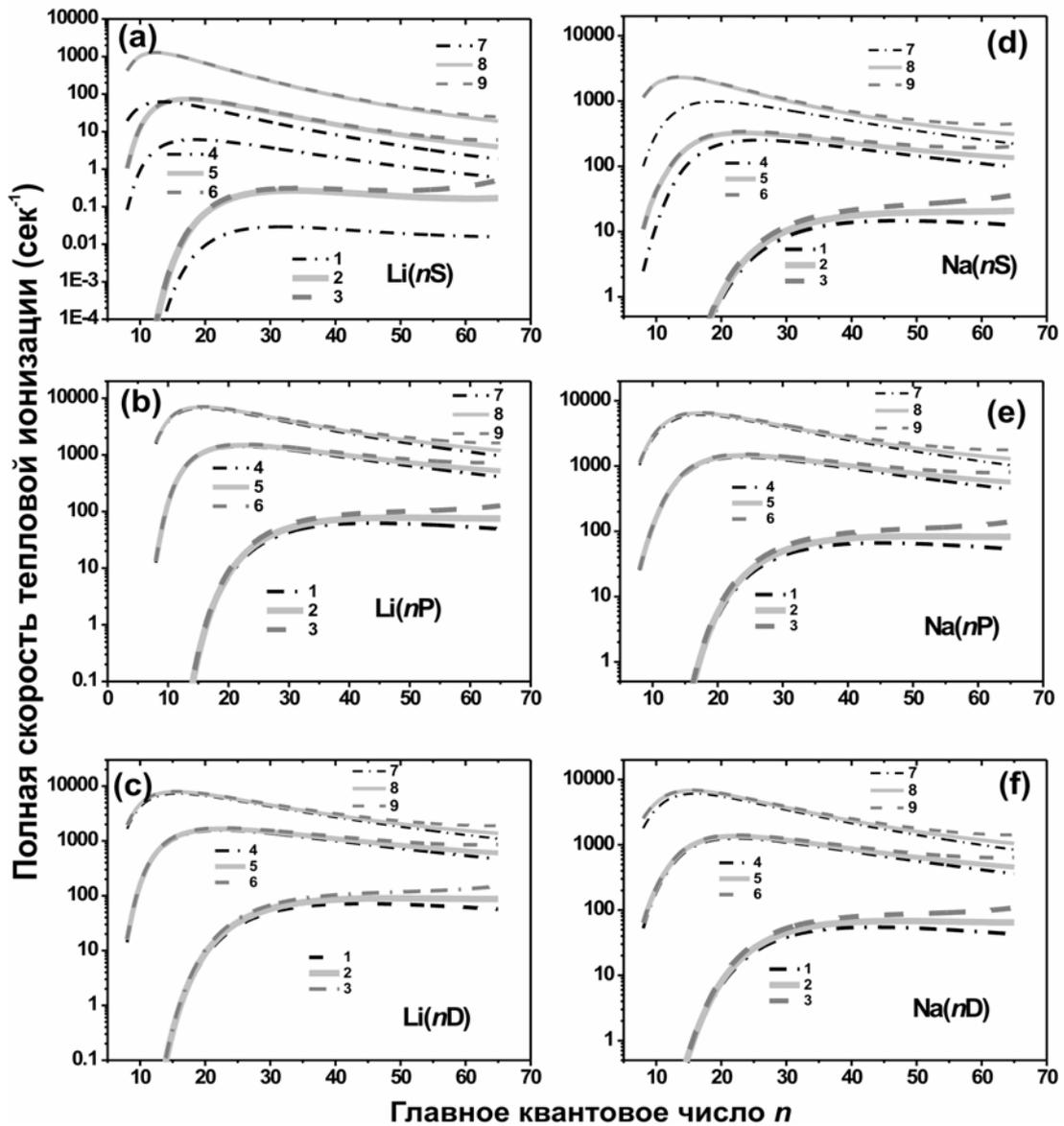


Рис. 2.14. Полная скорость ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов лития и nS (d), nP (e), и nD (f) атомов натрия тепловым излучением. Кривые (1), (4), (7) – скорость прямой фотоионизации тепловым излучением при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (2), (5), (8) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 5 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (3), (6), (9) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 10 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно.

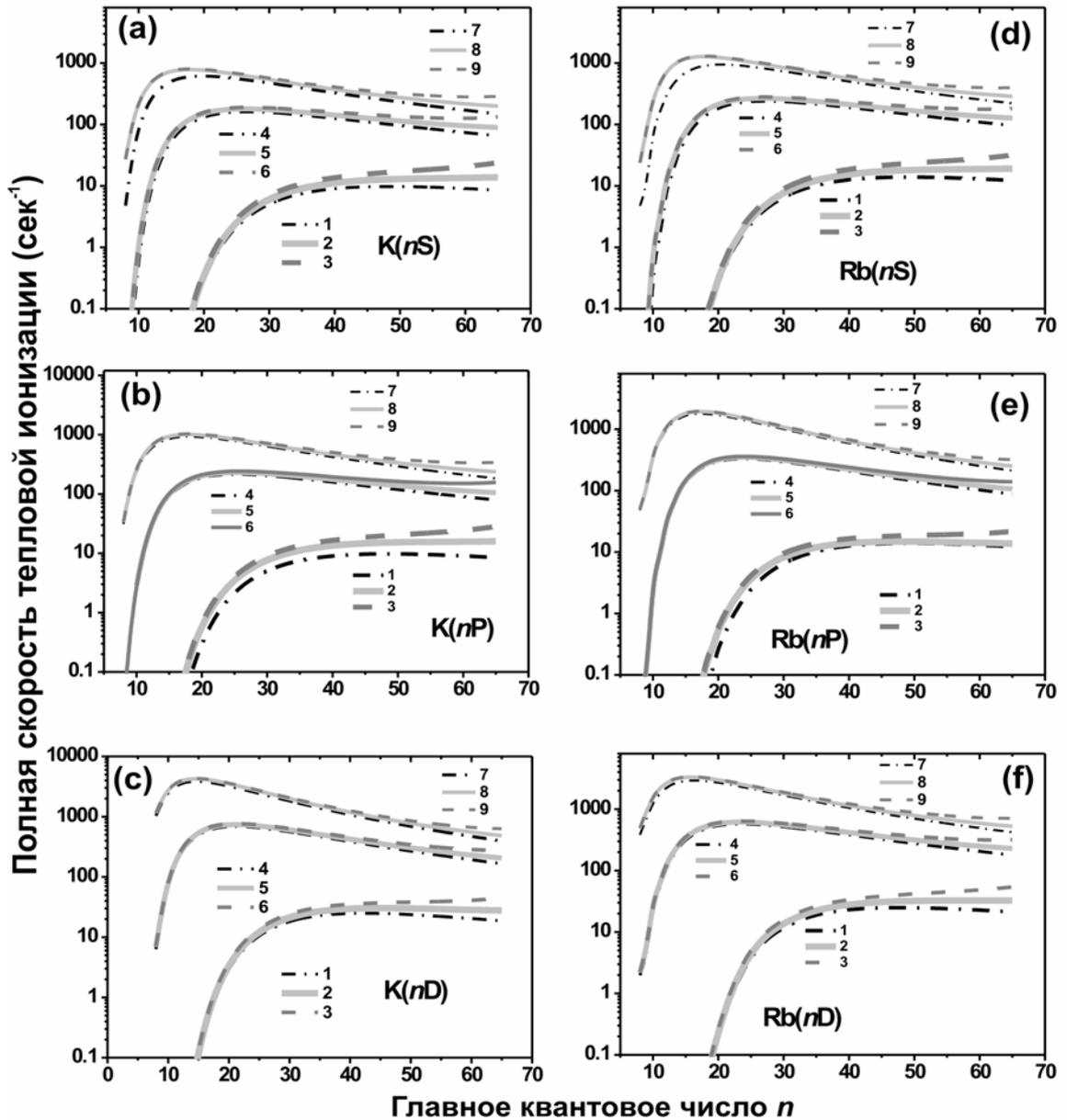


Рис. 2.15. Полная скорость ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов калия и nS (d), nP (e), и nD (f) атомов рубидия тепловым излучением. Кривые (1), (4), (7) – скорость прямой фотоионизации тепловым излучением при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (2), (5), (8) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 5 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (3), (6), (9) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 10 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно.

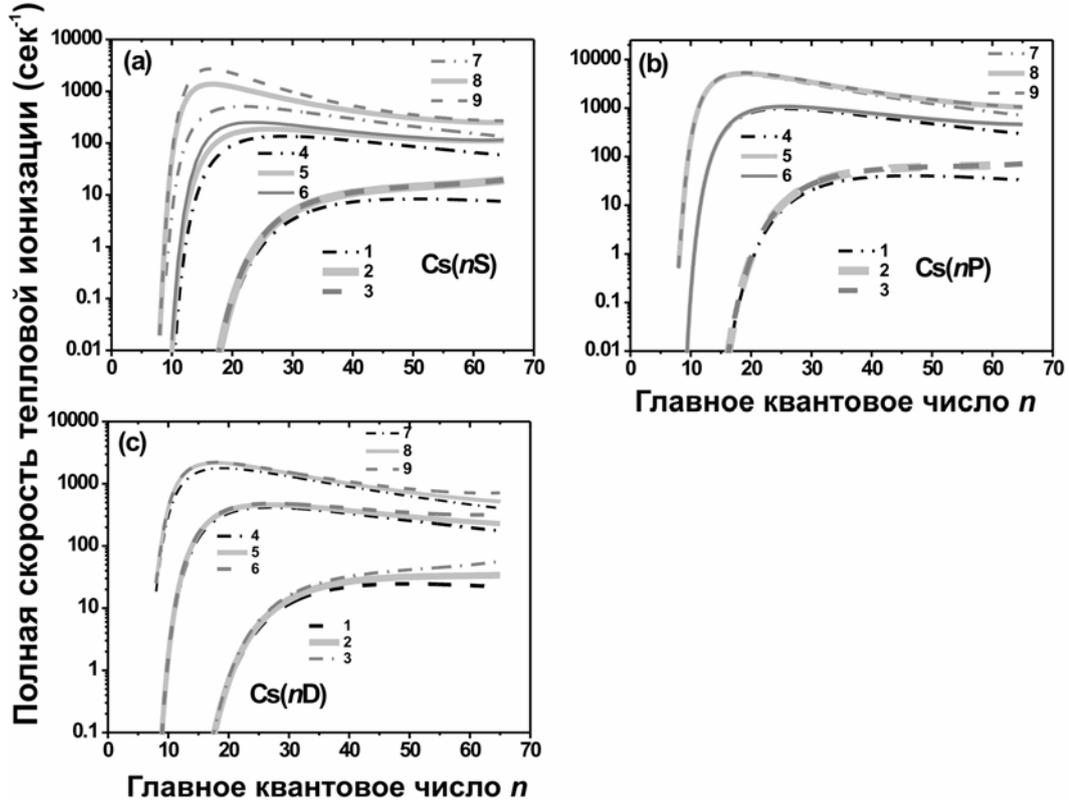


Рис. 2.16. Полная скорость ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов цезия тепловым излучением. Кривые (1), (4), (7) – скорость прямой фотоионизации тепловым излучением при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (2), (5), (8) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 5 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (3), (6), (9) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 10 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно.

2.9. Эффективные константы скорости ассоциативной ионизации в поле теплового излучения

Эффективная скорость ассоциативной ионизации $k_{AI}^{eff} = k_{AI} + k_{AI}^{mix}$ рассчитывается аналогично полной скорости тепловой фотоионизации W_{BBR}^{tot} .

Для nS состояния:

$$k_{AI}^{mix}(nS) = \sum_{n'} \frac{[W(nS \rightarrow n'P) + A(nS \rightarrow n'P)]k_{AI}(n'P)}{\Gamma_{eff}^{n'P} - \Gamma_{eff}^{nS}} \left(1 - \frac{t_S^{eff}}{t_P^{eff}}\right). \quad (2.36)$$

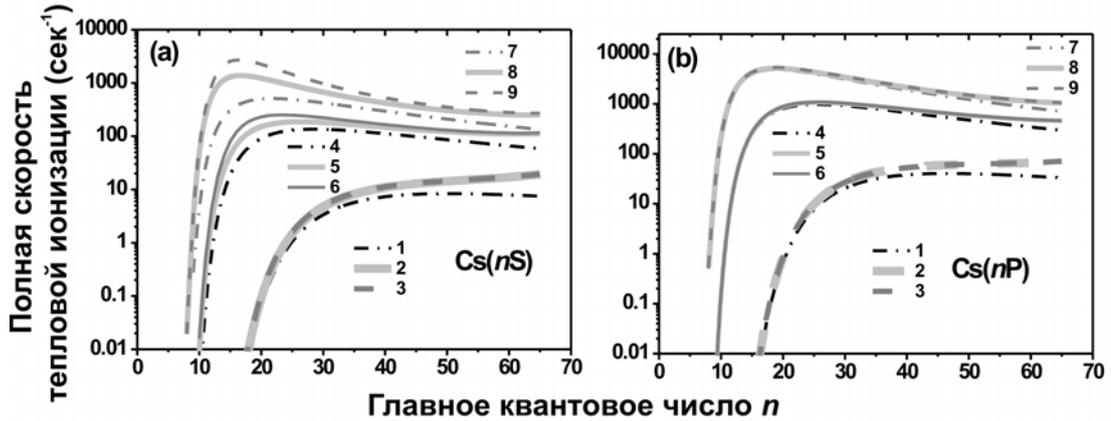


Рис. 2.17. Зависимость полной скорости ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов цезия тепловым излучением от главного квантового числа n . Кривые (1), (4), (7) – скорость прямой фотоионизации тепловым излучением при температурах $T=77$, 300 и 600 К соответственно. Кривые (2), (5), (8) – полная скорость ионизации тепловым излучением при интервале накопления ионов $\Delta t = 2$ мкс при температурах $T=77$, 300 и 600 К соответственно. Кривые (3), (6), (9) – полная скорость ионизации тепловым излучением при интервале накопления ионов $\Delta t = 5$ мкс и температурах $T=77$, 300 и 600 К соответственно. Амплитуда вытягивающих электрических импульсов 10 В/см.

Аналогично (2.33) выражается число молекулярных ионов, образовавшихся за время взаимодействия:

$$Na_2^+ = k_{AI}^{eff}(nS)N_{nS}(0)n_{3S}t_S^{eff}. \quad (2.37)$$

Поправки к скорости процессов ионизации, связанные с перемешиванием состояний тепловым излучением, дают наиболее существенный вклад для nS состояний. Это связано в первую очередь с тем, что неводородоподобные nS состояния атомов натрия имеют аномально низкие сечения фотоионизации, так что даже частичное перемешивание с nP состояниями приводит к появлению значительного вклада в наблюдаемый ионизационный сигнал.

В диффузионной модели столкновительной ионизации учет перемешивания приводит к еще более существенным поправкам для низких состояний, чем в модели DSMJ. Это связано с тем, что в диффузионной модели константы скорости ионизации низких nP состояний оказываются значительно больше, чем в модели DSMJ. Например, для скорости ионизации $6P$ состояния натрия в газовой ячейке при температуре $T=635$ К в DSMJ-модели $k_{AI} = 2.34 \times 10^{10} \text{ см}^{-3} \text{ сек}^{-1}$, а в диффузионной модели $k_{AI} = 9.61 \times 10^{10} \text{ см}^{-3} \text{ сек}^{-1}$. В

результате, в диффузионной модели расчетный вклад низких возбужденных состояний, заселяемых при спонтанном распаде ридберговских атомов оказывается существенно большим, чем в модели DSMJ.

Таким образом, анализ экспериментальных данных при измерении констант скорости столкновительной ионизации требует пристального внимания к процессам перемешивания. В экспериментах [55],[56] такой анализ был затруднен, так как использование охлажденных экранов для подавления связанных с тепловым излучением процессов делает неопределенной эффективную температуру в области взаимодействия в связи с прониканием тепловых фотонов через окна для ввода лазерного излучения и систему регистрации ионов. Это не позволяет провести количественный теоретический анализ скорости процессов перемешивания и тепловой ионизации. В связи с этим, в наших экспериментах мы отказались от использования установленного в системе криостата, так что эффективная температура окружения была приблизительно равной $T=300$ К. Оценки вклада тепловых фотонов от источника атомного пучка ($T=635$ К), попадающих в область возбуждения ридберговского атома через диафрагму диаметром 1.5 мм, используемую для коллимации атомного пучка показали, что этим вкладом можно пренебречь.

Полученные в данном разделе выражения (2.36) и (2.37) использовались при обработке экспериментальных данных для расчета скорости столкновительной и тепловой ионизации по измеренным в эксперименте ионизационным сигналам.

Проведенное нами подробное рассмотрение процессов столкновительной ионизации ридберговских атомов щелочных металлов показало, что существует целый ряд не рассмотренных ранее эффектов, оказывающих большое влияние на скорость ионизации, измеряемую в экспериментах. К ним относятся различие распределений по скоростям сталкивающихся атомов в газовой ячейке, одиночном атомном пучке и скрещенных атомных пучках, закручивание траекторий сталкивающихся атомов в притягивающем потенциале, L -перемешивание, предшествующее ионизации. Учет перечисленных выше эффектов позволяет нам говорить о *модифицированной модели DSMJ*. Учет, помимо вышеперечисленного, стохастической диффузии ридберговского

электрона по энергетическому спектру, завершает разработку *диффузионной модели* столкновительной ионизации.

Особое внимание нами было уделено влиянию перераспределения заселенности ридберговских состояний под действием фонового теплового излучения. Показано, что как при измерении констант скорости ассоциативной ионизации, так и при измерении скорости фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением необходимо учитывать вклад от заселяемых им соседних и высоколежащих ридберговских состояний. Систематический количественный анализ данного вклада проведен впервые.

Полученные нами аналитические формулы для оценки скорости ионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением находятся в хорошем согласии с более точными численными расчетами с использованием полуклассических формул Дьячкова и Панкратова [29], а также с расчетами, выполненными методом модельного потенциала [84] для натрия. Представленные нами результаты расчетов скорости ионизации высоколежащих ридберговских состояний тепловым излучением представляют интерес для современных исследований ультрахолодной плазмы [119].

Глава 3. Методика экспериментального измерения скорости ассоциативной ионизации и тепловой фотоионизации ридберговских атомов натрия

В этой главе рассматриваются методы экспериментального измерения констант скорости ассоциативной ионизации и скорости ионизации тепловым излучением ридберговских атомов натрия. Показано, что разработанная нами методика измерения констант скорости ассоциативной ионизации с использованием сигнала ионизации ридберговских атомов тепловым излучением в качестве опорного позволяет существенно увеличить точность измерения относительных зависимостей констант скорости от главного квантового числа для ридберговских состояний с низкими $n \sim 10-20$. Проведен детальный анализ условий эксперимента, включая измерение распределения по скоростям в атомарном пучке.

3.1. Схема экспериментальной установки

Эксперименты по измерению скорости тепловой и столкновительной ионизации проводились в скрещенных эффузионных пучках атомов натрия в вакуумной камере (давление 5×10^{-7} торр). Схема экспериментальной установки приведена на Рис. 3.1. Атомные пучки формировались выходными отверстиями источников диаметром $D_1=2$ мм, расположенными на расстоянии 98 мм от области взаимодействия с лазерным излучением, и диафрагмой ($D_2=1.5$ мм), находившейся на расстоянии 40 мм от области взаимодействия. Эффективный диаметр атомных пучков в области взаимодействия был приблизительно 4 мм. Один из пучков мог быть перекрыт механическим затвором.

Атомы натрия возбуждались в ридберговские состояния по двухступенчатой схеме $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{3/2} \rightarrow nS_{1/2}$, $nD_{3/2,5/2}$ излучениями двух импульсных лазеров с частотой повторения импульсов 5 кГц. На первой ступени использовался лазер на растворе красителя «Родамин 6Ж» с накачкой второй гармоникой Nd:YAG лазера (532 нм). Длина волны излучения лазера на красителе была 589 нм, ширина линии 100 ГГц, длительность импульса 50 нс и

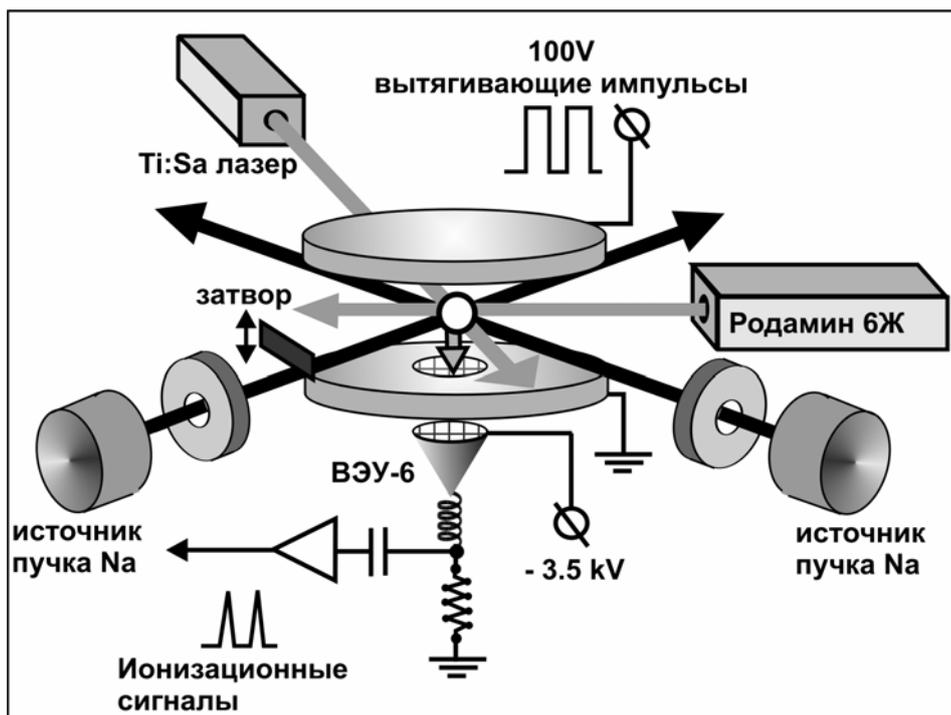


Рис. 3.1. Схема экспериментальной установки.

средняя мощность 50 мВт. На входе в камеру излучение лазера ограничивалось диафрагмой диаметром 2 мм, чтобы возбуждение происходило в центральной области атомного пучка. Переход $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{3/2}$ в этих условиях был в насыщении.

Для второй ступени возбуждения применялась вторая гармоника перестраиваемого Ti:Sapphire лазера с накачкой второй гармоникой Nd:YAG лазера. Длина волны излучения лазера второй ступени перестраивалась в диапазоне 410-430 нм, средняя мощность второй гармоники излучения составляла 10 мВт, ширина линии 10 ГГц и длительность импульса 50 нс. В области взаимодействия лазерные пучки пересекались под углом 90° , при этом угол пересечения каждого из лазерных лучей с атомным пучком был 45° .

Область взаимодействия находилась между двумя пластинами из нержавеющей стали диаметром 70 мм, расстояние между которыми составляло 10 мм (Рис. 3.1). К пластинам прикладывалось напряжение (импульсы 100 В длительностью 250 нс). Нижняя (заземленная) пластина имела отверстие диаметром 6 мм, закрытое металлической сеткой с пропусканием 70%. Образовавшиеся в области взаимодействия ионы ускорялись вытягивающим

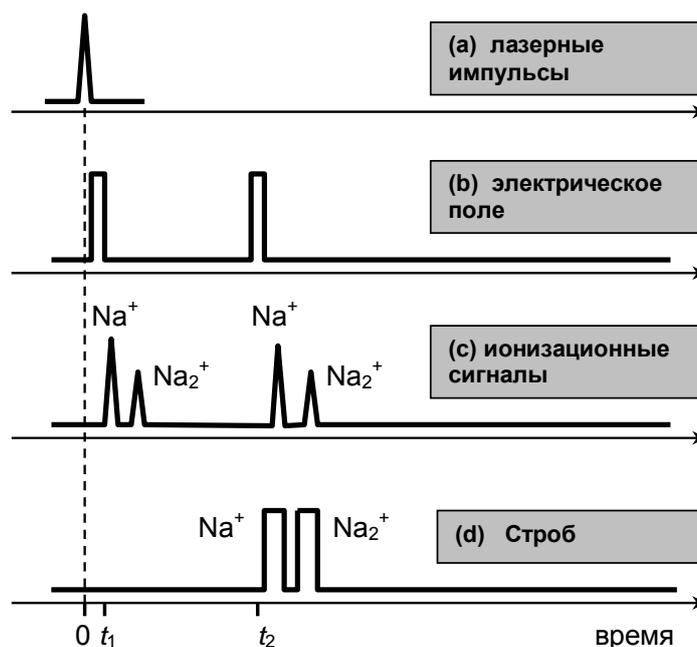


Рис. 3.2. Временная диаграмма эксперимента.

электрическим полем, через сетку попадали во вторичный электронный умножитель ВЭУ-6, дополнительно ускоряясь напряжением 3.5 кВ.

Измерение сигналов с выхода ВЭУ-6 проводилось в режиме счета импульсов. Интенсивность лазеров обеих ступеней ослаблялась в 5-10 раз таким образом, чтобы после каждого лазерного импульса образовывалось в среднем меньше одного иона. В режиме счета импульсов регистрировалась частота появления ионов, которая была пропорциональна полному числу ионов, образовавшихся за время измерения (10 с, то есть 50000 лазерных импульсов).

Все измерения проводились при температуре стенок камеры и металлических пластин приблизительно равной $T=300$ К, так как охлаждение установленного в системе криостата сделало бы неопределенной эффективную температуру теплового излучения из-за влияния стенок камеры, находящихся при комнатной температуре.

На Рис. 3.2 изображена временная диаграмма эксперимента. После лазерного импульса, возбуждавшего ридберговские состояния в момент времени $t_0=0$, к металлическим пластинам прикладывались два одинаковых импульса высокого напряжения длительностью 250 нс, создававшие между пластинами электрическое поле амплитудой 100 В/см.

Первый электрический импульс (в момент времени $t_1=0.3$ мкс) вытягивал из области взаимодействия ионы, образовавшиеся при фотоионизации атомов Na и молекул Na_2 в момент лазерного импульса ($t=0$). Причины их возникновения будут обсуждаться далее.

После окончания первого электрического импульса в области взаимодействия происходит накопление ионов в результате фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением, а также ионизации ридберговских атомов в столкновениях. Эти ионы вытягивались вторым электрическим импульсом в момент $t_2=2.1$ мкс.

Ускоренные вытягивающим полем, ионы попадали во входное отверстие ВЭУ-6. После каждого электрического импульса мы наблюдали два сигнала с интервалом 0.6 мкс, которые соответствовали атомарным Na^+ и молекулярным Na_2^+ ионам. Задержка между появлением сигналов была связана с различным временем пролета из области возбуждения до ВЭУ-6, что определялось разницей в массах ионов, и это позволяло разделить сигналы от ионов Na^+ и Na_2^+ времяпролетным методом.

3.2. Определение концентрации атомов в пучке

Точное определение концентрации n_{3S} атомов в основном состоянии представляет определенную сложность. Ранее мы использовали значения n_{3S} , вычисленные с учетом геометрических параметров экспериментальной установки и формулы Несмеянова [120] для давления насыщенных паров щелочных металлов. Впоследствии мы выяснили, что формула Браунинга и Поттера [31], применение которой приводит к двукратному увеличению расчетной концентрации при той же температуре по сравнению с формулой Несмеянова, более надежна:

$$\ln(P_0) = 11.9463 - 12633.73/T - 0.4672/T. \quad (3.1)$$

Здесь P_0 – давление в МПа, а T -температура в градусах Кельвина. Формула Браунинга и Поттера основывается на тщательном анализе имевшихся экспериментальных данных, и находится в хорошем согласии с другими, более поздними результатами. Концентрация атомов в источнике пучка определяется давлением насыщенных паров:

$$n_{oven} = \frac{P_0}{kT}. \quad (3.2)$$

Концентрация атомов в области взаимодействия с лазерным излучением на расстоянии L_1 от отверстия источника выражается через концентрацию атомов в источнике пучка и геометрические параметры эффузионного пучка:

$$n_{3S} = n_{oven} \frac{S_1}{4\pi L_1^2}. \quad (3.3)$$

Здесь $S_1 = \pi D_1^2/4$ – площадь выходного отверстия диаметром $D_1 = 1.5$ мм в источнике. Температура измерялась калиброванной термопарой (хромель-алюмель) с точностью ± 2 К. Концентрация атомов в основном состоянии в пучке при $T = 635$ К по расчетам составила $n_{3S} = (5 \pm 1) \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$.

Для контроля стабильности концентрации атомов в пучке и учета ее изменения в течение эксперимента ионизационные сигналы нормировались на сигнал резонансной флуоресценции на переходе $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{3/2}$, возбуждаемом лазером первой ступени. Сигнал флуоресценции измерялся фотоумножителем, который был установлен так, что регистрировались фотоны только из области возбуждения атомов лазерным излучением. Выходной сигнал ФЭУ интегрировался в течение 1 секунды и измерялся постоянно.

Сигнал флуоресценции S_f (измеренный в милливольтгах) определяется средним числом N_{3P} атомов в состоянии $3P_{3/2}$ в объеме возбуждения V , этот сигнал можно выразить через концентрацию атомов в $3S$ состоянии:

$$S_f \sim N_{3P} = \frac{1}{2} n_{3S} V \frac{P_y}{P_y + P_s}. \quad (3.4)$$

Здесь P_y – средняя мощность лазера первой ступени в возбуждаемом объеме (в мВт), P_s – мощность излучения, при которой происходит насыщение перехода $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{3/2}$ (в мВт), V – объем, в котором происходит возбуждение атомов. Значение P_s определяется экспериментально по зависимости сигнала флуоресценции от мощности лазера (Рис. 3.3).

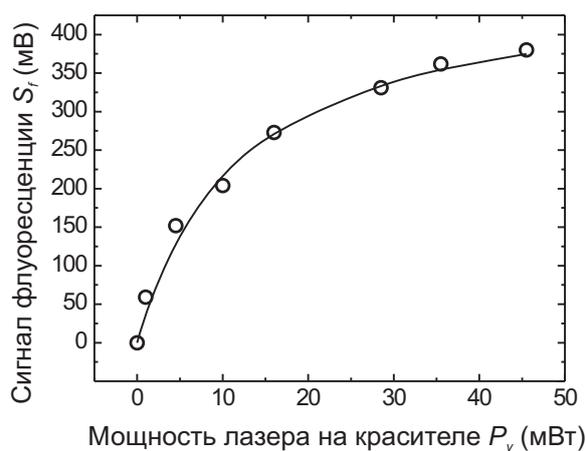


Рис. 3.3. Зависимость сигнала флуоресценции на переходе $3P_{3/2} \rightarrow 3S_{1/2}$ от мощности лазера первой ступени.

В наших условиях эксперимента $P_s \approx 10$ мВт, $P_y \approx 30$ мВт. Следовательно, переход $3P_{3/2} \rightarrow 3S_{1/2}$ находился в насыщении (Рис. 3.3), и флуктуации сигнала флуоресценции были связаны в первую очередь с изменением концентрации атомов в основном состоянии n_{3S} и не были связаны с изменением мощности излучения лазера первой ступени. При температуре источника пучка $T=635$ К и расчетной концентрации $n_{3S}=5 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$ измеренный сигнал флуоресценции составлял $S_f \approx 270$ мВ при $P_y \approx 17$ мВт.

Хотя объем возбуждения V , определяемый размером области пересечения возбуждающих лазерных пучков, не был известен точно, он был постоянным во всех измерениях. С учетом расчетных значений концентрации при данной температуре, вычисленных с использованием уравнений (3.1) - (3.3), удастся получить формулу для нормирования измеряемых сигналов на концентрацию атомов в основном состоянии n_{3S} :

$$n_{3S} = 0.0091 \cdot S_f \cdot \left(1 + \frac{P_s}{P_y} \right) \times 10^{10} \text{ см}^{-3}. \quad (3.5)$$

3.3. Атомарные и молекулярные ионизационные сигналы

Сигналы, следующие непосредственно за лазерным возбуждением

В первую очередь, мы рассмотрели атомарные Na^+ и молекулярные Na_2^+ ионизационные сигналы, регистрируемые вслед за первым вытягивающим электрическим импульсом. Эти сигналы постоянно присутствовали в эксперименте и были изучены в различных условиях.

При облучении атомного пучка только лазером первой ступени (Родамин 6Ж, $\lambda = 589$ нм), ионизационные сигналы наблюдались даже при отстройке частоты лазерного излучения от резонанса на переходе $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{3/2}$. Увеличение интенсивности излучения приводило к существенному росту атомарного сигнала Na^+ , в то время как молекулярный сигнал Na_2^+ возрастал слабо. Хотя исследование механизма формирования ионов под действием возбуждающего лазерного излучения не входит в задачу данной работы, нами были рассмотрены некоторые причины их возникновения. Одна из них – это трехфотонная ионизация атомов натрия в основном состоянии $3S$. Оценки вероятности этого процесса в условиях нашего эксперимента показали, что его вклад незначителен. Другая причина связана с многофотонными процессами с участием димеров Na_2 . Димеры присутствуют в эффузионном пучке в количестве порядка $\sim 1\%$ [99]. Диссоциативная ионизация Na_2 тремя или более лазерными фотонами приводит к образованию атомарных ионов Na^+ , в то время как многофотонный характер процесса приводит к сильной зависимости ионного сигнала от лазерной интенсивности, что согласуется с нашими экспериментальными наблюдениями. Этот механизм также согласуется с тем, что интенсивность формирования атомарных ионов Na^+ не зависит от того, настроен ли лазер на резонанс для перехода $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{3/2}$ в атомах натрия.

Третья причина – ассоциативная и фотоассоциативная ионизация атомов в первом возбужденном состоянии $3P$. Эти процессы могут приводить к образованию молекулярных ионов Na_2^+ . Ассоциативная ионизация в столкновениях $\text{Na}(3P_{3/2}) + \text{Na}(3P_{3/2})$ была исследована в целом ряде работ [4],[5]. Хотя эти процессы имеют эндотермический характер с порогом 50 мЭв, энергии столкновений атомов в пучке достаточны для преодоления этого барьера. Эти процессы требуют поглощения только двух фотонов лазера первой ступени,

поэтому зависимость молекулярного сигнала Na_2^+ от интенсивности лазерного излучения должна быть слабее, чем зависимость для атомарных ионов Na^+ , образующихся в многофотонных процессах. В дополнение, радиационное время жизни $3P_{3/2}$ составляет всего лишь 16 нс, что приводит к тому, что ионизация может происходить только в течение лазерного импульса длительностью 50 нс и немедленно вслед за его окончанием, когда прикладывается первый вытягивающий электрический импульс (Рис. 3.2). Ассоциативная ионизация может объяснить появление молекулярных ионов Na_2^+ , когда лазер настроен на резонанс с атомным переходом $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{3/2}$, но не при отстройке от резонанса. Наблюдаемые нерезонансные молекулярные сигналы Na_2^+ , возможно, связаны с фотоассоциативной ионизацией атомов Na двумя лазерными фотонами [98],[99]. В отличие от ассоциативной ионизации, эти процессы не являются резонансными по отношению к атомному переходу [99].

При облучении атомного пучка только лазером второй ступени ($410 < \lambda < 430$ нм), ионизация не наблюдалась. Однако при облучении пучка излучением обоих лазеров, настроенных на резонансы (то есть возбуждающие ридберговские nS и nD состояния натрия), значительно возрастал атомарный сигнал Na^+ . Это связано с прямой фотоионизацией ридберговских $\text{Na}(nL)$ излучением лазеров обеих ступеней.

В этой работе мы рассматривали ионизацию атомов и молекул натрия лазерными импульсами только по той причине, что сигнал ионизации лазерным излучением является нежелательным высокоинтенсивным шумовым сигналом при измерении скорости ассоциативной ионизации в столкновениях и фотоионизации тепловым излучением. Для исключения этого сигнала мы применяли два вытягивающих электрических импульса, первый из которых удалял из области взаимодействия все ионы, образовавшиеся при ионизации лазерами. Тем не менее, процессы лазерной фотоионизации могут представлять интерес для дальнейших исследований.

Выражение измеряемых сигналов через скорости ионизации.

Измеряемые атомарные Na^+ и молекулярные Na_2^+ ионные сигналы являются результатом ионизации ридберговских атомов, происходящей в области взаимодействия в течение временного интервала $(t_2 - t_1) = 1.8$ мкс между

двумя вытягивающими электрическими импульсами (Рис. 3.2). Этот интервал сравним со временем жизни ридберговских состояний, следовательно, необходимо анализировать временную динамику ионизационного процесса. Главные процессы, ведущие к образованию атомарных ионов Na^+ - это ионизация пеннинговского типа и фотоионизация тепловым излучением. Молекулярные ионы Na_2^+ образуются в результате ассоциативной ионизации. Вкладом столкновений с остаточными газами можно пренебречь. Это было экспериментально проверено варьированием давления остаточных газов в вакуумной камере в диапазоне $5 \times 10^{-7} \leq P \leq 1 \times 10^{-6}$ торр, что не приводило к изменению измеряемых Na^+ и Na_2^+ сигналов более чем на 5%. В таких условиях уравнения, описывающие зависимость числа ионов Na^+ и Na_2^+ , образовавшихся после лазерного возбуждения в момент времени $t=0$, аналогичны (2.31):

$$\begin{cases} \frac{d \text{Na}^+(t)}{dt} = k_{\text{PI}} N_{nL}(t) n_{3S} + W_{\text{BBR}} N_{nL}(t) \\ \frac{d \text{Na}_2^+(t)}{dt} = k_{\text{AI}} N_{nL}(t) n_{3S} \end{cases} \quad (3.6)$$

Здесь $N_{nL}(t)$ – зависящее от времени число ридберговских $\text{Na}(nL)$ атомов в объеме возбуждения, n_{3S} - концентрация атомов в основном состоянии, k_{AI} и k_{PI} – константы скорости ассоциативной ионизации и ионизации пеннинговского типа в столкновениях $\text{Na}(nL)+\text{Na}(3S)$.

Зависимость числа ридберговских атомов от времени $N_{nL}(t) \approx N_{nL}(0) \exp[-t / \tau_{\text{eff}}^{nL}]$ выражается через число первоначально возбужденных атомов $N_{nL}(0)$.

Уменьшение эффективного времени жизни ридберговских состояний в результате столкновительной ионизации пренебрежимо мало при концентрациях атомов в основном состоянии, рассчитанных для условий нашего эксперимента. Расчетная скорость ассоциативной ионизации $k_{\text{AI}} n_{3S}$ не превышает 100 сек^{-1} , что значительно меньше скорости спонтанного распада с характерными значениями $10^5 \sim 10^6 \text{ сек}^{-1}$ для исследуемых нами ридберговских состояний. Скорость ионизации пеннинговского типа PI, $k_{\text{PI}} n_{3S}$ не превышает 10 сек^{-1} для $n \sim 20$, и резко уменьшается для меньших значений n . Сравнивая скорость ионизации пеннинговского типа со скоростью фотоионизации тепловым излучением (см. Рис. 2.9), можно сделать вывод, что тепловое излучение является основным источником атомарных ионов Na^+ , и вкладом ионизации пеннинговского типа

можно пренебречь. Это наблюдение лежит в основе разработанного нами метода измерения констант скорости ассоциативной ионизации, в котором сигнал ионизации тепловым излучением используется в качестве опорного.

Аналогично (2.33) и (2.37), полное число атомарных и молекулярных ионов, образовавшихся в области взаимодействия за время между двумя электрическими импульсами, выражается через число первоначально возбужденных ридберговских атомов $N_{nL}(0)$ и эффективное время взаимодействия t_{eff} :

$$\begin{cases} \text{Na}^+ = N_{nL}(0) W_{BBR} t_{eff} \\ \text{Na}_2^+ = N_{nL}(0) k_{AI} n_{3S} t_{eff} \end{cases} \quad (3.7)$$

При известных значениях $N_{nL}(0)$ из измеренных ионизационных сигналов с помощью уравнений (3.7) можно рассчитать константы скорости ассоциативной ионизации k_{AI} и скорость ионизации тепловым излучением W_{BBR} . Единственный надежный метод измерения $N_{nL}(0)$ – селективная ионизация электрическим полем [51]-[53]. Трудность применения метода для ридберговских состояний с низкими n связана с необходимостью использовать электрическое поле с напряженностью ~ 30 кВ/см для $n \sim 10$.

С другой стороны, в нашей работе мы интересовались, прежде всего, измерением относительной зависимости k_{AI} от главного квантового числа n . Поэтому, для определения $N_{nL}(0)$ можно было воспользоваться нормировкой с использованием численно рассчитанных вероятностей. Величина $N_{nL}(0)$ пропорциональна среднему числу атомов N_{3P} , возбужденных излучением лазера первой ступени в состояние $3P_{3/2}$ и вероятности $W(3P_{3/2} \rightarrow nL)$ возбуждения атомов в состояние $3P$ одним импульсом лазера второй ступени:

$$N_{nL}(0) = N_{3P} W(3P_{3/2} \rightarrow nL). \quad (3.8)$$

Вероятность возбуждения ридберговского nL состояния импульсом лазера второй ступени $W(3P_{3/2} \rightarrow nL)$ пропорциональна мощности излучения лазера P_b , радиальному матричному элементу $R(3P_{3/2} \rightarrow nL)$ дипольного перехода в ридберговское состояние и нормировочной константе B_L , зависящей от орбитального момента L :

$$W(3P_{3/2} \rightarrow nL) = B_L \cdot P_b \cdot R^2(3P_{3/2} \rightarrow nL). \quad (3.9)$$

Константа B_L пропорциональна квадрату угловой части матричного элемента перехода. Вероятность перехода $W(3P_{3/2} \rightarrow nL)$ для высоких ридберговских состояний пропорциональна n_{eff}^{-3} , но для состояний с $n \sim 10$ наблюдаются отклонения от простой пропорциональности. В связи с этим мы использовали результаты численных расчетов $R(3P_{3/2} \rightarrow nL)$ для переходов $3P_{3/2} \rightarrow nS, nD$. Радиальные матричные элементы $R(3P_{3/2} \rightarrow nL)$ были рассчитаны методом Дьячкова и Панкратова [29].

Для сравнения сигналов ионизации nS и nD состояний по абсолютной величине необходимо знать соотношение B_D/B_S . Анализ угловых частей матричного элемента перехода в ридберговское состояние показал, что для линейно поляризованного излучения лазеров обеих ступеней отношение B_D/B_S может изменяться от приблизительно 1.6 (если не происходит столкновительного, радиационного или магнитного перемешивания подуровней) до 2 (в случае полного перемешивания). При возбуждении неполяризованным светом отношение B_D/B_S должно равняться 2 независимо от перемешивания магнитных подуровней. С учетом соотношения радиальных матричных элементов $R(3P_{3/2} \rightarrow nL)$, из расчетов следует, что отношение вероятностей возбуждения $W(3P_{3/2} \rightarrow nD)/W(3P_{3/2} \rightarrow nS)$ должно находиться в диапазоне от 3.5 до 5.

В принципе, ионные сигналы, измеренные для различных nL состояний, можно нормировать, используя рассчитанные вероятности возбуждения $W(3P_{3/2} \rightarrow nL)$ и измеряя только мощность излучения лазера второй ступени [см. Уравнение (3.9)]. Но применение такой нормировки может быть затруднено техническим несовершенством лазера: поскольку ширина линии лазера (10 ГГц) значительно превышает ширину контура поглощения (Допплеровское уширение ~ 500 МГц), изменение спектральной яркости лазерного излучения может повлиять на вероятность возбуждения даже при неизменной мощности P_b . В связи с этим была необходима экспериментальная проверка применимости нормировки на вероятность возбуждения, введенной в уравнении (3.9).

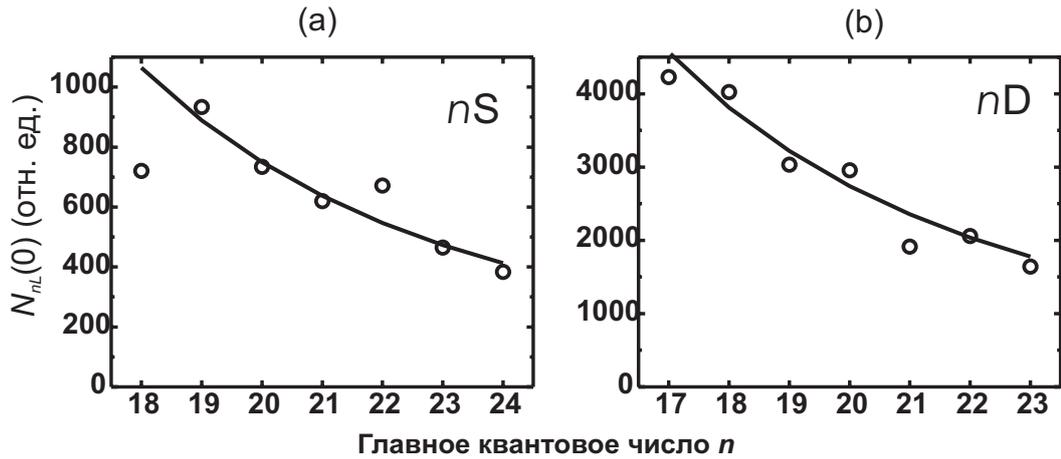


Рис. 3.4. Вероятность лазерного возбуждения ридберговских nS и nD состояний: экспериментальные точки и аппроксимация с использованием уравнения (3.9).

Для проверки применимости уравнения (3.9) был проведен следующий эксперимент: зависимость $N_{nL}(0)$ от главного квантового числа n была измерена методом селективной полевой ионизации, который в наших условиях можно было применять для состояний с $n \geq 17$. В эксперименте использован импульсный высоковольтный генератор с максимальной амплитудой импульсов 8 кВ. Длительность фронта импульса $\Delta t = 1$ мкс, с такой же задержкой после лазерного импульса появляется и сигнал ионизации. Измеренный сигнал селективной полевой ионизации выражается через $N_{nL}(0)$ и эффективное время жизни ридберговских состояний:

$$S_{SFI} \sim N_{nL}(0) \exp\left[-\Delta t / \tau_{eff}^{nL}\right]. \quad (3.10)$$

Из (3.10) можно определить $N_{nL}(0)$ и, следовательно, вероятность возбуждения W [см. Уравнение (3.8)]. На Рис. 3.4 приведены экспериментальные значения W в относительных единицах. Сплошные линии – расчет с использованием формул (3.8) и (3.9). Экспериментальные точки имеют большой разброс, но при этом форма кривой в целом близка к расчетной, и отношение $W(3P_{3/2} \rightarrow nD) / W(3P_{3/2} \rightarrow nS)$ составляет приблизительно 3.5. Таким образом, отношение B_D / B_S близко к 1.6 и можно сделать вывод, что перемешивания магнитных подуровней не происходит. Тем не менее, в реальных экспериментальных условиях формула (3.9) имеет ограниченную применимость, и разброс экспериментальных точек связан, по-видимому, с изменением

спектральной яркости лазера второй ступени при настройке на резонанс для различных состояний.

С учетом выражений (3.7)-(3.9) по наблюдаемым в эксперименте сигналам Na^+ можно рассчитать скорость ионизации ридберговских атомов тепловым излучением:

$$W_{BBR}^{\text{exp}} = \text{Na}^+ \cdot \frac{(1+15/P_y)}{B_L P_b n_{3S} t_{\text{eff}}^{nL}} \cdot \frac{1}{R^2 (3P_{3/2} \rightarrow nL)}. \quad (3.11)$$

Скорость ионизации W_{BBR}^{exp} выражена через измеряемый сигнал Na^+ , мощности лазеров первой и второй ступеней P_y и P_b в относительных единицах, радиальные матричные элементы $R(3P_{3/2} \rightarrow nL)$, концентрацию атомов в основном состоянии n_{3S} , эффективное время жизни t_{eff}^{nL} и нормировочные константы B_L , про которые известно только то, что $B_D/B_S=1.6$. Уравнение (3.11) позволяет рассчитать форму экспериментальной зависимости W_{BBR}^{exp} от главного квантового числа n , но не позволяет определить абсолютную величину W_{BBR}^{exp} . В связи с этим, для нормировки по абсолютной величине, мы использовали расчетные значения скорости тепловой фотоионизации W_{BBR}^{tot} из Главы 2. Проведенные нами экспериментальные измерения зависимости W_{BBR}^{exp} от главного квантового числа n позволили сравнить экспериментальные и теоретические формы зависимости и являлись косвенной проверкой теории.

3.4. Метод измерения скорости ассоциативной ионизации

Измерение отношения ионизационных сигналов

$$R = \frac{\text{Na}_2^+}{\text{Na}^+} = \frac{k_{AI}^{\text{eff}} n_{3S}}{W_{BBR}^{\text{tot}}}. \quad (3.12)$$

позволяет исключить из (3.7) неизвестное число ридберговских атомов и выразить константы скорости ассоциативной ионизации через скорость тепловой ионизации W_{BBR}^{tot} и концентрацию атомов в основном состоянии n_{3S} :

$$k_{AI}^{\text{eff}} = \frac{\text{Na}_2^+}{\text{Na}^+} \cdot \frac{W_{BBR}^{\text{tot}}}{n_{3S}}. \quad (3.13)$$

Считая скорость ионизации тепловым излучением W_{BBR}^{tot} и концентрацию атомов в пучке n_{3S} известными, по измеренному отношению молекулярного и атомарного сигналов R из уравнения (3.13) можно определить константы скорости ассоциативной ионизации k_{AI}^{eff} . Определение констант скорости по отношению молекулярных и атомарных сигналов – новый и надежный метод. Его преимущество заключается как в том, что измеренное отношение сигналов не зависит ни от времени жизни ридберговских состояний, ни от эффективного времени взаимодействия, ни от спектральной яркости излучения лазеров обеих ступеней.

При рассмотрении методики измерения констант скорости в одиночном и скрещенных пучках удобно перейти к обозначениям, позволяющим применять общие уравнения (3.1)-(3.13) отдельно для одиночного (sb) и скрещенного пучков (cb). Вместо эффективной скорости ассоциативной ионизации k_{AI}^{eff} далее будут рассматриваться эффективные скорости ионизации в одиночном пучке k_{AI}^{sb} и в скрещенных пучках k_{AI}^{cb} , вместо отношения сигналов R введем отношение сигналов в одиночном пучке R^{sb} и в скрещенных пучках R^{cb} , вместо числа первоначально возбужденных ридберговских атомов $N_{nL}(0)$ введем число первоначально возбужденных атомов в одиночном пучке $N_{nL}^{sb}(0)$ и в скрещенных пучках $N_{nL}^{cb}(0)$, вместо концентрации атомов в основном состоянии n_{3S} рассмотрим концентрации в одиночном пучке n_{3S}^{sb} и в скрещенных пучках n_{3S}^{cb} . Также отдельно будем рассматривать сигналы $Na_2^{+(sb)}$ и $Na^{+(sb)}$ в одиночном пучке, и сигналы $Na_2^{+(cb)}$ и $Na^{+(cb)}$ в скрещенных пучках.

Измерение констант скорости ассоциативной ионизации в одиночном атомном пучке.

На Рис. 3.5 приведены экспериментальные зависимости отношения R^{sb} молекулярного и атомарного сигналов для ридберговских nS и nD состояний натрия в диапазоне $n=8-20$ от эффективного квантового числа в одиночном атомном пучке при температуре $T=635$ К. Это отношение достигает 2.5 для

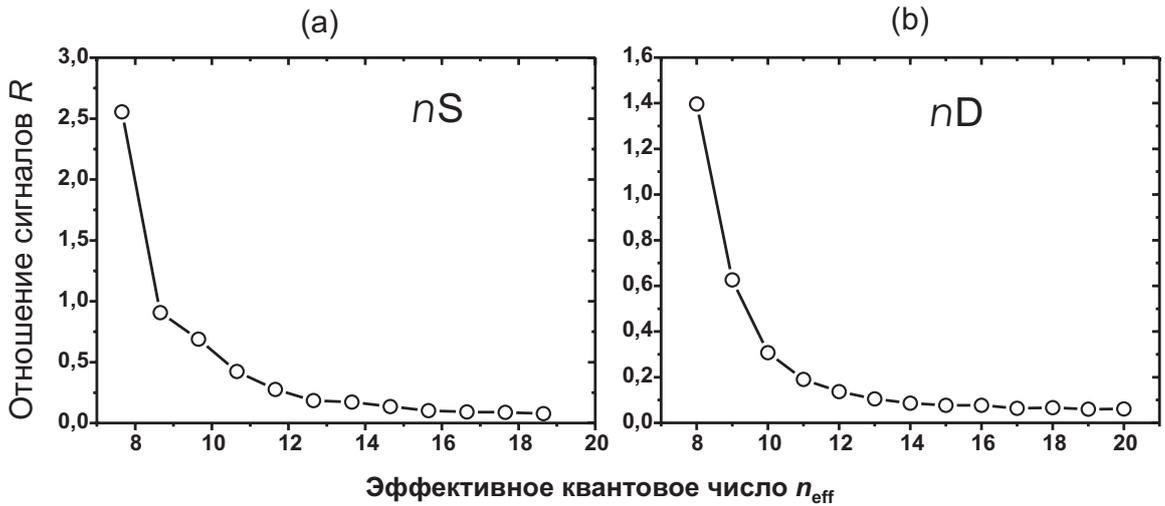


Рис. 3.5. Экспериментально измеренное отношение молекулярного и атомарного сигналов R в одиночном пучке для nS (a) и nD (b) атомов натрия.

низких ридберговских состояний и быстро падает, выходя на практически постоянный уровень 0.07 для $n \sim 20$.

Постоянное отношение скоростей ионизации тепловым излучением и столкновительной ионизации при больших n позволило сделать предположение, что существует вклад в измеряемый сигнал $\text{Na}_2^{+(sb)}$, не связанный со столкновениями. Для проверки этого утверждения были сделаны измерения зависимости отношения R^{sb} от концентрации атомов в пучке отдельно для низких состояний 9D, 10S и высоких 19S, 18D. (Рис. 3.6). Поскольку в процессе ионизации тепловым излучением участвует только один атом, а в столкновениях — два атома, то сигнал столкновительной ионизации должен быть пропорционален квадрату концентрации $\text{Na}_2^{+(sb)} \sim (n_{3S}^{sb})^2$, а сигнал ионизации тепловым излучением должен быть прямо пропорционален концентрации $\text{Na}^{+(sb)} \sim n_{3S}^{sb}$. В результате, отношение сигналов R^{sb} должно линейно зависеть от n_{3S}^{sb} .

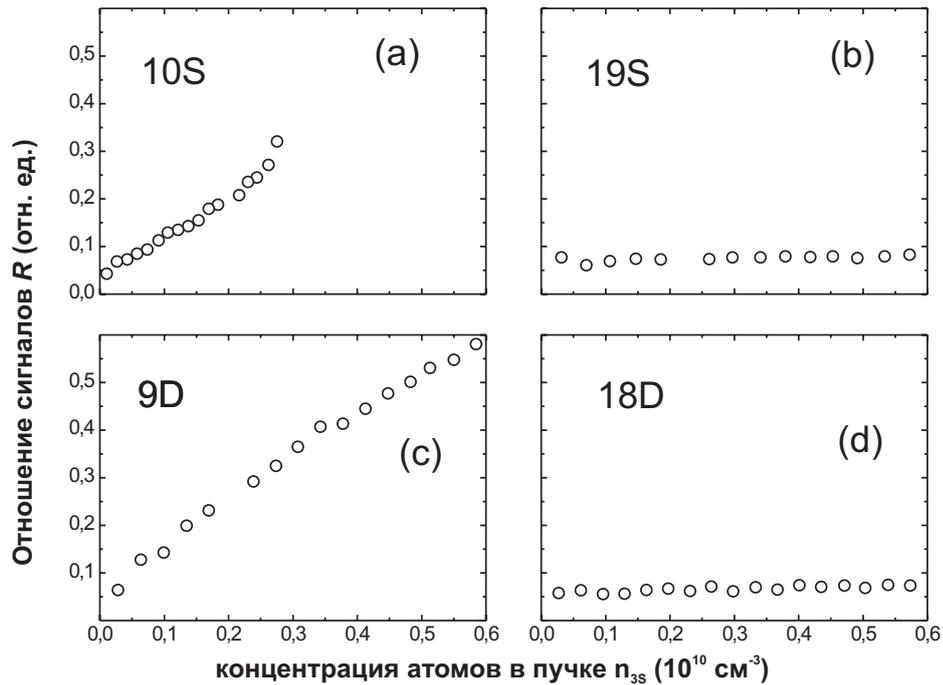


Рис. 3.6. Зависимость отношения молекулярного и атомарного сигналов R^{sb} от концентрации атомов в основном состоянии n_{3S}^{sb} для 10S (a), 19S (b), 9D (c) и 18D (d) состояний.

Для 9D [Рис. 3.6(a)] и 10S [Рис. 3.6(c)] состояний отношение сигналов R^{sb} действительно линейно зависит от концентрации, но для 18D [Рис. 3.6(b)] и 19S [Рис. 3.6(d)] отношение R^{sb} оказывается практически постоянным. При этом атомарный сигнал Na^+ пропорционален концентрации n_{3S}^{sb} . Следовательно, измеряемый сигнал $\text{Na}_2^{+(sb)}$ для больших значений $n \sim 20$ не связан со столкновениями, и существует дополнительный вклад в измеряемый сигнал молекулярных ионов, пропорциональный концентрации n_{3S}^{sb} .

Причина появления дополнительного вклада в измеряемый сигнал следующая: в течение второго электрического импульса длительностью 250 нс продолжается образование атомарных ионов из-за фотоионизации ридберговских атомов тепловым излучением (Рис. 3.2). Эти ионы ускоряются электрическим полем в течение меньшего промежутка времени, чем ионы, которые образовались еще до начала вытягивающего импульса. За счет этого их

скорость оказывается меньше, и часть их попадает в ВЭУ-6 с задержкой, которая близка к задержке молекулярных ионов, что создает неустранимый шумовой вклад в молекулярный сигнал. Рассчитать величину этого вклада можно следующим образом: в строб, предназначенный для регистрации сигнала $\text{Na}_2^{+(sb)}$, попадают атомарные ионы Na^+ , образовавшиеся в течение временного интервала Δt , который определяется геометрией системы регистрации и длительностью стробов. В наших экспериментальных условиях $\Delta t = 120$ нс. Амплитуда шумового сигнала пропорциональна интервалу Δt и скорости тепловой фотоионизации, которая быстро растет с n :

$$N_{noise} = N_{nL}^{sb}(0) W_{BBR}^{tot} e^{-t_2/\tau_{eff}} \Delta t. \quad (3.14)$$

Вклад шумового сигнала α в измеряемое отношение R^{sb} определяется отношением $N_{noise} / \text{Na}^{+(sb)}$ [см. Уравнения (3.12), (3.14)]:

$$\alpha = \frac{\Delta t}{\tau_{eff}} \frac{1}{e^{t_2/\tau_{eff}} - 1}. \quad (3.15)$$

Тогда измеряемый в одиночном пучке молекулярный сигнал $\text{Na}_2^{+(sb)}$ следует переопределить с учетом (3.15):

$$\text{Na}_2^{+(sb)} = k_{Al}^{sb} N_{nL}^{sb}(0) n_{3S}^{sb} t_{eff} + \alpha N_{nL}^{sb}(0) W_{BBR}^{tot} t_{eff}. \quad (3.16)$$

Измеренное отношение молекулярного сигнала к атомарному (3.12) следует уточнить с учетом (3.16):

$$R^{sb} = \frac{\text{Na}_2^{+(sb)}}{\text{Na}^{+(sb)}} = \frac{k_{Al}^{sb} n_{3S}^{sb}}{W_{BBR}^{tot}} + \alpha, \quad (3.17)$$

В итоге, получено окончательное выражение для определения констант скорости ионизации в одиночном пучке k_{Al}^{sb} по экспериментально измеренному отношению сигналов R^{sb} :

$$k_{Al}^{sb} = (R^{sb} - \alpha) \cdot \frac{W_{BBR}^{tot}}{n_{3S}^{sb}}. \quad (3.18)$$

Измерение констант скорости ассоциативной ионизации в скрещенных пучках.

Рассмотрим формирование атомарных и молекулярных ионизационных сигналов в случае одинаковых скрещенных пучков. По сравнению с одиночным

пучком, в области взаимодействия вдвое увеличивается концентрация атомов в основном состоянии при той же температуре источников пучка:

$$n_{3S}^{cb} = 2n_{3S}^{sb}. \quad (3.19)$$

Следовательно, вдвое также увеличится число первоначально возбужденных ридберговских атомов:

$$N_{nL}^{cb}(0) = 2N_{nL}^{sb}(0), \quad (3.20)$$

Измеряемый молекулярный ионизационный сигнал $Na_2^{+(cb)}$ определяется вкладом столкновений как атомов из скрещенных пучков друг с другом, так и вкладом столкновений внутри каждого из пучков:

$$Na_2^{+(cb)} = k_{AI}^{cb} N_{nL}^{cb}(0) n_{3S}^{cb} t_{eff} + 2k_{AI}^{sb} N_{nL}^{sb}(0) n_{3S}^{sb} t_{eff} + \alpha N_{nL}^{cb}(0) W_{BBR}^{tot} t_{eff}. \quad (3.21)$$

Поскольку распределения по относительным скоростям столкновений внутри одного пучка и между атомами из разных пучков существенно отличаются (см. Главу 2), будут также отличаться и константы скорости k_{AI}^{sb} и k_{AI}^{cb} , поэтому необходимо рассматривать их отдельно. С учетом (3.19) и (3.20) выражение (3.21) может быть переписано в виде:

$$Na_2^{+(cb)} = \frac{1}{2} k_{AI}^{\Sigma} N_{nL}^{cb}(0) n_{3S}^{cb} t_{eff} + \alpha N_{nL}^{cb}(0) W_{BBR}^{tot} t_{eff}, \quad (3.22)$$

где введена суммарная скорость ассоциативной ионизации:

$$k_{AI}^{\Sigma} = k_{AI}^{sb} + k_{AI}^{cb}. \quad (3.23)$$

Атомарный сигнал в скрещенных пучках выражается аналогично (3.7):

$$Na^{+(cb)} = N_{nL}^{cb}(0) W_{BBR}^{tot} t_{eff}. \quad (3.24)$$

Аналогично (3.17), в скрещенных пучках, комбинируя уравнения (3.22) и (3.24), получаем:

$$R^{cb} = \frac{Na_2^{+(cb)}}{Na^{+(cb)}} = \frac{k_{AI}^{\Sigma} n_{3S}^{cb}}{2W_{BBR}^{tot}} + \alpha. \quad (3.25)$$

Уравнение (3.25) позволяет определить суммарную скорость ионизации в скрещенных пучках:

$$k_{AI}^{\Sigma} = \frac{2W_{BBR}^{tot} (R^{cb} - \alpha)}{n_{3S}^{cb}}. \quad (3.26)$$

Удобно использовать уравнения (3.26) и (3.18) с учетом (3.19), чтобы выразить константу скорости ионизации для столкновений в скрещенных пучках k_{AI}^{cb} через разность отношений сигналов $(R^{cb} - R^{sb})$:

$$k_{AI}^{cb} = \frac{2W_{BBR}^{tot} (R^{cb} - R^{sb})}{n_{3S}^{cb}}. \quad (3.27)$$

В отличие от выражения для константы скорости ионизации в одиночном пучке k_{AI}^{sb} [уравнение (3.18)] и выражения для суммарной константы скорости ионизации k_{AI}^{Σ} [уравнение (3.26)], выражение (3.27) для k_{AI}^{cb} не зависит от константы α , что существенно увеличивает точность измерений. Это позволило нам впервые провести надежные измерения константы скорости ассоциативной ионизации в столкновениях атомов из двух различных скрещенных пучков.

Для этого мы провели одновременные измерения атомарных и молекулярных сигналов в скрещенных пучках и одиночном пучке при температуре источников $T=600$ К, используя механический затвор (см. Рис. 3.1) для перекрытия одного из пучков. Применимость уравнений (3.21)-(3.27) для описания столкновений в скрещенных пучках определяется выполнением условия (3.20), то есть, тем, что концентрация атомов в обоих пучках одинакова. Для контроля выполнения (3.20) измерялся сигнал флуоресценции на переходе $3P_{3/2} \rightarrow 3S_{1/2}$.

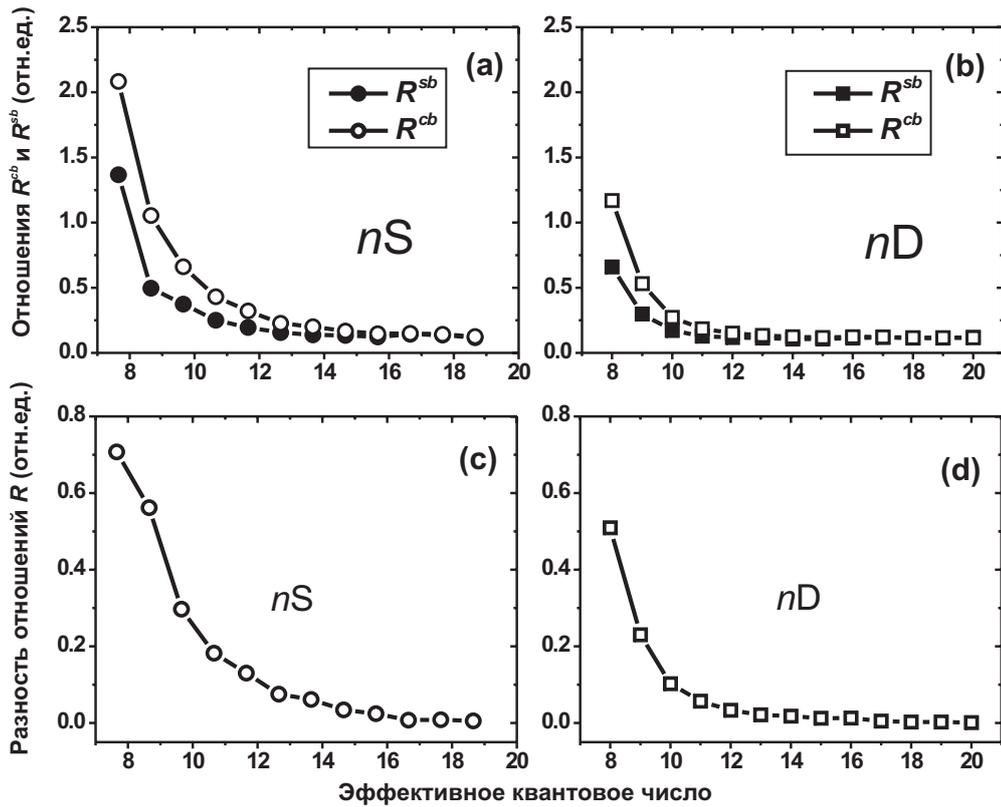


Рис. 3.7. Экспериментально измеренные отношения молекулярных Na_2^+ и атомарных Na^+ сигналов в скрещенных пучках R^{cb} и одиночном пучке R^{sb} в зависимости от эффективного квантового числа для nS (а) и nD состояний (б); разность $(R^{cb} - R^{sb})$ для nS (с) и nD состояний (д) соответственно.

Экспериментально измеренные отношения сигналов $\text{Na}_2^+/\text{Na}^+$, усредненные по пяти независимым сериям измерений, представлены на Рис. 3.7(а) и (б). Для нижних состояний, величины R^{sb} достигают 1.3 и 0.7 для nS и nD состояний соответственно, в то время как величины R^{cb} достигают соответственно 2.1 и 1.2. Отношения сигналов R^{cb} и R^{sb} быстро уменьшаются с увеличением n и достигают постоянной величины $\alpha=0.12$ при больших n , что согласуется с уравнениями (3.17) и (3.25). Разность $(R^{cb} - R^{sb})$ показана на Рис. 3.7(с) и (д). Для нижних состояний, она достигает 0.8 и 0.55 для nS и nD состояний соответственно, и приближается к нулю для больших n . Это подтверждает, что шум от атомарных ионов Na^+ действительно удается устранить, как и следует из уравнения (3.27).

3.5. Измерение распределения по скоростям в эффузионном пучке

В Главе 2 было показано, что распределение по относительным скоростям сталкивающихся атомов сильно влияет на значения констант скорости ассоциативной ионизации и формы их зависимостей от главного квантового числа. Это связано с усреднением зависящего от скорости сечения ионизации по скоростям для расчета константы скорости реакции. Однако расчетное распределение по скоростям может отличаться от реально существующего. Для вычисления распределений по скоростям столкновений в атомном пучке и скрещенных пучках мы использовали продольное распределение по абсолютным скоростям в атомном пучке [32].

$$f(v) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{v_0^3} \exp(-v^2/v_0^2), \quad (3.28)$$

где v – скорость атомов вдоль оси пучка, $v_0 = \sqrt{2T/m}$, T – температура источника пучка в атомных единицах, и $m=42228$ а.е. – масса атома натрия. Для проверки того, что уравнение (3.28) корректно описывает распределение по скоростям в эффузионном пучке, мы провели измерение распределения времяпролетным методом. Экспериментальная установка была модифицирована. Схема установки для измерения распределения по скоростям в атомном пучке приведена на Рис. 3.8. Для детектирования электронов в дополнение к имевшемуся детектору ВЭУ-6 (С1), установленному непосредственно под областью пересечения атомного и лазерных пучков, на расстоянии 17 мм от него вдоль оси пучка был установлен дополнительный детектор ВЭУ-6 (С2), с диаметром входного отверстия 6 мм, отверстие было также закрыто сеткой.

Атомы натрия возбуждались в высоколежащие ридберговские состояния 37S по двухступенчатой схеме в момент времени $t=0$ импульсами лазеров длительностью 50 нс. Излучение лазеров было сфокусировано на атомный пучок над центром входного отверстия детектора С1. Точечная область возбуждения (диаметром ~ 30 мкм) определяет положение $L=0$ вдоль атомного пучка. Преимущество ридберговских состояний с $n \sim 40$ для измерений времяпролетным методом заключается в их больших временах жизни и малых значениях критических полей, требуемых для их детектирования методом селективной полевой ионизации [51]-[53]. Для состояния 37S натрия критическое поле составляет приблизительно 200 В/см.

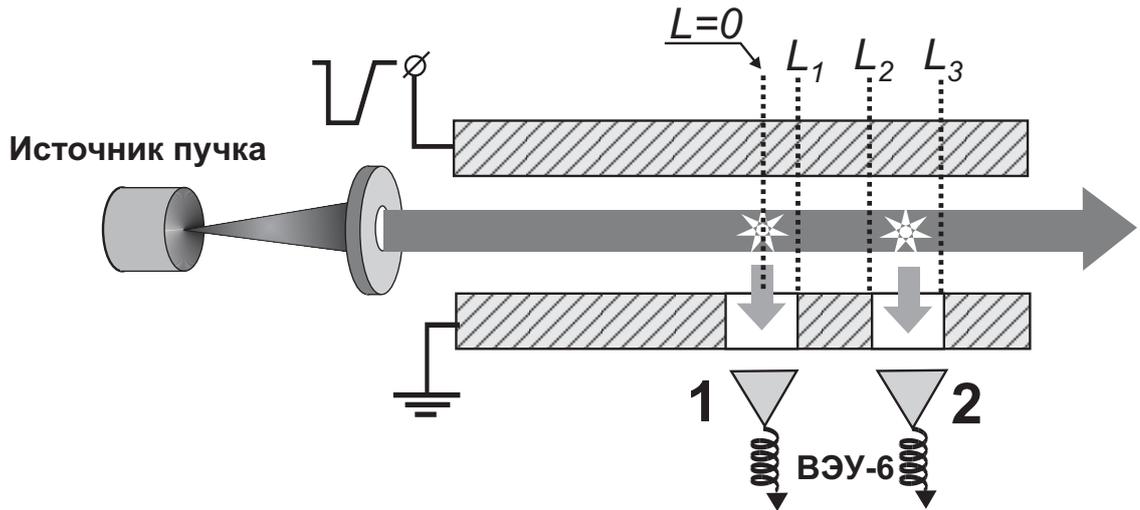


Рис. 3.8. Схема экспериментальной установки для проведения измерений распределения по скоростям в атомном пучке времяпролетным методом.

После возбуждения, ридберговские атомы продолжают движение вдоль оси пучка. Через время t после импульса лазера прикладывался электрический импульс длительностью 3 мкс и амплитудой 300 В/см. Этот импульс ионизовал все атомы в состоянии $37S$ и в состояниях nP с $n > 33$. Последние заселялись в результате спонтанных и индуцированных тепловым излучением переходов из первоначально возбужденного состояния $37S$. Электроны, образовавшиеся в результате полевой ионизации непосредственно над детекторами С1 и С2, ускорялись электрическим полем в соответствующий умножитель и немедленно регистрировались.

В момент t после лазерного импульса все атомы со скоростями движения в диапазонах $(0, L_1/t)$ и $(L_2/t, L_3/t)$ расположены над детекторами С1 and С2, соответственно, где $L_1=3$ мм, $L_2=14$ мм и $L_3=20$ мм (Рис. 3.8). Временная зависимость заселенности атомов в состояниях $37S$ и nP ($n > 33$) выражается через эффективное время жизни набора состояний τ_{eff} , которое определяется суммой скоростей переходов в nP состояния с $n < 33$ в результате спонтанного распада и под действием теплового излучения. Расчетное значение τ_{eff} при температуре 300 К составило 58 мкс. Число ридберговских атомов, зарегистрированных в момент t детекторами С1 и С2 (нормированное на число возбужденных атомов), может быть выражено через эффективное время жизни τ_{eff} и распределение по продольным скоростям в пучке $f(v)$:

$$N_1(t) = \int_0^{L_1/t} f(v) \exp(-t/\tau_{eff}) dv; \quad (3.29)$$

$$N_2(t) = \int_{L_2/t}^{L_3/t} f(v) \exp(-t/\tau_{eff}) dv, \quad (3.30)$$

Сравнение сигналов, измеренных детекторами С1 и С2 с расчетными значениями (Рис. 3.9) позволило нам сделать следующие выводы о распределении по скоростям атомов в пучке:

При низких температурах источника пучка $T = 420$ К, что соответствует низким концентрациям атомов в области возбуждения (3×10^6 см⁻³), уравнения (3.29) и (3.30) корректно описывают экспериментальные наблюдения при использовании расчетного времени жизни 58 мкс и распределения по скоростям (3.28) [Рис. 3.9(a) и (b)]. Следовательно, при низких концентрациях в пучке распределение по скоростям описывается уравнением (3.28), и распад состояния 37S связан только со спонтанными и индуцированными тепловым излучением переходами.

При более высоких температурах $T=630$ К и высоких концентрациях (4×10^{10} см⁻³) в атомном пучке, наблюдается хорошее согласие эксперимента с теорией, если используется распределение по скоростям (3.28) и меньшее эффективное время жизни 18 мкс [сплошные линии на Рис. 3.9(c) и (d)]. В расчетах для $\tau_{eff} = 58$ мкс при высокой концентрации наблюдается значительное расхождение между экспериментом и теорией [пунктир на Рис. 3.9(c) и (d)]. Все попытки улучшить согласие эксперимента и теории изменением формы распределения по скоростям в вычислениях оказываются безуспешными, если считать эффективное время жизни равным $\tau_{eff} = 58$ мкс. Это означает, что распределение по абсолютным скоростям в пучке по-прежнему описывается уравнением (3.28), но существует дополнительное тушение ридберговских 37S состояний со скоростью около 40000 сек⁻¹.

Выяснение причин дополнительного тушения высоких ридберговских состояний лежит за рамками данной работы. Столкновения с остаточными газами в вакуумной камере могут быть исключены из рассмотрения, поскольку их вклад одинаков как при высокой, так и при низкой концентрации натрия в пучке. Оценки показали, что тушение также не может быть связано с упругим рассеянием ридберговских атомов из пучка, или индуцированных

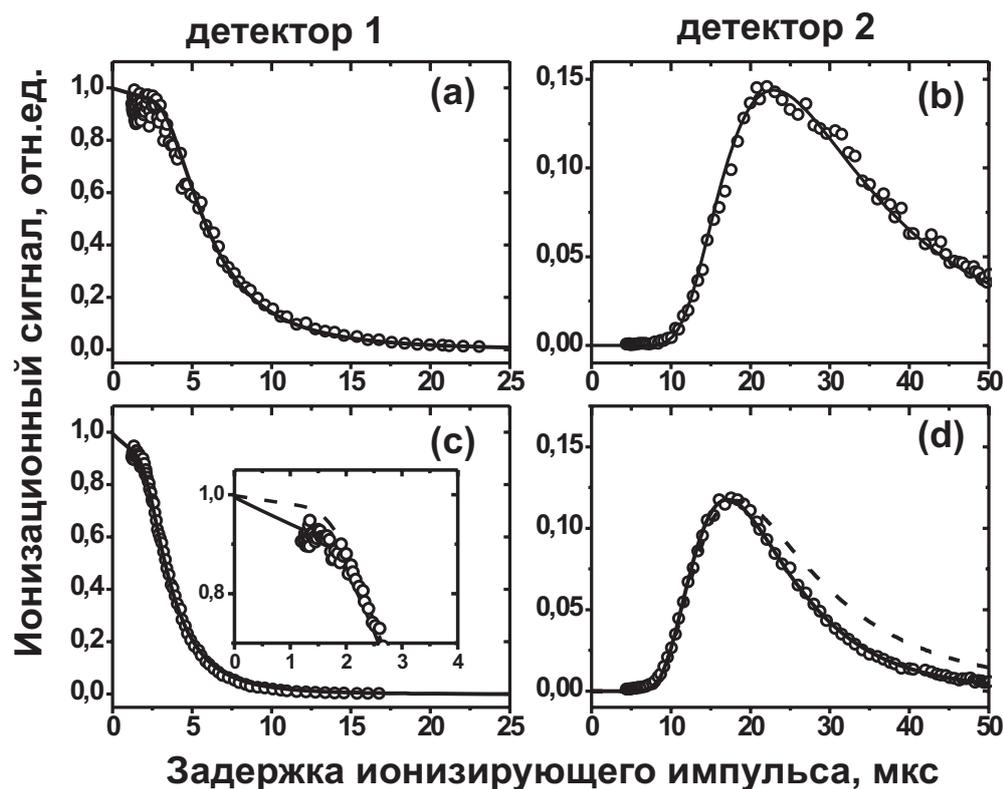


Рис. 3.9. Экспериментальные и теоретические зависимости измеряемых сигналов $N_1(t)$ и $N_2(t)$ от задержки ионизирующего импульса t . (а) и (б) – сигналы, измеренные детекторами С1 и С2 соответственно, в разреженном пучке с концентрацией $3 \times 10^6 \text{ см}^{-3}$ при температуре источника 420 К, окружностями обозначены экспериментальные точки, сплошные кривые – теоретический расчет при $\tau_{eff}=58$ мкс; (с) и (д) – сигналы, измеренные детекторами С1 и С2 соответственно в плотном пучке с концентрацией $4 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$ при температуре источника 630 К, окружностями обозначены экспериментальные точки, сплошные кривые – теоретический расчет при $\tau_{eff}=18$ мкс; пунктир - теоретический расчет при $\tau_{eff}=58$ мкс.

столкновениями переходов в более низкие состояния, которые не детектируются электрическим импульсом, использованным в нашем эксперименте.

Основной причиной уменьшения времени жизни ридберговских 37S атомов в плотном пучке является, предположительно, свержизлучение. Как было продемонстрировано в работе [121], диполь-дипольное взаимодействие между ридберговскими атомами при больших концентрациях может приводить к уменьшению их времени жизни. Однако, поскольку измерения скоростей тепловой фотоионизации и ассоциативной ионизации в нашем эксперименте

проходят в течение значительно более короткого времени 2 мкс, и геометрические сечения состояний с малыми n значительно меньше, столкновительное тушение не может существенно влиять на результаты наших измерений скоростей ионизации.

Таким образом, мы делаем вывод, что распределение по скоростям в эффузионном пучке близко к распределению (3.28), и, следовательно, распределения по относительным скоростям столкновений, использованные в наших расчетах, также верны.

Обсуждение результатов.

Нами разработана новая методика измерения констант скорости ассоциативной ионизации ридберговских атомов щелочных металлов, основанная на использовании сигнала ионизации тепловым излучением в качестве опорного. Преимущество методики заключается в исключении такого параметра, как число ридберговских атомов в объеме возбуждения, которое трудно измерить для низких значений n . Наибольшую точность методика обеспечивает при измерении констант скорости в скрещенных пучках. Нам также удалось выделить вклад от столкновений между атомами из *разных* пучков, что существенно облегчает сравнение эксперимента и теории.

Глава 4. Результаты экспериментального и теоретического исследования процессов ионизации ридберговских атомов натрия

В этой главе приведены результаты экспериментов по измерению скорости ионизации ридберговских атомов натрия тепловым излучением и результаты измерений констант скорости ассоциативной ионизации в одиночном атомном пучке и скрещенных пучках. Сравнительный анализ результатов экспериментов и теоретических расчетов показал, что применение диффузионной модели столкновительной ионизации улучшает согласие эксперимента и теории. Мы также сравнили полученные нами экспериментальные и теоретические результаты с данными, имеющимися в литературе.

4.1. Ионизация ридберговских атомов натрия тепловым излучением

Экспериментальные и теоретические значения полной скорости ионизации ридберговских nS и nD атомов натрия тепловым излучением приведены на Рис. 4.1. Экспериментальные значения скорости ионизации W_{BBR}^{exp} были рассчитаны по измеренным ионизационным сигналам Na^+ с использованием уравнения (3.11). В уравнении (3.11) неизвестно значение константы B_L , поскольку оно зависит от эффективности системы возбуждения и регистрации ридберговских атомов, измерение которой представляет собой технически и физически сложную задачу [122]. Поэтому наши экспериментальные измерения позволяют определить не абсолютную величину W_{BBR}^{exp} , а только относительную зависимость W_{BBR}^{exp} от главного квантового числа n . Оказалось, что по форме экспериментальная и теоретическая зависимость W_{BBR}^{exp} от n для nD состояний натрия совпадают с высокой точностью. Это позволило нам сделать вывод о том, что наши экспериментальные измерения подтверждают теоретические расчеты, и определить масштабный коэффициент B_D .

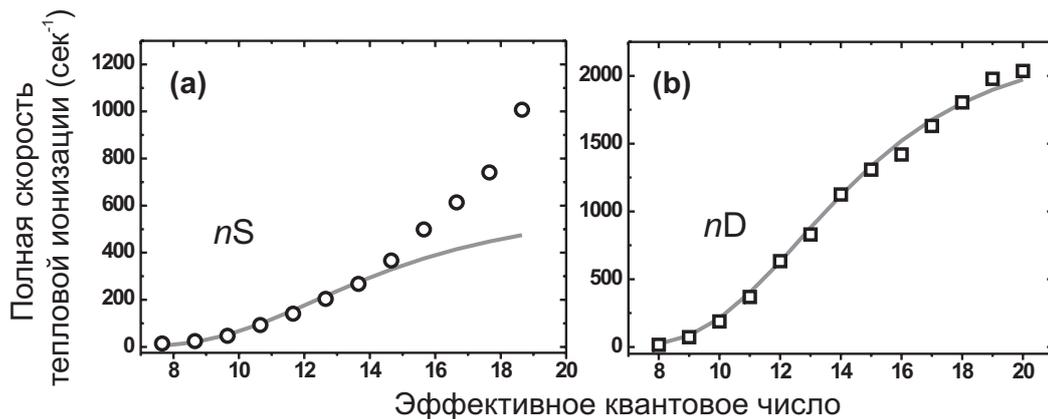


Рис. 4.1. Экспериментальные (кружки) и теоретические (сплошные кривые) зависимости скорости ионизации тепловым излучением ридберговских nS (a) и nD (b) состояний атомов натрия от эффективного квантового числа.

Для nS состояний формы экспериментально измеренных и теоретических рассчитанных скоростей фотоионизации тепловым излучением оказались различными, что не позволило аналогичным способом подобрать масштабный коэффициент B_S . Поскольку экспериментальные измерения скорости ионизации тепловым излучением проводились одновременно для nS и nD состояний, измеренные формы зависимостей скорости ионизации от главного квантового числа n имели хорошую воспроизводимость, у нас не было оснований считать наши экспериментальные результаты ненадежными. Для расчета W_{BRR}^{exp} для nS состояний из измеренных ионизационных сигналов мы воспользовались определенным ранее масштабным коэффициентом B_D и положили $B_S = B_D/1.6$, исходя из результатов измерений вероятности лазерного возбуждения ридберговских состояний (Рис. 3.4). В этом случае согласие эксперимента и теории наблюдается для nS состояний с $n < 15$.

С другой стороны, поскольку неводородоподобные nS состояния натрия имеют большой квантовый дефект $\delta_S \approx 1.348$, можно предположить, что хорошо согласующиеся с экспериментом теоретические расчеты для водородоподобных nD состояний $\delta_D \approx 0.014$ имеют большую надежность по сравнению с расчетами для nS состояний.

В целом, можно сделать вывод, что теоретические расчеты вероятности фотоионизации ридберговских состояний правильны для водородоподобных nD

состояний и некорректны для высоких nS состояний. Это позволяет предположить, что необходимы разработка новых методов теоретического расчета сечений фотоионизации ридберговских состояний с малыми орбитальными моментами и дальнейшие экспериментальные исследования. При расчете констант скорости ассоциативной ионизации по измеренным отношениям атомарных и молекулярных сигналов [уравнения (3.18), (3.26) и (3.27)] мы использовали экспериментальные значения W_{BBR}^{exp} , как для nD , так и для nS состояний.

Для иллюстрации, на Рис. 4.2 полученные нами экспериментальные значения W_{BBR}^{exp} сравниваются с результатами численного теоретического расчета полной скорости ионизации W_{BBR}^{tot} ридберговских $nS(a)$, $nP(b)$ и $nD(c)$ атомов натрия тепловым излучением для различных температур излучения ($T=77, 300$ и 600 К) и амплитуд вытягивающего электрического поля ($E=100$ В/см и 200 В/см). Видно, что изменение температуры излучения и амплитуды вытягивающих электрических импульсов существенно влияет как на абсолютную величину W_{BBR}^{tot} , так и на форму зависимости W_{BBR}^{tot} от главного квантового числа n . В связи с этим, в дальнейших исследованиях представляет интерес сравнение теории с экспериментом для nP состояний натрия [Рис. 4.2(b)], а также для nS , nP и nD состояний натрия и других щелочных металлов при различных температурах теплового излучения.

Ридберговские nP состояния натрия представляют особый интерес, поскольку они имеют значительный квантовый дефект $\delta_p = 0.855$, но при этом орбита электрона почти не проникает внутрь атомного остова. Поэтому сравнение эксперимента и теории для скорости ионизации ридберговских nP атомов тепловым излучением позволило бы уточнить границы применимости использованной нами в расчетах квазиклассической модели Дьячкова и Панкратова. Трудность исследования nP состояний связана с тем, что их возбуждение требует реализации либо одноступенчатой схемы с использованием УФ-лазера (длина волны 241-250 нм), либо трехступенчатой схемы возбуждения.

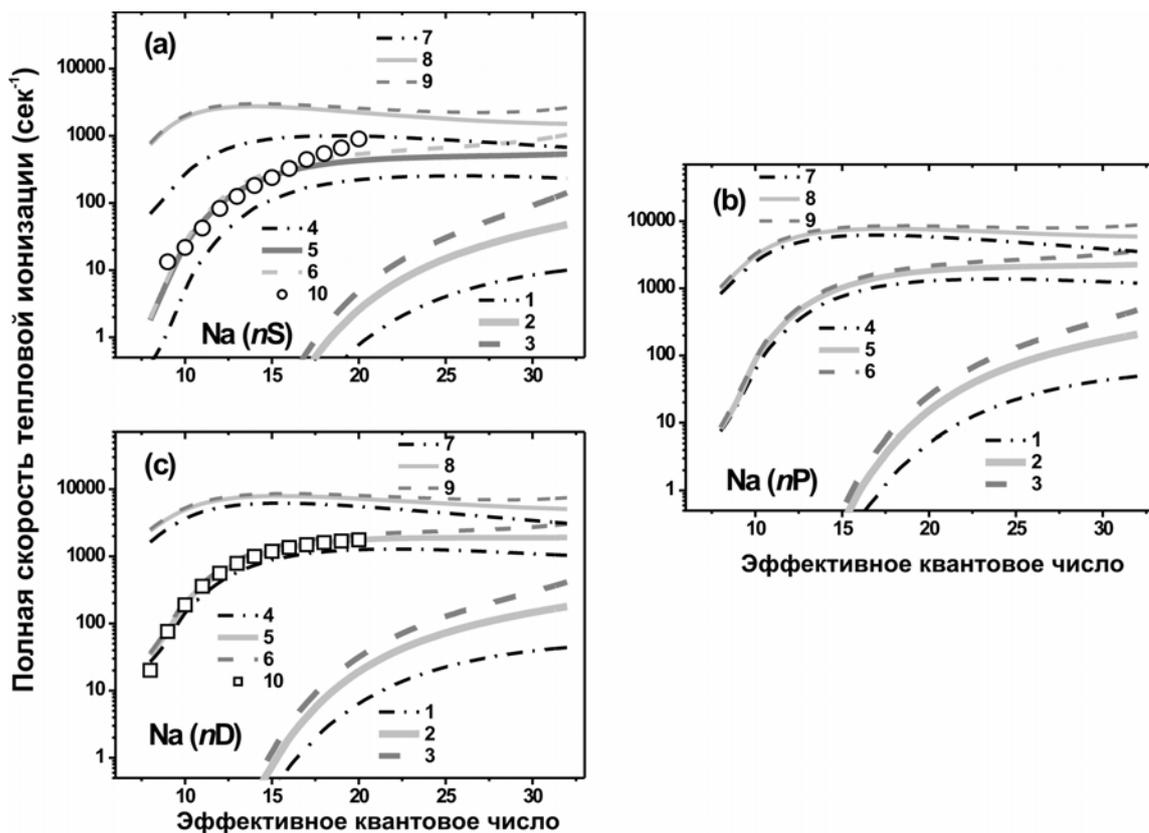


Рис. 4.2. Полная скорость ионизации ридберговских nS (a), nP (b) и nD (c) атомов натрия тепловым излучением. Кривые (1), (4), (7) – скорость прямой фотоионизации тепловым излучением при температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (2), (5), (8) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 100 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. Кривые (3), (6), (9) – полная скорость ионизации тепловым излучением при амплитуде электрических импульсов 200 В/см и температурах $T=77, 300$ и 600 К соответственно. (10) – экспериментальные значения из работы [61].

В дальнейшем также имеет смысл расширение диапазона измерений скорости тепловой фотоионизации nS и nD состояний в сторону более высоких квантовых чисел ($n \sim 30$) (Рис. 4.2). Это позволит удостовериться в работоспособности теоретической модели ионизации для nD состояний в области высоких n и уточнить характер расхождений между теорией и экспериментом для nS состояний. Сложность проведения таких измерений связана главным образом с тем, что с увеличением главного квантового числа энергетический интервал между ридберговскими состояниями уменьшается и это затрудняет идентификацию возбуждаемых состояний. При $n < 20$ для

идентификации ридберговских состояний достаточно настройки длины волны возбуждающего лазера с точностью до 0.5 нм, для более высоких состояний надежная идентификация требует измерения критического ионизирующего электрического поля, а для состояний с $n \sim 40$ необходимо использовать методы микроволновой спектроскопии переходов между соседними состояниями.

Таким образом, наблюдается хорошее согласие между экспериментально измеренными и теоретически рассчитанными скоростями ионизации ридберговских nD атомов тепловым излучением. Для nS состояний наблюдается хорошее согласие между теорией и экспериментом при $n < 15$ и расхождение при $n > 15$.

4.2. Ассоциативная ионизация ридберговских атомов натрия в одиночном пучке

Целью эксперимента по измерению констант скорости ассоциативной ионизации в одиночном атомарном пучке была проверка диффузионной модели (Глава 2) ассоциативной ионизации, ожидалось лучшее согласие эксперимента с расчетами в диффузионной модели по сравнению с расчетами в модели DSMJ. Для корректного сравнения результатов эксперимента с моделью DSMJ потребовалось ее модифицировать, чтобы учесть условия, в которых проводился эксперимент. В расчетах учитывалось закручивание траекторий в притягивающем потенциале, столкновительное L -перемешивание, перемешивание ридберговских состояний тепловым излучением и распределение по скоростям столкновений в одиночном пучке [уравнение (2.2)]. Диффузионная модель отличается от модифицированной модели DSMJ учетом стохастической диффузии ридберговского электрона по собственному энергетическому спектру в процессе ионизации.

На Рис. 4.3 приведены результаты экспериментальных измерений и теоретических расчетов констант скорости АИ в одиночном пучке k_{AI}^{sb} для ридберговских $nS(a)$ и $nD(b)$ атомов натрия. Экспериментальные значения k_{AI}^{sb} были рассчитаны с использованием уравнения (3.18) из отношений молекулярного сигнала Na_2^+ к атомарному сигналу Na^+ (Рис. 3.5) и измеренных

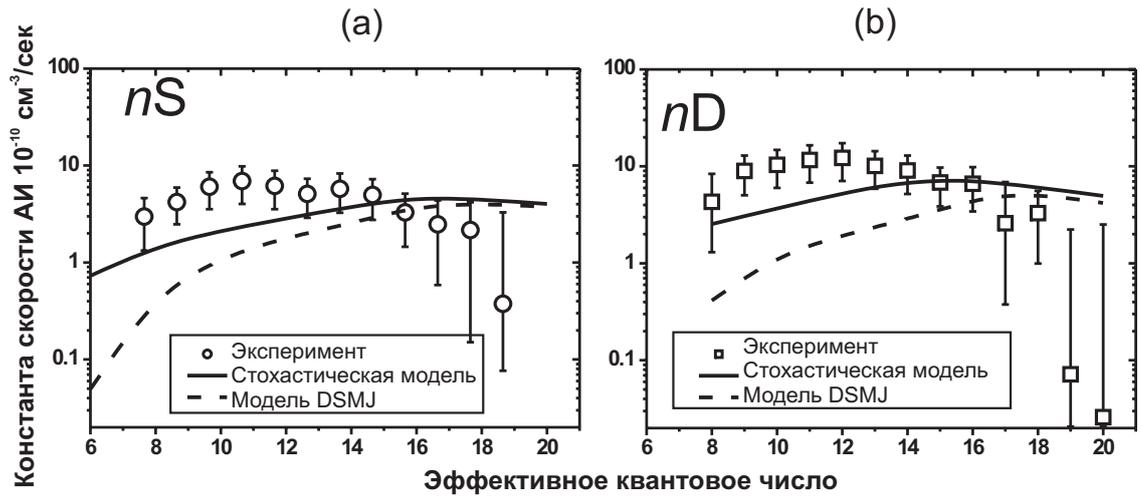


Рис. 4.3. Экспериментальные значения и теоретические расчеты констант скорости ассоциативной ионизации ридберговских состояний атомов натрия в одиночном атомном пучке при температуре $T=635$ К. (а) окружности – эксперимент, nS состояния; сплошная линия – диффузионная модель, пунктир – модель DSMJ; (б) квадраты – эксперимента, nD состояния; сплошная линия - диффузионная модель, пунктир – модель DSMJ.

скоростей ионизации тепловым излучением W_{BBR}^{exp} (Рис. 4.1). Результаты расчетов в модифицированной модели DSMJ на Рис. 4.3. показаны пунктиром. Сплошная кривая на Рис. 4.3 – результаты расчетов в диффузионной модели.

Сравнение эксперимента и теории показало, что диффузионная модель позволяет получить лучшее согласие по абсолютной величине при $n < 15$. При $n > 15$ из-за уменьшения коэффициента диффузии ее влияние на скорость ионизации значительно уменьшается, результаты расчетов в диффузионной модели и модифицированной модели DSMJ становятся близкими, что не позволяет отдать какой-либо из них предпочтение.

В то же время, наблюдается значительно расхождение в форме экспериментальных и теоретических зависимостей констант скорости АИ от эффективного квантового числа. В экспериментальных зависимостях констант скорости АИ от эффективного квантового числа n_{eff} наблюдается максимум в районе $n_{eff}=11-12$, в то время как теория предсказывает максимум в районе $n_{eff}=17-18$. Поскольку измеренные нами экспериментальные зависимости имеют хорошую воспроизводимость, и нами проведен детальный анализ возможных экспериментальных ошибок, мы считаем измеренные нами экспериментальные

зависимости надежными, и предполагаем, что расхождение между теорией и экспериментом для $n_{eff} < 16$ имеет физическую природу и может быть объяснено следующим образом:

Стохастическое изменение квантового состояния ридберговского электрона приводит к случайным переходам между состояниями квазимолекулы. Силы, действующие на сталкивающиеся ядра в результате кулоновского взаимодействия с диффундирующим по энергетическому спектру ридберговским электроном, также случайны. Если скорость относительного движения сталкивающихся ядер достаточно низка, то такие случайные силы могут значительно повлиять на траектории движения ядер. Этот эффект не рассматривался в вычислениях, и, возможно, он объяснит расхождения между теорией и экспериментом, наблюдаемые на Рис. 4.3.

Чтобы учесть данный эффект в расчетах, для $n_{eff} < 15$ вместо использования уравнений Ньютона следует рассмотреть движение ядер, обусловленное стохастической динамикой ридберговского электрона, используя уравнения Ланжевена, аналогично расчетам для атомов, охлажденных лазерным излучением [118].

Другая возможная причина расхождения между теорией и экспериментом связана с распределением по скоростям сталкивающихся атомов, которое оказывает большое влияние на положение максимума зависимости констант скорости от n . Так, расчетные зависимости для столкновений в газовой ячейке и скрещенных пучках имеют максимум в районе $n_{eff} = 12-15$. Однако мы удостоверились в том, что распределение по скоростям в атомном пучке является максвелловским (см. Главу 3), следовательно, распределение по относительным скоростям столкновений описывается формулой (2.2) и не может быть причиной такого расхождения.

Несмотря на то, что расхождения между теорией и экспериментом для констант скорости АИ в одиночном пучке не были полностью устранены с помощью диффузионной модели столкновительной ионизации, ее применение позволило улучшить согласие между экспериментом и теорией.

4.3. Ассоциативная ионизация ридберговских атомов натрия в скрещенных пучках

Обнаруженные расхождения между теорией и экспериментом в одиночном пучке были объяснены некорректностью теории при низких средних энергиях столкновений в нашем эксперименте ($E=3.1 \times 10^{-4}$ а.е. при температуре источника пучка $T=635$ К), что меньше средних энергий столкновений в эксперименте [55] с одиночным пучком при температуре $T=1000$ К ($E=5.2 \times 10^{-4}$ а.е.) и в эксперименте [55] со скрещенными пучками при температуре $T=600$ К ($E=2.8 \times 10^{-3}$ а.е.). В перечисленных трех случаях стохастическая модель применима для состояний с $n_{eff} > 15$, $n_{eff} > 12$, и $n_{eff} > 7$, соответственно [62]. Для меньших значений n_{eff} не вполне корректно игнорирование влияния хаотической динамики ридберговского электрона на межъядерное движение.

Для проверки этого объяснения нами были измерены константы скорости АИ в скрещенных пучках при температуре $T=600$ К, что позволило увеличить энергию столкновений в три раза по сравнению с одиночным пучком при той же температуре (см. Глава 2). Предполагалось, что в скрещенных пучках согласие между теорией и экспериментом будет лучше, чем для одиночного атомарного пучка.

Экспериментально измеренные и теоретически рассчитанные в модифицированной модели DSMJ и стохастической модели константы скорости АИ в скрещенных пучках приведены на Рис. 4.4. Нами были отдельно измерены суммарные константы скорости k_{AI}^{Σ} АИ в столкновениях атомов, происходящих как в скрещенных пучках, так и внутри каждого из отдельных пучков [Рис. 4.4(a) и (b)] и константы скорости k_{AI}^{cb} АИ в столкновениях атомов из разных пучков [Рис. 4.4(c) и (d)]. В первом случае в столкновениях участвуют атомы, движущиеся как перпендикулярно, так и параллельно друг другу. Во втором случае в столкновениях участвуют только движущиеся в перпендикулярных направлениях атомы.

Экспериментальные зависимости k_{AI}^{Σ} и k_{AI}^{cb} от n_{eff} были получены с использованием уравнений (3.26) и (3.27) из измеренных отношений R^{cb} и R^{sb}

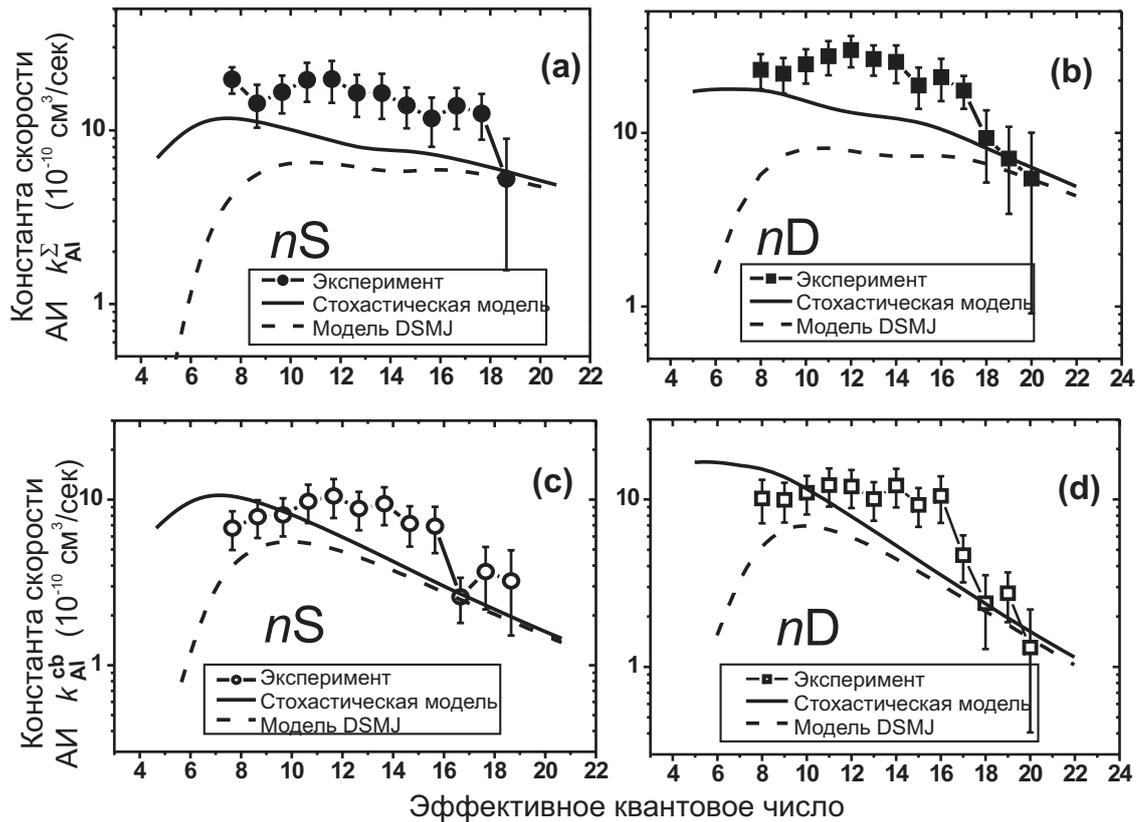


Рис. 4.4. Экспериментальные и теоретические константы скорости ионизации ридберговских атомов натрия в скрещенных пучках: (a) k_{AI}^{Σ} для nS состояний, (b) k_{AI}^{Σ} для nD состояний, (c) k_{AI}^{cb} для nS состояний, (d) k_{AI}^{cb} для nD состояний.

(Рис. 3.7) и экспериментально измеренных значений W_{BRR}^{tot} . Зависимости k_{AI}^{cb} и k_{AI}^{Σ} от n_{eff} имеют похожую форму, но по абсолютной величине k_{AI}^{Σ} приблизительно в два раза больше, чем k_{AI}^{cb} . Наблюдается широкий максимум в районе $n_{eff}=(8-16)$ для nD состояний, и более узкий максимум в области $n_{eff}=(11-14)$ для nS состояний. С увеличением n_{eff} , измеренные величины k_{AI}^{Σ} и k_{AI}^{cb} быстро уменьшаются.

Пунктиром на Рис. 4.4 изображены результаты теоретических расчетов в модифицированной модели DSMJ, а сплошными линиями – результаты расчетов в диффузионной модели. В теоретическом расчете констант скорости ионизации в скрещенных пучках была сделана следующая дополнительная модификация по сравнению с расчетами для одиночного пучка. Чтобы учесть конечное время пролета атома из одного пучка через второй пучок, при расчете констант

скорости АИ в скрещенных пучках мы ввели зависящую от времени концентрацию атомов в объеме взаимодействия:

$$n_{3S}(t) = n_{3S}^{sb} \exp(-t / \tau_f), \quad (4.1)$$

где $n_{3S}^{sb} = 2 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$ – концентрация атомов в основном состоянии в центре каждого из пучков, τ_f – эффективное время пролета (2 мкс). Временная зависимость учитывается в уравнении (3.6) заменой n_{3S} на $n_{3S}(t)$ из уравнения (4.1). Эффекты пролета важны в наших условиях только для скрещенных пучков.

Сравнение эксперимента и теории показало, что применение стохастической модели несколько улучшает согласие по абсолютной величине по сравнению с модифицированной моделью DSMJ. В то же время, формы экспериментально измеренных зависимостей k_{AI}^{cb} от n_{eff} на Рис 4.4(с) и Рис. 4.4(d) ближе к предсказаниям модифицированной модели DSMJ. Следует отметить, что по форме зависимости констант скорости АИ от n_{eff} согласие эксперимента и теории в скрещенных пучках (Рис. 4.4) лучше, чем в одиночном пучке (Рис. 4.3). Это является косвенным подтверждением лучшей работоспособности теоретической модели ионизации для столкновений с более высокими энергиями.

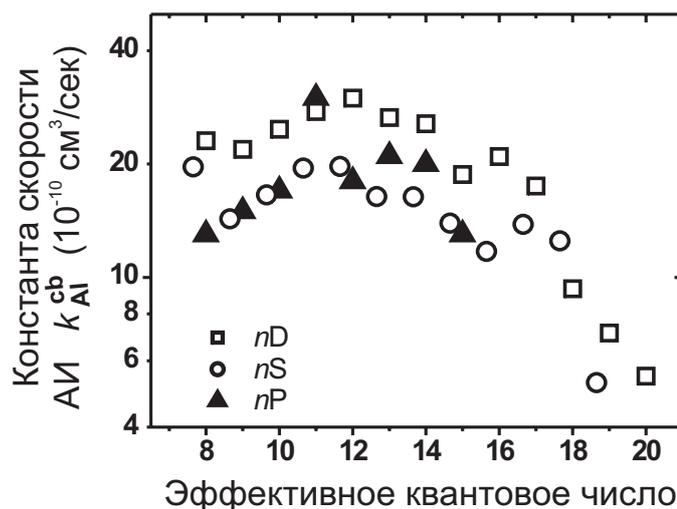


Рис. 4.5. Сравнение измеренных в работе [63] констант скорости ассоциативной ионизации k_{AI}^{Σ} в скрещенных пучках для nS (кружки) и nD (квадраты) состояний с экспериментальными результатами для nP состояний (треугольники), ранее опубликованными в [55].

Для полноты, мы также сравнили наши экспериментальные результаты в скрещенных пучках для nS и nD состояний натрия с другими известными для ридберговских атомов натрия экспериментальными данными. На Рис. 4.5 приведено сравнение с результатами эксперимента в скрещенных пучках [55] для nP состояний. Оба набора данных обладают значительным сходством, несмотря на то, что исследовались состояния с различными орбитальными моментами L и применялись существенно отличавшиеся методики измерения. Следует отметить, что в работе [55] измерялись только суммарные константы k_{AI}^{Σ} , а измерение констант скорости ионизации в столкновениях атомов из различных пучков k_{AI}^{cb} в нашей работе [63] проведено впервые.

Мы также сравнили измеренные нами константы скорости k_{AI}^{cb} АИ в скрещенных пучках с константами скорости АИ k_{AI}^{sb} в одиночном пучке при температуре $T=635$ К (Рис. 4.6). Средняя энергия столкновений атомов в скрещенных пучках превышает среднюю энергию столкновений атомов в одиночном пучке приблизительно в три раза при одной и той же температуре источника. В связи с этим, можно было ожидать, что измеренные в скрещенных пучках константы скорости АИ будут по абсолютной величине значительно

больше, чем в одиночном пучке, а также будут иметь различные формы зависимости от n_{eff} .

Но оказалось, что измеренные константы скорости АИ для nD состояний в одиночном и скрещенном пучках близки как по абсолютной величине, так и по форме зависимости от n_{eff} . Для nS состояний зависимости констант скорости АИ в одиночном и скрещенном пучках от n_{eff} также близки по форме, хотя и отличаются по абсолютной величине, что соответствует с предсказаниям теории.

Точность измерений констант скорости ионизации в одиночном пучке подробно обсуждалась ранее. Константы скорости ионизации в скрещенных пучках k_{AI}^{cb} определялись с помощью уравнения (3.27), следовательно, их точность зависит от точности, с которой измерены величины R^{cb} , R^{sb} , W_{BBR}^{tot} , и n_{3S} . Значения R^{cb} и R^{sb} измерены непосредственно в эксперименте, и найдены независимыми от эффективности лазерного возбуждения и размеров области взаимодействия. Измеренные зависимости констант скорости от n_{eff} , представленные на Рис. 4.4, надежно воспроизводились в нескольких экспериментах. Тем не менее, с увеличением n_{eff} даже небольшие флуктуации $(R^{cb} - R^{sb})$ становятся важными, поскольку уравнение (3.27) использует разность $(R^{cb} - R^{sb})$, которая быстро уменьшается с увеличением n_{eff} . В то же время, W_{BBR}^{tot} быстро растет с увеличением n_{eff} . Поэтому полученные значения k_{AI}^{cb} более точны при $n_{eff} \leq 16$, в то время как с увеличением n_{eff} ошибка в определении k_{AI}^{cb} значительно растет. Следует отметить, что точность определения суммарной константы k_{AI}^{Σ} также зависит от точности, с которой известен параметр α . Поэтому, измерения k_{AI}^{cb} более надежны, чем измерения k_{AI}^{Σ} , которые зависят от величины α .

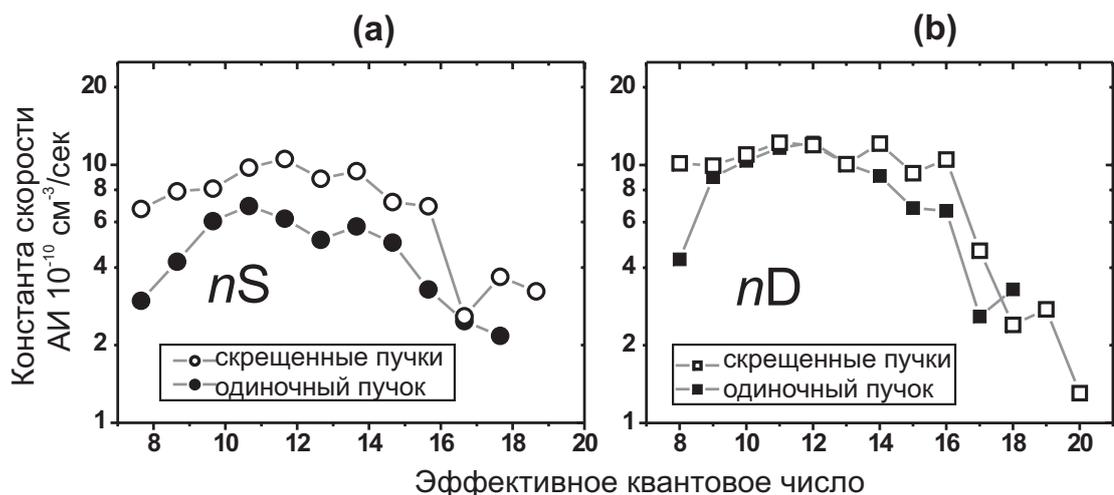


Рис. 4.6. Сравнение экспериментальных значений констант скорости ассоциативной ионизации в скрещенных пучках k_{AI}^{cb} (пустые кружки, незаполненные квадраты) для ридберговских nS (a) и nD (b) состояний с экспериментальными значениями констант скорости ионизации в одиночном пучке k_{AI}^{sb} (заполненные кружки, заполненные квадраты).

Мы считаем, что по абсолютной величине погрешность измеренных зависимостей k_{AI}^{cb} и k_{AI}^{Σ} лучше, чем 50% для $n \leq 16$, в то время как относительные зависимости (не зависящие от концентрации) имеют погрешность не более (10-20)%.

Для дальнейшего повышения точности измерений констант скорости AI по абсолютной величине необходимы надежные измерения концентрации атомов в основном состоянии в пучке. В работе [55] для измерения концентрации атомов в основном состоянии использовалась двухступенчатая ионизация атомов в основном состоянии, применение метода требовало использования расчетных сечений фотоионизации. В работе [56] для измерения концентрации использовалось пленение излучения, которое приводило к резкому увеличению жизни ЗР атомов натрия при достижении концентрации $n_{3S} = 10^{10} \text{ см}^{-3}$. В работе [123], выполненной при участии автора диссертации, были проведены измерения концентрации атомов натрия в сверхзвуковом атомном пучке по изменению спектра флуоресценции на D_1 и D_2 линиях натрия. Несмотря на свою техническую сложность, данный метод представляется перспективным.

Надежность измерений констант скорости АИ разработанным нами методом зависит от того, насколько точно известны значения скоростей ионизации ридберговских атомов тепловым излучением W_{BBR}^{tot} . Как уже было отмечено, в дальнейшем необходимо расширение диапазона экспериментально измеренных зависимостей W_{BBR}^{tot} от n , а также проведение измерений для nP состояний натрия, а также для nS , nP и nD состояний других щелочных металлов.

Таким образом, формы экспериментально измеренных зависимостей констант скорости ассоциативной ионизации от главного квантового числа близки в скрещенных пучках и в одиночном пучке. Наблюдается широкий максимум в области $n_{eff}=11-13$. По абсолютной величине, зависимости в скрещенных и одиночных пучках близки для nD состояний и отличаются для nS состояний. При низких энергиях столкновений в одиночном пучке ни модифицированная модель DSMJ, ни диффузионная модель не позволяют корректно описать формы экспериментально измеренных зависимостей констант скорости ионизации от n_{eff} . Обе модели предсказывают максимум в районе $n_{eff}=17$, в то время как в эксперименте наблюдается широкий максимум в районе $n_{eff}=11-13$. Тем не менее, при $n < 15$ диффузионная модель лучше согласуется с экспериментом, чем модель DSMJ. При тепловых энергиях столкновений между атомами из скрещенных пучков, суммарные скорости ионизации $k_{AI}^{\Sigma} = k_{AI}^{sb} + k_{AI}^{cb}$ и скорости ионизации в столкновениях атомов из разных пучков k_{AI}^{cb} лучше описываются диффузионной моделью, чем модифицированной моделью DSMJ. В то же время, относительные зависимости констант скорости ионизации k_{AI}^{cb} от n_{eff} лучше описываются модифицированной моделью DSMJ. Разработанная модель столкновительной ионизации значительно улучшает модель DSMJ, учитывая целый ряд эффектов, которые в модели DSMJ не рассматривались. Среди них наиболее существенны стохастическая диффузия ридберговского электрона по энергетическому спектру, предшествующая ионизации, и перемешивание ридберговских состояний тепловым излучением. Тем не менее, наблюдаемые расхождения в формах экспериментальных и теоретических зависимостей констант скорости ионизации от n_{eff} указывают на необходимость дальнейшего совершенствования теории. В частности, существующая теория не

учитывает влияния рассматриваемых стохастических эффектов на движение сталкивающихся ядер. Это может приводить к случайным изменениям электронного состояния квазимолекулы, образованной сталкивающимися атомами, что приводит к хаотическому изменению потенциалов межатомного взаимодействия и случайным изменениям траекторий сталкивающихся ядер. Эти эффекты особенно важны при рассмотрении медленных столкновений, включая столкновения холодных атомов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Настоящая диссертационная работа посвящена систематическому экспериментальному и теоретическому исследованию столкновительных и радиационных процессов с участием ридберговских атомов щелочных металлов в поле фонового теплового излучения. Основное внимание уделялось процессам ассоциативной ионизации ридберговских атомов в столкновениях, а также ионизации, индуцированной тепловым излучением. Были разработаны новые методы измерений констант скорости ионизации и проведены теоретические расчеты, позволившие учесть вклад индуцированного тепловым излучением перераспределения заселенности ридберговских состояний в измеряемые скорости процессов.

Основные результаты работы:

1. Разработан новый метод измерения констант скорости ассоциативной ионизации с использованием сигнала ионизации фоновым тепловым излучением в качестве опорного. Данный метод позволяет измерять абсолютные величины констант скорости ионизации и выделять вклад от столкновений атомов из различных пучков без измерения количества ридберговских атомов в объеме возбуждения.
2. Измерены зависимости скорости индуцированной фоновым тепловым излучением ионизации ридберговских nS и nD ($n=8-20$) атомов натрия от главного квантового числа n при температуре равновесного теплового излучения $T=300$ К. Обнаружено хорошее согласие с теоретическим расчетом для nD состояний при $n=8-20$ и nS состояний при $n=8-15$.
3. Измерены константы скорости ассоциативной ионизации ридберговских nS и nD атомов натрия в столкновениях с атомами в основном состоянии. Измерения проведены в одиночном и скрещенных атомных пучках для диапазона главных квантовых чисел $n=8-20$, который представляет наибольший интерес при сравнении с теорией. Обнаружено лучшее согласие эксперимента с диффузионной моделью ассоциативной ионизации по сравнению с базовой моделью DSMJ.

4. Модифицирована диффузионная модель столкновительной ионизации для учета влияния перемешивания ридберговских состояний тепловым излучением на измеряемые в экспериментах константы скорости ассоциативной ионизации.
5. В квазиклассической модели Дьячкова-Панкратова численно рассчитаны скорости тепловой ионизации ридберговских атомов щелочных металлов с учетом перемешивания ридберговских состояний тепловым излучением и полевой ионизации высоколежащих ридберговских состояний электрическим полем, применяемым в экспериментах для регистрации ионов.
6. На основе квазиклассической модели ГДК получены простые аналитические выражения для оценки скорости ионизации ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением с учетом квантового дефекта ридберговских состояний. Найдены коэффициенты для наилучшего согласования полученных выражений с точным численным расчетом.

В работе показано, что применение стохастической модели столкновительной ионизации позволяет улучшить согласие эксперимента и теории по сравнению с моделью DSMJ. В то же время, некоторые расхождения между теорией и экспериментом указывают на необходимость дальнейших исследований в этой области. В частности, в теоретической модели следует учесть влияние стохастической динамики ридберговского электрона на межъядерное движение, что может оказаться существенным для низких скоростей столкновений, например, в одиночном атомном пучке. В дальнейшем перспективны исследования столкновительной ионизации холодных ридберговских атомов в магнито-оптической ловушке.

Полученные нами данные (экспериментальные и теоретические) представляют также интерес для современных исследований ультрахолодной ридберговской плазмы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] “Ридберговские состояния атомов и молекул”: пер. С английского./под редакцией Р.Стеббинса и Ф.Даннинга. – М.: Мир, 1985. – 496 с., ил.
- [2] T.F.Gallagher “Rydberg atoms” Rep. Prog. Phys., 1988, v.51 pp.143-188.
- [3] P.Filipovicz, P.Meystre, G.Rempe and H.Walther, “Rydberg atoms. A testing ground for quantum electrodynamics”, Optica Acta, 1985, v.32, Nos 9/10, pp.1105-1123.
- [4] А.Н.Ключарев, Н.Н.Безуглов, «Процессы возбуждения и ионизации атомов при поглощении света», Л.: Изд-во Ленингр. Ун-та, 1983.-272 с.
- [5] А.Н.Ключарев, М.Л.Янсон «Элементарные процессы в плазме щелочных металлов», М.: Энергоатомиздат, 1988. – 224 с.
- [6] T. C. Killian, S. Kulin, S. D. Bergeson, L. A. Orozco, C. Orzel, and S. L. Rolston, “Creation of an ultracold neutral plasma”, Phys. Rev. Let., 1999, v.83, pp.4776-4779.
- [7] Eur. Phys. J. D, 2006, v.40, pp.1–80, topical issue on ultracold plasmas and cold Rydberg atoms, edited by P. Pillet and D.Comparat.
- [8] T.C.Killian, “Ultracold neutral plasmas”, Science, 2007, vol. 316. no. 5825, pp. 705 – 708.
- [9] M.P. Robinson, B.L. Tolra, M.W. Noel, T.F. Gallagher and P. Pillet, “Spontaneous Evolution of Rydberg Atoms into an Ultracold Plasma”, Phys. Rev. Let., 2000, v.85, pp.4466-4469.
- [10] T.C. Killian, M.J. Lim, S. Kulin, R. Dumke, S.D. Bergeson, and S.L. Rolston, “Formation of Rydberg Atoms in an Expanding Ultracold Neutral Plasma”, Phys. Rev. Let., 2001, v.86, pp.3759-3762.
- [11] T. Pohl, T. Pattard, and J.M. Rost, Phys. Rev. A, “Plasma formation from ultracold Rydberg gases”, 2003, v.68, pp.010703(R1-R4).
- [12] W. Li, M.W. Noel, M.P. Robinson, P.J. Tanner, T.F. Gallagher, D. Comparat, B.L. Tolra, N. Vanhaecke, T. Vogt, N. Zahzam, P. Pillet, D.A. Tate, “Evolution dynamics of a dense frozen Rydberg gas to plasma”, Phys. Rev. A, 2004, v.70, pp.042713(1-10).

- [13] J.L. Roberts, C.D. Fertig, M.J. Lim, and S.L. Rolston, “Electron Temperature of Ultracold Plasmas”, *Phys. Rev. Lett.*, 2004, v.92, pp.253003(1-4).
- [14] N. Vanhaecke, D. Comparat, D.A. Tate, and P. Pillet, “Ionization of Rydberg atoms embedded in an ultracold plasma”, *Phys. Rev. A*, 2005, v.71, pp.013416(1-4).
- [15] W. Li, P.J. Tanner, Y. Jamil, and T.F. Gallagher, “Ionization and plasma formation in high n cold Rydberg samples”, *Eur. Phys. J. D*, 2006, v.40, pp.27-35.
- [16] P.J. Tanner, J. Han, E.S. Shuman, and T.F. Gallagher, “Many-Body Ionization in a Frozen Rydberg Gas”, *Phys. Rev. Lett.*, 2008, v.100, pp.043002 (1-4).
- [17] Е.Л. Думан, И.П. Шматов, «Ионизация высоковозбужденных атомов в собственном газе», *ЖЭТФ*, 1980, т.78, вып. 6 с.2116-2125.
- [18] R.K. Janev and A.A. Mihajlov, “Resonant ionization in slow-atom-Rydberg-atom collisions”, *Phys. Rev. A*, 1980, v.21, pp.819-826.
- [19] A.A. Mihailov and R.K. Janev, “Ionisation in atom-Rydberg atoms collisions: ejected electron energy spectra and reaction rate coefficients”, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1981, v.14, pp.1639-1653.
- [20] Н.Н. Безуглов, В.М. Бородин, А.К. Казанский, А.Н. Ключарев, А.А. Матвеев и К.В. Орловский, «Анализ стохастических уравнений типа Фоккера-Планка с переменными граничными условиями в элементарном процессе столкновительной ионизации», *Опт. и спектр.*, 2001, т.91, с.25-33.
- [21] Н.Н. Безуглов, В.М. Бородин, А. Экерс и А.Н. Ключарев, «Квазиклассическое описание стохастической динамики ридберговского электрона в двухатомном квазимолекулярном комплексе», *Опт. и спектр.*, 2002, т.93, с.721-730.
- [22] Н.Н. Безуглов, В.М. Бородин, В. Грушевский, А.Н. Ключарев, К. Мичулис, Ф. Фузо, М. Аллегрини, «Диффузионная ионизация ридберговского двухатомного квазимолекулярного комплекса при столкновении атомов рубидия», *Опт. и спектр.*, 2003, т.95, с.556-565.
- [23] T.F. Gallagher and W.E. Cooke, “Interactions of Blackbody Radiation with Atoms”, *Phys. Rev. Lett.*, 1979, v.42, pp.835-839.

- [24] W.P. Spencer, A.G. Vaidyanathan, D. Kleppner, T.W. Ducas, "Ionization of Rydberg atoms by blackbody radiation", *Phys. Rev. A*, 1982, v.26, pp.1490-1493.
- [25] N.N. Bezuglov, A.N. Klucharev, and V.A. Sheverev, "On the possibility of the extraordinary low rate constants of some collision reactions in atomic beams", *J. Phys. B: At. Mol. Phys*, 1987, v.20, pp.2497-2513.
- [26] А.З. Девдариани, «Влияние особенностей упругого рассеяния на температурную зависимость константы скорости адиабатических реакций», *Опт. и спектр*, 1979, т.47, с.106-112.
- [27] B. Kaulakys, "Free electron model for collisional angular momentum mixing of high Rydberg atoms", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1991, v.24, L127-L132.
- [28] L.G. Dyachkov and P.M. Pankratov, "Semiclassical formula for radial integrals of bound-bound dipole transitions", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1991, v.24 pp.2267-2275.
- [29] L.G. Dyachkov, P.M. Pankratov, "On the use of the semiclassical approximation for the calculation of oscillator strengths and photoionization cross-sections", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1994, v.27, pp.461-472.
- [30] С.П. Гореславский, Н.Б. Делоне, В.П. Крайнов, *ЖЭТФ*, 1982, т.82, с.1789-1796.
- [31] P. Browning and P.E. Potter, "An assessment of the experimentally determined vapour pressures of the liquid alkali metals", 1985, *Handbook of Thermodynamic and Transport Properties of Alkali Metals* (Boston: IUPAC, Blackwell Scientific Publications) chapter 6.2.
- [32] Н. Рамзей, «Молекулярные пучки», пер. с англ., М., 1960.
- [33] E. Amaldi and E. Segre, *Nuovo Cimento*, 1934, v.11 p.145.
- [34] B. Hoglund and P.E. Metzger, *Science*, 1965, v.150 p.359.
- [35] A.R.P. Rau and M. Inokuti, "The quantum defect: Early history and recent developments", *Am. J. Phys.*, 1997, v.65, pp.221-225.
- [36] D.Hartree, "The wave mechanics of an atom with a non-Coulomb central field. III", *Proc. Cambridge. Philos. Soc.*, 1928, v.24, pp.426-439.
- [37] C.J. Lorenzen and K. Niemax, "Quantum Defects of the $n2P_{1/2}$, $3/2$ Levels in 39 KI and 85 Rb I", *Physica Scripta.*, 1983, v.27 pp.300-305.

- [38] С.Ф. Дюбко, М.Н. Ефименко, В.А. Ефремов, С.В. Поднос, «Квантовый дефект и тонкая структура термов ридберговских атомов NaI в S-, P-и D-состояниях», Квантовая электроника, 1995, т.22, вып.9, с.946-950.
- [39] G.D. Stevens, C.H. Lu, T. Bergeman, H.J. Metcalf, I. Seipp, K.T. Taylor, D. Delande, “Precision measurements on lithium atoms in an electric field compared with *R*-matrix and other Stark theories”, Phys. Rev. A., 1996, v.53, pp.1349-1366.
- [40] W. Li, I. Mourachko, M.W. Noel, and T.F. Gallagher, “Millimeter-wave spectroscopy of cold Rb Rydberg atoms in a magneto-optical trap: Quantum defects of the *ns*, *np*, and *nd* series” Phys. Rev. A, 2003, v.67, pp.052502 (1-7).
- [41] K.H. Weber and C.J. Sansonetti, “Accurate energies of *nS*, *nP*, *nD*, *nF*, and *nG* levels of neutral cesium”, Phys. Rev. A, 1987, v.35, pp.4650-4660.
- [42] Y. Li, W. Liu, and B. Li., “Positions and widths for anticrossings of potassium Rydberg Stark states”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 1996, v.29, pp.1433–1438.
- [43] R.C. Stoneman, M.D. Adams and T.F. Gallagher, “Resonant-collision spectroscopy of Rydberg atoms”, Phys. Rev. Let., 1987, v.58, pp.1324-1327.
- [44] G.L. Snitchler and D.K. Watson, “Determination of accurate quantum defects and wavefunctions for alkali Rydberg states with high principal quantum numbers”, J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1986, v.19, pp.259-268.
- [45] H.R. Thorsheim, Y. Wang, and J. Weiner, “Cold collisions in an atomic beam”, Phys. Rev. A, 1990, v.41, pp.2873-2876.
- [46] J. Weiner, V.S. Bagnato, S. Zilio and P.S. Julienne, “Experiments and theory in cold and ultracold collisions”, Rev. Mod. Phys., 1999, v.71 pp.1-85.
- [47] G.D. Telles, L.G. Marcassa, S.R. Muniz, S.G. Miranda, A. Antunes, C. Westbrook, and V.S. Bagnato, “Inelastic cold collisions of a Na/Rb mixture in a magneto-optical trap”, Phys. Rev. A, 1999, v.59, pp. R23-R26.
- [48] R.A.D.S. Zanon, K.M.F. Magalhaes, A.L. de Oliveira, and L.G. Marcassa, “Time-resolved study of energy-transfer collisions in a sample of cold rubidium atoms”, Phys. Rev. A, 2002, v.65, pp.023405(1-4).
- [49] V.A. Nascimento, M. Reetz-Lamour, L.L. Caliri, A.L. de Oliveira, and L.G. Marcassa, “Motion in an ultralong-range potential in cold-Rydberg-atom collisions”, Phys. Rev. A, 2006, v.73, pp.034703(1-3).

- [50] B. Knuffman and G. Raithel, “Level shifts of rubidium Rydberg states due to binary interactions”, *Phys. Rev. A*, 2006, v.73 pp.020704(R1-R4).
- [51] R.F. Stebbings, C.J. Latimer, W.P. West, F.B. Dunning, T.B. Cook, “Studies of xenon atoms in high Rydberg states”, *Phys. Rev. A*, 1975, v.12, pp.1453-1458.
- [52] T. Ducas, M.G. Littman, R.R. Freeman, D. Kleppner, “Stark Ionization of High-Lying States of Sodium”, *Phys. Rev. Lett.*, 1975, v.35, pp.366-369.
- [53] T.F. Gallagher, L.M. Humphrey, R.M. Hill, S.A. Edelstein, “Field ionization of highly excited states of sodium”, *Phys. Rev. Lett.*, 1976, v.37, pp.1465-1467.
- [54] J.L. Dexter and T.F. Gallagher, “Field ionization of the $n= 8-15$ states of sodium”, *Phys. Rev. A*, 1987, v.35, pp.1934-1936.
- [55] J. Boulmer, R. Bonanno, J. Weiner, “Crossed-beam measurements of absolute rate coefficients in associative ionisation collisions between $\text{Na}^*(np)$ and $\text{Na}(3s)$ for $5 \leq n \leq 15$ ”, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1983, v.16 pp.3015-3024.
- [56] J. Weiner, J. Boulmer, “Associative ionisation rate constants as a function of quantum numbers n and l in $\text{Na}^*(nl)+\text{Na}(3s)$ collisions for $17 \leq n \leq 27$ and $l=0, l=1$ and $l \geq 2$ ”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1986, v.19, pp.599-609.
- [57] C.E. Burkhardt, M. Ciocca, J.J. Leventhal, J.D. Kelley, “Role of the valence electron in reactive processes: Penning ionization by a Rydberg atom”, *Phys. Rev. Lett.*, 1990, v.65, pp.2351-2354.
- [58] M.T. Djerad, M. Cheret and F. Gounand, “Exchange and direct mechanisms in heteronuclear alkali Penning ionisation”, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1987, v.20, pp.3801-3810.
- [59] Lj.M. Ignjatovic, A.A. Mihajlov, and A.N. Klucharev, “The rate coefficients of the chemi-ionization processes in slow $\text{Li}(n)+\text{Na}$ collisions”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2008, v.41, pp.025203 (1-7).
- [60] Б.М. Смирнов. «Асимптотические методы в теории атомных столкновений», М.: Атомиздат, 1973.-296 с.
- [61] I.I. Ryabtsev, D.B. Tretyakov, I.I. Beterov, N.N. Bezuglov, K. Miculis and A. Ekers, “Collisional and thermal ionization of sodium Rydberg atoms: I. Experiment for nS and nD atoms with $n = 8-20$ ”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2005, v.38, S17-S35.
- [62] K. Miculis, I.I. Beterov, N.N. Bezuglov, I.I. Ryabtsev, D.B. Tretyakov, A. Ekers and A.N. Klucharev, “Collisional and thermal ionization of sodium Rydberg

- atoms: II. Theory for nS , nP and nD states with $n = 5-25$ ”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2005, v.38 pp.1811-1831.
- [63] I.I. Beterov, D.B. Tretyakov, I.I. Ryabtsev, N.N. Bezuglov, K. Miculis, A. Ekers, and A.N. Klucharev, “Collisional and thermal ionization of sodium Rydberg atoms III. Experiment and theory for nS and nD states with $n = 8-20$ in crossed atomic beams”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2005, v.38, pp.4349-4361.
- [64] I.I. Beterov, D.B. Tretyakov, I.I. Ryabtsev, N.N. Bezuglov, K. Miculis, A. Ekers and A.N. Klucharev, “Collisional and thermal ionization of sodium Rydberg atoms in single and crossed atomic beams”, Proceedings of SPIE, 2006, v.6257, pp.62570B(1-12).
- [65] A.N. Klucharev, A.V. Lazarenko and V. Vujnovic, “The ionisation rate coefficients of radiatively excited rubidium atoms $Rb(n^2P)+Rb(5^2S)$ ”, J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1980, v.13, pp.1143-1149.
- [66] M. Cheret, A. Spielfiedel, R. Durand and R. Deloche, “Collisional ionization of highly excited rubidium S state”, J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1981, v.14, pp. 3953-3959.
- [67] M. Cheret, L. Barbier, W. Lindinger and R. Deloche, “Penning and associative ionisation of highly excited rubidium atoms” J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1982, v.15, pp.3463-3477.
- [68] L. Barbier and M. Cheret, “Experimental study of Penning and Hornbeck-Molnar ionization of rubidium atoms excited to a high s or d level ($5d \leq nl \leq 11s$)”, J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1987, v.20, pp.1229-1248.
- [69] P.P. Herrmann, J.F. Hoffnagle, N. Schlumpf, D. Taqqu, V.L. Telegdi and A. Weis, “Collisional ionisation probabilities of highly excited $S_{1/2}$, $D_{3/2}$ and $D_{5/2}$ states of caesium”, J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1986, v.19, pp.1675-1684.
- [70] S.B. Zagrebin, A.V. Samson, “Collisional ionisation of selectively excited sodium in an atomic beam”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 1985, v.18, L217-L220.
- [71] С.Б.Загребин, А.В.Самсон, «Исследование процессов ионизации при оптическом возбуждении пучка атомов металлов», Письма в Журн. Тех. Физ., 1984, т.10, вып.2, с.114-117.
- [72] M.X. Wang and J. Weiner, “The determination of associative ionisation rate coefficients in cell, inter-beam and intra-beam collisions between excited and

- ground-state sodium atoms”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1987, v.21, L15-L17.
- [73] P.L. Gould, P.D. Lett, P.S. Julienne, W.D. Phillips, H.R. Thorsheim, and J. Weiner, “Observation of associative ionization of ultracold laser-trapped sodium atoms” *Phys. Rev. Lett.*, 1988, v.60, pp.788-791.
- [74] S. Haroche, C. Fabre, M. Goy, M. Gross, J.M Raimond, “Rydberg States and Microwaves: High Resolution Spectroscopy, Masers and Superradiance”, *Laser Spectroscopy IV*, Springer Series in Optical Sciences, 1979, v.21. p.244, Edited by H.Walther and K.W.Rothe, Berlin, Springer-Verlag.
- [75] C.E. Theodosiou, “Lifetimes of alkali-metal atom Rydberg states”, *Phys. Rev. A*, 1984, v.30, pp.2881-2909.
- [76] E.J. Beiting, G.F. Hildebrandt, F.G. Kellert, G.W. Foltz, K.A. Smith, F.B. Dunning, R.F. Stebbins, “The effects of 300 K background radiation on Rydberg atoms”, *J. Chem. Phys.*, 1979, v.70, pp.3551-3554.
- [77] J.W. Farley, W.H. Wing, “Accurate calculation of dynamic Stark shifts and depopulation rates of Rydberg energy levels induced by blackbody radiation. Hydrogen, helium, and alkali-metal atoms”, *Phys. Rev. A*, 1981, v.23, pp.2397-2424.
- [78] M.L. Zimmerman, M.G. Littman, M.M. Kash, D. Kleppner, “Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms”, *Phys. Rev. A*, 1979, v.20, pp.2251-2275.
- [79] E.J. Galvez, J.R. Lewis, B. Chaudhuri, J.J. Rasweiler, H. Latvakoski, F. De Zela, E. Massoni, and H. Castillo, “Blackbody-radiation-induced resonances between Rydberg-Stark states of Na”, *Phys. Rev. A*, 1995, v.51, pp.4010-4017.
- [80] H. Van Regermorter, Hoang Bing Dy, M. Prud’homme, “Radial transition integrals involving low and high effective quantum numbers in the Coulomb approximation”, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1979, v.12, pp.1053-1061.
- [81] E.J. Galvez, C.W. MacGregor, B. Chaudhuri, S. Gupta, E. Massoni, and F. De Zela, “Blackbody-radiation-induced resonances between Rydberg-Stark states of Na”, *Phys. Rev. A*, 1997, v.55, pp.3002-3006.
- [82] J.C.J. Koelemeij, B. Roth, and S. Schiller, “Blackbody thermometry with cold molecular ions and application to ion-based frequency standards”, *Phys. Rev. A*, 2007, v.76, pp.023413(1-6).

- [83] C.E. Burkhardt, R.L. Corey, W.P. Garver, J.J. Leventhal, M. Allegrini, L. Moi, “Ionization of Rydberg atoms”, *Phys. Rev. A*, 1986, v.34, pp.80-86.
- [84] G.W. Lehman, “Rate of ionisation of H and Na Rydberg atoms by black-body radiation”, *J. Phys. B: At. Mol. Phys*, 1983, v.16, pp.2145-2156.
- [85] M. Allegrini, E. Arimondo, E. Menchi, C.E. Burkhardt, M. Ciocca, W.P. Garver, S. Gozzini, J.J. Leventhal, J.D. Kelley, “State mixing in collisions involving highly excited barium atoms”, *Phys. Rev. A*, 1988, v.38, pp.3271- 3279.
- [86] J.H. Hoogenraad, R.B. Vrijen, P.W. van Amersfoort, A.F.G van der Meer, and L.D. Noordam, “Far-Infrared Multiphoton Ionization of Lithium Rydberg Atoms Bypassing a Cooper Minimum”, *Phys. Rev. Let.*, 1995, v.75, pp. 4579-4582.
- [87] J.H. Hoogenraad and L.D. Noordam, “Dipole matrix elements of H, Li, and Rb I. Rydberg atoms in far-infrared radiation fields.”, *Phys. Rev. A*, 1998, v.57, pp.4533-4545.
- [88] J.H. Hoogenraad, R.B. Vrijen and L.D. Noordam, “Rydberg atoms in far-infrared radiation fields. II. Wave packet dynamics”, *Phys. Rev. A*, 1998, v. 57, pp.4546-4552.
- [89] G.M. Lankhuijzen, M. Drabbels, F. Robicieux, and L.D. Noordam, “Decay of oriented Rydberg wave packets excited with far-infrared radiation”, *Phys Rev.A*, 1998, v.57 pp.440-445.
- [90] У.Фано и Дж.Купер, «Спектральное распределение сил осцилляторов в атоме», Пер. с англ, М.: “Наука”, 1972.
- [91] N.B. Delone S.P. Goreslavsky, and V.P. Krainov, “Quasiclassical dipole matrix elements for atomic continuum states”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1989, v.22, pp.2941-2945.
- [92] I.L. Glukhov and V.D. Ovsiannikov, “Black-body induced ionization rate of Rydberg states in helium”, *Proc. SPIE*, 2007, v.21, pp.6726(F1-F5).
- [93] В.Д. Овсянников, И.Л. Глухов, «Время жизни ридберговского атома», *Вестник Воронежского Ун-та, Серия Физика, Математика*, т.2, 2006, стр. 99-106.
- [94] A. Burgess and M.J. Seaton, “Cross-sections for photoionization from valence-electron states”, *Rev. Mod. Phys.*, 1958, v.30, pp.992-993.

- [95] I.I. Beterov, D.B. Tretyakov, I.I. Ryabtsev, A. Ekers, N.N. Bezuglov, "Ionization of sodium and rubidium nS , nP , and nD Rydberg atoms by blackbody radiation", Phys. Rev. A, 2007, v.75 pp.052720(1-13).
- [96] И.И. Бетеров, И.И. Рябцев, Д.Б. Третьяков, Н.Н. Безуглов, А. Экерс, «Ионизация ридберговских nS , nP и nD ридберговских атомов лития, цезия и калия тепловым излучением», принято в печать, ЖЭТФ, 2008.
- [97] И.И. Бетеров, И.И. Рябцев, Д.Б. Третьяков, В.М. Энтин, «Фотоионизация ридберговских nS , nP и nD ридберговских атомов щелочных металлов тепловым излучением», Вестник Новосибирского Ун-та, Серия Физика, 2008, т.3, вып.1, стр.84-90.
- [98] J. Boulmer and J. Weiner, "Production of Na_2^+ by crossed-beam collisions in the presence of intense, nonresonant radiation", Phys. Rev. A, 1983, v.27, pp.2817-2825.
- [99] C.E. Burkhardt, W.P. Garver, J.J. Leventhal, "Off-resonance production of ions in laser-excited sodium vapor", Phys. Rev. A, 1985, v.31, pp.505-508.
- [100] Н.Н. Безуглов, В.М. Бородин, А.Н. Ключарев, К.В. Орловский и М. Аллегрини, «К вопросу расчета констант хемоионизации при субтепловых столкновениях ридберговских атомов», Опт. и спектр., 1997, т.82, с.368-372.
- [101] В.С. Лебедев и В.С. Марченко, «Нерезонансное столкновительное перемешивание ридберговских уровней атома в модели псевдопотенциала Ферми», ЖЭТФ, 1985, т.88, с.754-770.
- [102] В.С. Лебедев и В.С. Марченко, «Столкновительное тушение ридберговских атомов при наличии резонанса на квазидискретном уровне возмущающей частицы», ЖЭТФ, 1986, т.91, с.428-443.
- [103] И.И. Собельман. «Введение в теорию атомных спектров», М.:Физматгиз, 1963.-640 с., ил.
- [104] N.B. Delone, S.P. Goreslavsky, and V.P. Krainov, "Dipole matrix elements in the quasiclassical approximation", J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 1994, v.27, pp.4403-4419.
- [105] Н.Б. Делоне, В.П. Крайнов, Д.Л. Шепелянский, «Высоковозбужденный атом в электромагнитном поле», Успехи физических наук, 1983, т.140, вып.3, с.355-392.

- [106] M.G. Zaslavsky, "Physics of Chaos in Hamiltonian systems", 1998 (Imperial College Press, River Edge, N.J.).
- [107] L.E. Reichl, "The Transition to Chaos In Conservative Classical Systems: Quantum manifestations", 1992 (Springer, New York).
- [108] R.V. Jensen, S.M. Susskind, and M.M. Sanders, "Chaotic ionization of highly excited hydrogen atoms: comparison of classical and quantum theory with experiment", Phys. Rep., 1991, v.201, pp.1-56.
- [109] D.U. Matrasulov, "Diffusive ionization of a relativistic hydrogenlike atom", Phys. Rev. A, 1999, v.60 pp.700-703.
- [110] F. Benvenuto, G. Casati, D.L. Shepelyansky, "Chaos in a quasiclassical hadronic atom", Phys. Rev. A, 1996, v.53, pp.737-743.
- [111] Н.Б.Делоне, Б.А.Зон, В.П. Крайнов, «Диффузионный механизм ионизации высоковозбужденных атомов в переменном электромагнитном поле», ЖЭТФ, 1978, т.75, с.445-453.
- [112] E.I. Dashevskaya, I. Litvin, E.E. Nikitin, I. Oref, and J. Troe, "Classical diffusion model of vibrational predissociation of van der Waals complexes: truncated mean first passage time approximation", Phys. Chem. Chem. Phys., 2000, v.2, pp.2251-2258.
- [113] I.L. Beigman and V.S. Lebedev, "Collision theory of Rydberg atoms with neutral and charged particles", Phys. Rep., 1995, v.250 pp. 95-328.
- [114] Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский, «Физическая кинетика», М.: Наука 1979.- 528 с.
- [115] В.А. Давыдкин и Б.А. Зон, «Радиационные и поляризационные характеристики ридберговских состояний атомов», Опт. и спектр., 1981, т.51 с.25-30.
- [116] Н.Н. Безуглов, В.М. Бородин, "Обобщенный принцип соответствия для квазиклассических матричных элементов дипольного момента", Опт. и спектр., 1999, т.86, с.533-539.
- [117] M. Aymar, "Influence of core-polarization effects on the photoionisation cross-sections of the ground-level and excited ns levels of neutral sodium", J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1978, v.11, pp.1413-1423.
- [118] J. Javanainen, "Numerical experiments in semiclassical laser-cooling theory of multistate atoms", Phys. Rev. A, 1992, v.46, pp.5819-5835.

- [119] T. Amthor, M. Reetz-Lamour, C. Giese and M. Weidemuller, “Modeling many-particle mechanical effects of an interacting Rydberg gas”, *Phys. Rev. A*, 2007, v.76, pp.054702(1-4).
- [120] A.N. Nesmeyanov, 1963, “Vapour pressure of the chemical elements” (Elsevier, Amsterdam / London / New York).
- [121] T. Wang, S.F. Yelin, R. Côté, E.E. Eyler, S.M. Farooqi, M. Koštrun, D. Tong, and D. Vrinceanu, “Superradiance in ultracold Rydberg gases”, *Phys. Rev. A*, 2007, v.75, pp.033802(1-4).
- [122] I.I. Ryabtsev, D.B. Tretyakov, I.I. Beterov, V.M. Entin, “Effect of finite detection efficiency on the observation of the dipole-dipole interaction of a few Rydberg atoms”, *Phys. Rev. A*, 2007, v.76, pp.012722(1-9).
- [123] I. Sydoryk, N.N. Bezuglov, I.I. Beterov, K. Miculis, E. Saks, A. Janovs, P. Špels, A. Ekers, “Broadening and intensity redistribution in the Na(3p) hyperfine excitation spectra due to optical pumping in the weak excitation limit”, submitted to *Phys. Rev. A*, 2008, <http://arxiv.org/abs/0802.0779>.