

UNIVERZITET U BEOGRADU

FIZIČKI FAKULTET

Andrej B. Bunjac

Izračunavanje naseljenosti atomskih stanja, ugaone raspodele i energijskog spektra fotoelektrona kod atomskih sistema u jakim laserskim poljima primenom vremenski zavisnih metoda

DOKTORSKA DISERTACIJA

Beograd, 2018.

UNIVERSITY OF BELGRADE

FACULTY OF PHYSICS

Andrej B. Bunjac

**The calculation of atomic state
populations, angular distributions and
energy spectra of photoelectrons for
atomic systems in strong laser fields
using time dependant methods**

DOCTORAL DISSERTATION

Belgrade, 2018.

Komisija za odbranu doktorske disertacije:

Mentor:

Nenad Simonović

naučni savetnik, Institut za fiziku, Univerzitet u Beogradu

Članovi komisije:

Tasko Grozdanov

naučni savetnik, Institut za fiziku, Univerzitet u Beogradu

Goran Poparić

vanredni profesor, Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu

Vladimir Milosavljević

redovni profesor, Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu

Datum odbrane:

Duboko se zahvaljujem svom mentoru dr Nenadu Simonoviću, na velikom angožavanju, strpljenju i izvanrednom pedagoškom radu tokom rukovođenja ovom disertacijom.

Takođe, zahvaljujem se dr Duški Popović na velikoj podršci i doprinosu tokom izrade teze.

Zahvaljujem se i dr Bratislavu Marinkoviću i dr Tasku Grozdanovu, svim članovima Laboratorije za atomske sudarne procese, kao i dr Nataši Nedeljković bez čije podrške rad na ovoj tezi ne bi bio moguć.

Konačno, zahvaljujem se svojoj porodici i prijateljima, na podršci, strpljenju i razumevanju.

Izračunavanje naseljenosti atomskih stanja, ugaone raspodele i energijskog spektra fotoelektrona kod atomskih sistema u jakim laserskim poljima primenom vremenski zavisnih metoda

Rezime

Predmet ove doktorske disertacije je proučavanje procesa jonizacije kod atomskih sistema izloženih jakim laserskim poljima. Sa teorijskog stanovišta, zbog velikog intenziteta laserskog polja, proučavanje ovih procesa zahteva napuštanje tradicionalnog pristupa preko teorije perturbacija. Umesto toga primenjenivani su metodi rešavanja vremenski zavisne Šredingerove jednačine metodom evolucije talasnog paketa. U zavisnosti od parametara polja, proučavanje ovih procesa može se podeliti na režim tuneliranja i režim multifotonske jonizacije.

U okviru tunel režima, računat je energijski spektar i stope jonizacije za atom natrijuma i ispitivan je domen primenljivosti kvazistatičke aproksimacije za tretiranje vremenski zavisnog polja niske frekvencije. Dobijeni rezultati poređeni su sa poznatim analitičkim teorijama kao i rezultatima dobijenim drugim numeričkim metodama.

U okviru režima multifotonske jonizacije, računate su naseljenosti pobuđenih stanja, verovatnoće jonizacije, energije u ugaone raspodele fotoelektrona za atome natrijuma i litijuma u širokom opsegu frekvencija i jačina spoljašnjeg polja. Pored toga, proučavani su efekti jonizacije preko praga (ATI) i rezonantno pojačane multifotonske jonizacije (REMPI), a predstavljen je i metod za izračunavanje dinamičkog Štarkovog pomaka atomskih stanja. Rezultati su poređeni sa nedavno objavljenim eksperimentalnim podacima sa kojima su u odličnom slaganju.

Naučna oblast: Fizika

Polje naučne specijalizacije: Fizika atoma i molekula

UDK broj:

The calculation of atomic state populations, angular distributions and energy spectra of photoelectrons for atomic systems in strong laser fields using time dependant methods

Summary

The subject of this dissertation is the study of ionization processes in atomic systems exposed to strong laser fields. From a theoretical point of view, because of the high intensity of the laser field, the study of such processes requires abandoning the traditional approach using the theory of perturbations. Instead, we were solving the time-dependent Schrodinger equation by methods of wave-packet evolution. Depending on the field parameters, these processes can be categorized into the regime of tunnel ionization and the regime of multiphoton ionization.

In the tunnel-ionization regime, we calculated the energy spectrum and ionization rates for sodium and examined the boundaries of applicability of the quasistatic approximation for the treatment of a low frequency time-dependent field. The results obtained were compared with known analytical theories and the results obtained through other numerical methods.

In the multiphoton-ionization regime, we calculated the populations of excited states, ionization probabilities, energies and angular distributions of photoelectrons for sodium and lithium atoms in an external field (in a broad range of frequencies and field strengths). We also studied the effects of above-threshold ionization (ATI) and resonantly enhanced multiphoton ionization (REMPI) and presented a method for calculation of the dynamic Stark shift of atomic states. The results were compared with recently published experimental data and are in excellent agreement.

Scientific field: Physics

Field of scientific specialization: Atomic and molecular physics

UDC number:

Sadržaj

1	Uvod	1
2	Štarkov pomak	5
2.1	Statički Štarkov pomak i cepanje nivoa kod atoma vodonika	5
2.1.1	Šredingerova jednačina atoma vodonika u paraboličkim koordinatama	6
2.1.2	Linearni Štarkov pomak kod atoma vodonika	9
2.1.3	Kvadratni Štarkov pomak kod atoma vodonika	10
2.2	Statički Štarkov pomak kod višeelektronskih atoma	11
2.3	Dinamički Štarkov pomak	12
2.3.1	Metod vremenski zavisnih koeficijenata	13
2.3.2	Floquet-ova teorija i spektar kvazienergija	14
2.3.3	Veza frekvencije polja i energija prelaza atoma	15
2.3.4	Analitičko rešenje u sistemu sa jednim stanjem	16
2.3.5	Perturbacija nedegenerisanih nivoa u slabom promenljivom polju	17
2.3.6	Kinetička energija elektrona izbačenih jonizacijom atoma u promenljivom polju	19
2.4	Rezonantni dinamički Štarkov pomak	20
2.4.1	Sistem sa dva nivoa u rezonantnom polju	21
3	Analitički opis jonizacionih procesa	25
3.1	Režimi jonizacije i Keldišev parametar	25
3.2	Tunel jonizacija kod atoma vodonika	26
3.3	ADK teorija	28
4	Metodi propagacije talasnog paketa	31
4.1	Šredingerova jednačina i modelni potencijal	31

4.1.1	Efektivni potencijal valentnog elektrona u polju atomskog ostatka i spoljašnjeg polja	31
4.2	Vremenski zavisan opis dinamike valentnog elektrona	33
4.3	Određivanje talasnih funkcija neperturbovanog sistema	34
4.4	Numerički metodi	35
4.4.1	Metod konačnih razlika prvog reda	35
4.4.2	Krank-Nikolsonov metod	37
4.4.3	Metod konačnih razlika drugog reda	38
4.4.4	Metod razdvojenog operatora	39
4.4.5	Diskretizacija u vremenski zavisnim metodama	41
5	Kvazistatički procesi kod atoma natrijuma	43
5.1	Kvazistatička aproksimacija	43
5.2	Autokorelaciona funkcija i stopa jonizacije	45
5.3	Rezultati	46
6	Multifotonski procesi kod atoma natrijuma	53
6.1	Selekciona pravila	54
6.2	Verovatnoće ekscitacije i jonizacije	54
6.3	Dinamički Štarkov pomak	56
6.4	Metoda vremenski zavisnih koeficijenata	58
6.5	Rezultati	60
6.5.1	Verovatnoće prelaza i rezonantni dinamički Štarkov pomak za stanja sa $n \leq 6$ - metod propagacije talasnog paketa	60
6.5.2	Verovatnoće prelaza - metod vremenski zavisnih koeficijenata	64
6.5.3	Analiza fotoelektronskog spektra atoma natrijuma pri dejstvu po- lja frekvencije od 800 nm	66
7	Jonizacija preko praga kod atoma natrijuma i litijuma	69
7.1	Šema ekscitacija i energija fotoelektrona	71
7.2	Furijeov transform u cilindričnim koordinatama	72
7.3	Impulsna raspodela fotoelektrona	73
7.4	Rezultati	74
7.4.1	Natrijum u promenljivom električnom polju	74
7.4.2	REMPI kod natrijuma pri pulsu od 760 nm	76
7.4.3	REMPI kod natrijuma pri pulsu od 800 nm	79

7.4.4 Impulsna raspodela fotoelektrona atoma litijuma pod dejstvom jakog laserskog polja	81
8 Zaključak	85
Dodaci	87
A Računanje izvoda formulama višeg reda	89
B Računanje brzog Furijeovog transformata	91
C Računanje dipolnih matričnih elemenata	93
D Računanje neperturbovanih talasnih funkcija valentnog elektrona	97
E SOD kod za evoluciju talasnog paketa	99
9 Bibliografija	111
10 Biografija autora	119

Glava 1

Uvod

Interakcija laserskog zračenja visokog intenziteta sa atomskim i molekulskim sistemima jedna je od oblasti savremena fizike koja je poslednjih nekoliko decenija postigla ogroman napredak i čiji se razvoj i dalje nastavlja velikom brzinom. Iako izum lasera datira već pola veka unazad, intenzivni femto- i ato-sekundni laseri u različitim frekventnim oblastima od infracrvenog do X-zračenja proizvod su tehnološkog razvoja u poslednje dve decenije. Pored pomenutih karakteristika lasera nove generacije treba pomenuti i napredak u postizanju pune kontrole faze laserskog impulsa te mogućnost formiranja kratkih izolovanih impulsa ili njihovih serija. Jedan od najvećih koraka u tom pravcu je konstrukcija takozvanog lasera sa slobodnim elektronima (free-electron laser - FEL), posebno u oblasti X-zračenja (XFEL). Pomenuti tehnološki napredak svakako je jedan od najznačajnijih faktora koji je uticao na brz razvoj i značajna otkrića u naučnoj oblasti koja je tema ovog doktorata.

Jedan od tipičnih procesa iz ovog domena koji je široko izučavan je multifotonska jonizacija atoma i molekula, odnosno multifotonsko "otkidanje" (detachment) elektrona od negativnog jona. Za razliku od obične jednofotonske jonizacije, verovatnoća za multifotonsku jonizaciju pri malim intenzitetima je praktično zanemarljiva, odakle je jasno zbog čega je bilo neophodno unaprediti lasersku tehnologiju. Sa teorijskog stanovišta proučavanje ovog procesa, zbog velikih intenziteta polja, zahteva napuštanje tradicionalnog prilaza preko teorije perturbacija. Prva uspešna teorija koje je otišla dalje od perturbacionog prilaza bila je Keldiševa teorija [1], a zatim su sledile i Fajzalova [2] i Rajsova teorija [3, 4]. Koristeći Keldiševu aproksimaciju dobijeno je da se pri visokim intenzitetima i velikim talasnim dužinama polja ukupna stopa jonizacije ponaša slično kao stopa jonizacije u statičkom električnom polju [1]. Odatle su proistekle teorije bazirane na tuneliranju elektrona kroz barijeru formiranu superpozicijom kulonskog po-

tencijala atomskog ostatka i spoljašnjeg električnog polja, među kojima su najpoznatije teorije Perelomov-Popov-Terenteva (PPT) [5] i Amosov-Delone-Krainova (ADK) [6]. Jednostavnost izraza za stopu tuneliranja i njegova široka primenljivost objašnjavaju popularnost ovih teorija, međutim sam koncept tuneliranja ima ograničen opseg primene [7]. U tom smislu danas govorimo o dva osnovna režima jonizacije u jakim poljima - režimu tuneliranja i multifotonskom režimu. Oni se mogu okarakterisati vrednostima Keldiševog parametra $\gamma = \omega\sqrt{2I_p}/F$ (radi jednostavnosti, u svim formulama biće korišćene atomske jedinice $e = m_e = \hbar = 4\pi\epsilon_0 = 1$), gde su ω i F frekvencija i amplituda električne komponente laserskog polja, a I_p vrednost jonizacionog potencijala atoma (ili, u opštem slučaju, energija veze elektrona u atomskom ili molekulskom sistemu). Ako je $\gamma \ll 1$ (što odgovara poljima veoma velikog intenziteta i male frekvencije), procesi se odvijaju u kvazistatičkom režimu gde su tuneliranje elektrona ili jonizacija preko barijere (over-barrier ionization - OBI) dominantni procesi. S druge strane, ako je $\gamma \gg 1$ (slabija polja, veće frekvencije), procesi se odvijaju u multifotonskom režimu u kom izbačeni elektroni dobijaju energiju apsorpcijom određenog broja fotona pri čemu ne dolazi do značajne deformacije atomskog potencijala od strane spoljašnjeg polja. Popularnosti Keldiševe tunel-jonizacije značajno su doprenili pionirski eksperimenti sa, za to vreme snažnim, CO₂ laserima [8, 9].

Pored ova dva tipična režima jonizacije u jakim poljima, poslednjih nekoliko decenija istraživanja su se proširila na čitav niz složenijih procesa i efekata. Među njima pomenućemo jonizaciju iznad praga (above threshold ionization - ATI) kada atomski ili molekulski sistem apsorbuje više fotona nego što je energijski neophodno, generisanje visokih harmonika (high-harmonic generation - HHG), nesekvencijalnu dvostruku jonizaciju (non-sequential double ionization - NSDI), atomsku stabilizaciju, itd. Ono što je sa teoriskog stanovišta zajedničko za ove procese je da se ne mogu opisati koristeći teoriju perturbacija ili neki drugi aproksimativni prilaz već zahtevaju primenu egzaktnijih metoda. Ovi metodi se uglavnom zasnivaju na vremenski zavisnom prilazu (rešavanje vremenski zavisne Šredingerove jednačine) ili Flokeovoj teoriji (neperturbativni prilaz) i zahtevaju numeričko rešavanje odgovarajućih jednačina.

Kao što je pomenuto, u novom milenijumu su se pojavili novi alati za ispitivanje procesa u jakim poljima: laseri koji generišu ultrabrze svetlosne impulse [10] kao što je COLTRIMS ili slični uređaji [11], zatim impulse trajanja nekoliko perioda polja [10] te one sa strogo kontrolisanom fazom [12, 13, 14], snažni laseri u srednjoj infracrvenoj oblasti [15, 16, 17] itd. Kao posledica toga u poslednjih 15-ak godina pojavilo se obilje novih otkrića i rezultata kao što su: efekti apsolutne faze [18], dugotalasno skalira-

nje ATI [19, 20], atosekundna generacija [21] ato-cvrkutanje [22], impulsna distribucija preostalih jona [23], univerzalna niskoenergijska struktura pri jakim poljima [24], skeniranje molekularnih orbitala pomoću visokih harmonika [25, 26], impulsna distribucija fotoelektrona, nelinearna optika u XUV i X-oblastima [27], nesekvencijalna višestruka jonizacija, merenje vremena kašnjenja jonizacije [28] itd.

Opšti cilj istraživanja ove disertacije je opis i analiza fragmentacionih procesa različitih atomskih sistema u jakim laserskim poljima (fotojonizacija atoma i molekula, fotootkidanje elektrona od jona, fotojonizacija i fotodisocijacija molekula), određivanje vrednosti fizičkih veličina i drugih podataka koji ih karakterišu, te njihova primena u objašnjavanju i predviđanju složenijih procesa i efekata koji su njihova posledica. Osobine navedenih procesa u značajnoj meri zavise od frekvencije i intenziteta laserskog zračenja pri čemu se, kao što je navedeno u prethodnom odeljku, mogu razlikovati dva osnovna režima - režim tuneliranja i multifotonski režim. Glavne veličine koje se kod ovih procesa računaju su verovatnoća (stopa) fragmentacije, ugaone raspodele izlaznih elektrona i njihove energije, kao i verovatnoće nalaženja atomskog sistema u pobuđenim stanjima, sve u funkciji frekvencije, intenziteta i polarizacije zračenja. Na osnovu dobijenih rezultata moguće je dalje proučavati različite efekte i složenije procese kod ovih sistema (HHG, NSDI, atomska stabilizacija, disocijativna jonizacija itd.).

U glavi 2 biće reči o teorijskom zasnivanju Štarkovog pomaka, prvo kod atoma vodonika pa zatim kod vodoniku sličnih atoma kao i o različitim pristupima pri računanju statičkog i dinamičkog kao i rezonantnog i nerezonantnog Štarkovog pomaka. U glavi 3 daćemo kratak pregled analitičkih opisa jonizacionih procesa u različitim režimima jonizacije kao i prodiskutovati upotrebnu vrednost poznatih analitičkih izraza u ovom istraživanju. Nakon toga, u glavi 4 biće reči o računskim tehnikama koje su korišćene tokom ovog istraživanja. U glavi 5 biće predstavljeni rezultati dobijeni simulacijama za atom natrijuma u spoljašnjem električnom polju u kvazistatičkom režimu. Nakon toga, u glavama 6 i 7 biće predstavljeni rezultati simulacija za atome natrijuma i litijuma u spoljašnjem električnom polju u multifotonskom režimu. Predstavljeni rezultati objavljeni su kroz tri rada u međunarodnim časopisima [29, 30, 31] kao i predstavljeni na brojnim međunarodnim konferencijama [32, 33, 34, 35, 36, 37]

Glava 2

Štarkov pomak

2.1 Statički Štarkov pomak i cepanje nivoa kod atoma vodonika

Još 1913. godine, Johanes Štark primetio je razdvajanje spektralnih linija kod atoma vodonika izloženog spoljašnjem statičkom električnom polju [38], a samo mesec dana nakon te objave efekat je eksperimentalno potvrdio Antonino Lo Surdo [39]. Taj efekat ubrzo je viđen kao jedna od prvih potvrda Borove kvantne teorije i njegovog predviđanja da su spektralne linije posledica skokova elektrona među kvantovanim orbitama [40]. Primećeni efekat uspešno je objašnjen u okviru teorije perturbacija do 1930. godine [41, 42, 43, 44, 45]. Kod atoma vodonika, cepanje se javlja usled degeneracije energetskih nivoa koja je uklonjena prisustvom spoljašnjeg polja. Ako je potencijal spoljašnjeg polja mali u poređenju sa Kulonovim potencijalom jezgra, u slučaju atoma sa degenerisanim nivoima ovaj efekat je vidljiv u okviru prvog reda teorije perturbacija i linearno je proporcionalan sa jačinom spoljašnjeg polja. Međutim, u slučaju atoma bez degenerisanih energetskih nivoa, popravka prvog reda jednaka je nuli i, da bi efekat spoljašnjeg polja postao vidljiv, moramo računati popravke drugog (kvadratni Štarkov efekat) ili višeg reda.

Kod atoma kod kojih se može primeniti jednoelektronska aproksimacija, hamiltonijan sistema opisan je sa

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{p}^2}{2} + \hat{V} \quad (2.1)$$

gde je prvi član operator kinetičke energije elektrona, a drugi član Kulonov potencijal jezgra koji je u koordinatnoj reprezentaciji kod vodonika i vodoniku sličnih atoma proporcionalan sa $-1/r$.

Ako je sistem izložen dejstvu homogenog statičkog spoljašnjeg polja usmerenog

duž z -ose, elektron u vezanom stanju (negativne) energije E_n dobija dodatnu energiju $\delta E_n(F)$ usled polarizacije atoma u polju. Ukoliko je neperturbovani nivo E_n degenerisan, cepa se na određen broj podnivoa koji odgovaraju različitim vrednostima dodatnih kvantnih brojeva.

Oba efekta mogu se opisati u okviru teorije perturbacija kada je jačina spoljašnjeg polja mala. Kada se u opis uključi statičko polje jačine F , hamiltonijan postaje $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}'$ gde član

$$\hat{H}' = -\hat{z}F \quad (2.2)$$

opisuje spoljašnje polje usmereno u negativnom smeru z -ose. Teorija perturbacija je primenljiva kada je $\hat{H}' \ll \hat{H}_0$ što je zadovoljeno za slaba polja.

2.1.1 Šredingerova jednačina atoma vodonika u paraboličkim koordinatama

Prilikom rešavanja Šredingerove jednačine za atom vodonika, pogodno je raditi u sfernim koordinatama (r, θ, ϕ) jer one obezbeđuju razdvajanje promenljivih. Međutim, za sistem u spoljašnjem polju, sferne koordinate nisu više pogodne za račun jer se gubi centralna simetrija i orbitalni broj l prestaje da bude dobar kvantni broj. Ispostavlja se da se separabilnost u ovom slučaju može postići korišćenjem paraboličkih koordinata (ξ, η, ϕ) . Transformacije iz paraboličkih u Dekartove koordinate definisane su izrazima

$$x = \sqrt{\xi\eta} \cos \phi, \quad y = \sqrt{\xi\eta} \sin \phi, \quad z = \frac{1}{2}(\xi - \eta), \quad (2.3)$$

$$r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} = \frac{1}{2}(\xi + \eta),$$

i obrnuto,

$$\xi = r + z, \quad \eta = r - z, \quad \phi = \tan^{-1}(y/x). \quad (2.4)$$

ξ i η uzimaju vrednosti od 0 do ∞ , ϕ uzima vrednosti od 0 do 2π , a površi $\xi = \text{const}$ i $\eta = \text{const}$ su paraboloidi rotacije oko z -ose. Element dužine dat je sa

$$(dl)^2 = \frac{\xi + \eta}{4\xi}(d\xi)^2 + \frac{\xi + \eta}{4\eta}(d\eta)^2 + \xi\eta(d\phi)^2, \quad (2.5)$$

a element zapremine sa

$$dV = \frac{1}{4}(\xi + \eta)d\xi d\eta d\phi. \quad (2.6)$$

Za rešavanje Šredingerove jednačine potrebno nam je takođe da znamo i oblik Laplasovog operatora koji se javlja u koordinatnoj reprezentaciji operatora kinetičke energije. U parabolikim koordinatama, na osnovu jednačine (2.5) njegov oblik je

$$\Delta = \frac{4}{\xi + \eta} \left[\frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta \frac{\partial}{\partial \eta} \right) \right] + \frac{1}{\xi \eta} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2}. \quad (2.7)$$

Na osnovu prethodnog razmatranja u koordinatnoj reprezentaciji u parabolikim koordinatama, Šredingerova jednačina atoma vodonika u potencijalu oblika $V(\vec{r}) = -1/|r| = -2/(\xi + \eta)$ uzima oblik

$$\frac{4}{\xi + \eta} \left[\frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial \psi}{\partial \xi} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta \frac{\partial \psi}{\partial \eta} \right) \right] + \frac{1}{\xi \eta} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} + 2 \left(E + \frac{2}{\xi + \eta} \right) \psi = 0. \quad (2.8)$$

Da bismo razdvojili promenljive, talasnu funkciju ψ tražimo u obliku

$$\psi = f_1(\xi) f_2(\eta) e^{im\phi}, \quad (2.9)$$

gde je m magnetni kvantni broj. Zamenom ovog oblika rešenja u jednačinu (2.8) i množenjem cele jednačine faktorom $\frac{1}{4}(\xi + \eta)$ dobijamo dve jednačine razdvojene po varijablama ξ i η

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial f_1}{\partial \xi} \right) + \left(\frac{E\xi}{2} - \frac{m^2}{4\xi} + \beta_1 \right) f_1 &= 0, \\ \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta \frac{\partial f_2}{\partial \eta} \right) + \left(\frac{E\eta}{2} - \frac{m^2}{4\eta} + \beta_2 \right) f_2 &= 0, \end{aligned} \quad (2.10)$$

gde su parametri razdvajanja β_1 i β_2 povezani relacijom

$$\beta_1 + \beta_2 = 1. \quad (2.11)$$

Za pogodniju analizu jednačina (2.10) u diskretnom spektru ($E < 0$), uvodimo smene

$$n = \frac{1}{\sqrt{-2E}}, \quad \rho_1 = \frac{\xi}{n}, \quad \rho_2 = \frac{\eta}{n}, \quad (2.12)$$

pomoću kojih dobijamo diferencijalnu jednačinu za f_1

$$\frac{d^2 f_1}{d^2 \rho_1} + \frac{1}{\rho_1} \frac{df_1}{d\rho_1} + \left[-\frac{1}{4} + \frac{1}{\rho_1} \left(\frac{|m| + 1}{2} + n_1 \right) - \frac{m^2}{4\rho_1^2} \right] f_1 = 0 \quad (2.13)$$

i analognu jednačinu za f_2 , gde su

$$\begin{aligned} n_1 &= -\frac{1}{2} (|m| + 1) + n\beta_1, \\ n_2 &= -\frac{1}{2} (|m| + 1) + n\beta_2. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Rešenje jednačine (2.13) tražimo u obliku

$$f_1(\rho_1) = e^{-\frac{\rho_1}{2}} \rho_1^{\frac{|m|}{2}} \omega_1(\rho_1) \quad (2.15)$$

i analogno za $f_2(\rho_2)$. Zamenom (2.15) u (2.13) dobijamo jednačinu za $\omega_1(\rho_1)$. Ova diferencijalna jednačina za rešenje ima konfluentnu hipergeometrijsku funkciju [46] i zbog uslova konačnosti njeni parametri moraju biti u obliku

$$\omega_1 = F(-n_1, |m| + 1, \rho_1). \quad (2.16)$$

Analizom prethodnih jednačina možemo zaključiti da su sva stanja atoma vodonika u parabolčkim koordinatama jednoznačno određena pomoću parabolčkih kvantnih brojeva n_1 i n_2 i magnetnog kvantnog broja m . Glavni kvantni broj se može zapisati u obliku

$$n = n_1 + n_2 + |m| + 1. \quad (2.17)$$

Za dato n , postoji n različitih vrednosti koje $|m|$ može da uzme od 0 do $n - 1$, a za fiksirano n i m , n_1 može da uzme $n - |m|$ vrednosti od 0 do $n - |m| - 1$. Uzevši još u obzir da m može da uzima i pozitivne i negativne vrednosti, dobijamo da je degeneracija stanja za dato n

$$2 \sum_{m=1}^{n-1} (n - m) + n = n^2 \quad (2.18)$$

što se slaže sa predviđanjima dobijenim računom u sfernim koordinatama [46].

Za konačni oblik talasne funkcije, potrebno je izračunati i njenu normu. Na osnovu (2.6) imamo

$$\frac{1}{4} \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^{2\pi} |\psi_{n_1, n_2, m}(\xi, \eta, \phi)|^2 (\xi + \eta) d\xi d\eta d\phi = 1. \quad (2.19)$$

Normirane funkcije su oblika

$$\psi_{n_1, n_2, m}(\xi, \eta, \phi) = \frac{\sqrt{2}}{n^2} f_{n_1, m} \left(\frac{\xi}{n} \right) f_{n_2, m} \left(\frac{\eta}{n} \right) \frac{e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi}}, \quad (2.20)$$

gde su

$$f_{p, m}(\rho) = \frac{1}{|m|!} \sqrt{\frac{(p + |m|)!}{p!}} F(-p, |m| + 1, \rho) e^{-\frac{\rho}{2}} \rho^{\frac{|m|}{2}}. \quad (2.21)$$

Talasne funkcije u parabolčkim koordinatama imaju svoju geometrijsku interpretaciju. Nasuprot funkcijama u sfernim koordinatama, one nisu simetrične oko ravni $z = 0$. Međutim, odnos među kvantnim brojevima n_1 i n_2 govori o verovatnoći nalaženja čestice u određenim delovima prostora. Naime, za $n_1 > n_2$ verovatnoća nalaženja čestice je veća u delu prostora $z > 0$ i obrnuto.

2.1.2 Linearni Štarkov pomak kod atoma vodonika

Kada je jačina spoljašnjeg električnog polja mala, popravke na energiju mogu se računati u okviru teorije perturbacija. Linearni Štarkov pomak dobija se kao popravka prvog reda. Za sistem koji ima neperturbovanu talasnu funkciju sa skupom kvantnih brojeva $\{X_i\}$, izraz za ovu popravku je

$$\left\langle \psi_{\{X_i\}} \left| \hat{H}' \right| \psi_{\{X_j\}} \right\rangle, \quad (2.22)$$

gde dijagonalni elementi predstavljaju popravku energije nivoa, a vandijagonalni elementi verovatnoće prelaza iz stanja sa $\{X_j\}$ u stanja sa $\{X_i\}$.

U slučaju atoma vodonika sa funkcijama računatim u parabolčkim koordinatama imamo

$$\left\langle \psi_{\{n_1, n_2, m\}_i} \left| -\frac{F}{2} (\hat{\xi} - \hat{\eta}) \right| \psi_{\{n_1, n_2, m\}_j} \right\rangle, \quad (2.23)$$

gde je perturbacija u polju zapisana u parabolčkim koordinatama pomoću transformacije (2.3). Uz kraću analizu, lako je videti da su samo dijagonalni matični elementi različiti od nule. Dijagonalnost po m jasna je na osnovu izraza za talasnu funkciju (2.20) gde se vidi da zavisnost po ϕ ulazi na osnovu kompleksnog faznog faktora čijom integracijom od 0 do 2π dobijamo 0 za svako $m_i \neq m_j$. Dijagonalnost po n_1 i n_2 sledi iz ortogonalnosti funkcija $f_{p,m}$ za različito p a isto m (2.21). Nakon kraćeg računa, dobija se izraz za popravku na energetske nivoe u aproksimaciji prvog reda

$$E^{(1)} = \frac{3}{2} F n (n_1 - n_2). \quad (2.24)$$

Ako uzmemo ekstremni slučaj dva najudaljenija stanja sa kvantnim brojevima $(n - 1, 0, m)$ i $(0, n - 1, m)$ dobijamo da je njihovo međusobno rastojanje

$$\Delta E = 3F n (n - 1), \quad (2.25)$$

dakle približno proporcionalno sa n^2 . Očekivano je da se cepanje povećava sa glavnim kvantnim brojem jer je dipolni moment atoma veći što su elektroni udaljeniji od jezgra. Linearna popravka (2.24) jednaka je nuli u osnovnom stanju vodonika, a kod viših stanja ona iščezava za sve slučajeve stanja kod kojih je $n_1 = n_2$. Kod atoma koji nemaju degeneraciju energetskih nivoa usled elektron-elektron interakcije, linearni efekat iščezava kompletno i za svaku analizu potrebno je računati kvadratnu ili više popravke.

2.1.3 Kvadratni Štarkov pomak kod atoma vodonika

Kvadratni efekat se dobija u okviru teorije perturbacija drugog reda, a biće prikazan metodom kako je dobijen kod Landaua i Lifshitzza [46]. Šredingerova jednačina atoma vodonika u spoljašnjem polju u koordinatnoj reprezentaciji ima oblik

$$\left(\frac{1}{2}\Delta + E + \frac{1}{r} - Fz\right)\psi = 0. \quad (2.26)$$

Slično kao u slučaju sa $F = 0$, korišćenje paraboličkih koordinata obezbeđuje razdvajanje promenljivih. Analogno jednačinama (2.10) imamo

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial f_1}{\partial \xi} \right) + \left(\frac{E\xi}{2} - \frac{m^2}{4\xi} - \frac{F\xi^2}{4} \right) f_1 &= -\beta_1 f_1, \\ \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta \frac{\partial f_2}{\partial \eta} \right) + \left(\frac{E\eta}{2} - \frac{m^2}{4\eta} + \frac{F\eta^2}{4} \right) f_2 &= -\beta_2 f_2, \end{aligned} \quad (2.27)$$

gde su β_1 i β_2 vezani relacijom $\beta_1 + \beta_2 = 1$. U svrhu rešavanja ovih jednačina, energiju E , tretiraćemo kao parametar sa određenom vrednošću, a vrednosti β_1 i β_2 kao svojstvene vrednosti odgovarajućih operatora. Tretiraćemo članove sa poljem F kao malu perturbaciju. U nultoj aproksimaciji ($F = 0$), rešenja ovih jednačina su u obliku

$$f_1 = \sqrt{\epsilon} f_{n_1, m}(\xi\epsilon), \quad f_2 = \sqrt{\epsilon} f_{n_2, m}(\eta\epsilon), \quad (2.28)$$

gde su funkcije $f_{p, m}$ iste kao u jednačini (2.21) sa uvedenim parametrom $\epsilon = \sqrt{-2E}$ umesto energije. Onda iz jednačina (2.14) sledi da su vrednosti parametara u nultoj aproksimaciji

$$\begin{aligned} \beta_1^{(0)} &= \left(n_1 + \frac{1}{2}|m| + \frac{1}{2} \right) \epsilon, \\ \beta_2^{(0)} &= \left(n_2 + \frac{1}{2}|m| + \frac{1}{2} \right) \epsilon. \end{aligned} \quad (2.29)$$

U prvoj (linearnoj) popravci, vrednosti za β_1 i β_2 dobijaju se računanjem dijagonalnih matričnih elemenata perturbacije

$$\beta_1^{(1)} = \left\langle n_1 \left| \frac{1}{4} F \xi^2 \right| n_1 \right\rangle, \quad \beta_2^{(1)} = \left\langle n_2 \left| -\frac{1}{4} F \eta^2 \right| n_2 \right\rangle, \quad (2.30)$$

gde su $|n_i\rangle$ odgovarajuće svojstvene funkcije.

Dalji račun daje rezultat

$$\beta_1^{(1)} = \frac{F}{4\epsilon^2} (6n_1^2 + 6n_1|m| + m^2 + 6n_1 + 3|m| + 2) \quad (2.31)$$

i analogan rezultat za $\beta_2^{(1)}$ sa zamenjenim n_1 za n_2 i suprotnim znakom.

Za popravku drugog reda imamo opštu formulu iz teorije perturbacija

$$\beta_1^{(2)} = \frac{F^2}{16} \sum_{n'_1 \neq n_1} \frac{|\langle n_1 | \xi^2 | n'_1 \rangle|^2}{\beta_1^{(0)}(n_1) - \beta_1^{(0)}(n'_1)} \quad (2.32)$$

čiji su jedini nenulti elementi oni sa

$$\begin{aligned} \langle n_1 | \xi^2 | n_1 - 1 \rangle &= \langle n_1 - 1 | \xi^2 | n_1 \rangle = -2(2n_1 + |m|) \frac{\sqrt{n_1(n_1 + |m|)}}{\epsilon^2}, \\ \langle n_1 | \xi^2 | n_1 - 2 \rangle &= \langle n_1 - 2 | \xi^2 | n_1 \rangle = \frac{\sqrt{n_1(n_1 - 1)(n_1 + |m|)(n_1 + |m| - 1)}}{\epsilon^2}, \end{aligned} \quad (2.33)$$

a imenioci jednaki

$$\beta_1^{(0)}(n_1) - \beta_1^{(0)}(n'_1) = \epsilon(n_1 - n'_1). \quad (2.34)$$

Kao rezultat čitave sume dobijamo

$$\beta_1^{(2)} = -\frac{F^2}{16\epsilon^3} (|m| + 2n_1 + 1)[4m^2 + 17(2|m|n_1 + 2n_1^2 + |m| + 2n_1) + 18] \quad (2.35)$$

i analogan izraz za β_2 .

Zamenom izraza u drugoj aproksimaciji u uslov $\beta_1 + \beta_2 = 1$ dobijamo zavisnost parametra ϵ od polja F , a zatim zamenom $E = -\frac{1}{2}\epsilon^2$ dobijamo konačan izraz za energiju u popravci drugog reda

$$E = -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2}Fn(n_1 - n_2) - \frac{F^2}{16}n^4(17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19). \quad (2.36)$$

Prvi član jednačine (2.36) je neperturbovana energija, drugi je već izračunati linearni Štarkov pomak, a treći je tražena kvadratna popravka. Zamenom $n = 1$ za osnovno stanje atoma vodonika dobija se da je

$$E^{(2)} = -\frac{9}{4}F^2 \quad (2.37)$$

odakle sledi poznat rezultat za statičku polarizabilnost atoma vodonika $\alpha = \frac{9}{2}$.

2.2 Statički Štarkov pomak kod višeelektronskih atoma

Štarkov efekat uočen je i kod višeelektronskih atoma. Međutim, kako kod njih nemamo degeneraciju energetskih nivoa kao kod atoma vodonika, isključivo se javlja kvadratni Štarkov efekat (ili višeg reda). Kod sferno simetričnog atoma, pomak energije pri malim vrednostima spoljašnjeg električnog polja $F \ll 1$ može se predstaviti u obliku

Maklorenovog reda $\Delta E = -\alpha F^2/2! - \gamma F^4/4! - \dots$, gde su α i γ dipolna polarizabilnost i dipolna hiperpolarizabilnost [47]. Ove dve veličine veoma zavise od veličine elektronskih orbita valentnog elektrona te mogu varirati i za po nekoliko redova veličina od atoma do atoma. U praksi pokazano je da je red veličine polarizabilnosti dobro procenjen uzimajući da je skalirana polarizabilnost $(2E_b)^2\alpha$ (gde je E_b energija vezivanja valentnog elektrona) za taj atom reda veličine polarizabilnosti atoma vodonika ($\alpha = 9/2$). U tabeli 2.1 dati su jonizacioni potencijal, polarizabilnost i skalirana polarizabilnost za nekoliko različitih atoma.

broj elektrona	$I_p(eV)$	α	$\alpha(2E_b)^2$	$\gamma(2E_b)^5/12$
1 (H)	13.60	4.5	4.5	111.09375
2 (He)	24.59	1.382	4.51424	68.5
3 (Li)	5.39	164.39	25.8	-
4 (Be)	9.32	37.755	17.7	408
5 (B)	8.30	20.5	7.6	-
6 (C)	11.26	11.0	8.2	-
7 (N)	14.53	7.43	8.4	-
8 (O)	13.62	6.04	5.41	-
9 (F)	17.42	3.76	6.2	-
10 (Ne)	21.56	2.67	6.7	97
11 (Ar)	15.76	8.27	11.1	-
36 (Kr)	14.00	15.77	16.7	-
54 (Xe)	12.13	34.35	27.3	-

Tabela 2.1: Za lake atome skalirane polarizabilnosti su bliske atomu vodonika, izuzev za Li i Be. Skalirana polarizabilnost raste sa povećanjem broja elektrona zbog strukture atomskih ljuski. Za razliku od H i He, Li i Be imaju elektrone u 2s podljusci na koje odbojnom silom deluju unutrašnji (1s) elektroni pa je njihova polarizabilnost značajno veća.

2.3 Dinamički Štarkov pomak

Statički Štarkov pomak izaziva cepanje energetske nivoa u slučaju atoma vodonika i njihovo smicanje ka negativnim vrednostima u slučaju kvadratnog efekta kod ostalih atoma. Međutim, kako je fokus ovog rada na interakciju atomskih sistema sa jakim laserskim poljima, u nastavku ćemo razmotriti takozvani dinamički Štarkov pomak.

Sa razvojem lasera, postalo je eksperimentalno izvodljivo izlagati atomske sisteme zračenju frekvencijama svetlosti uporedivim sa razlikama energija među elektronskim nivoima i zapaženi su razni, do tada nepoznati, efekti.

Ako razmatramo slučaj u kom je atomski sistem izložen promenljivom spoljašnjem

polju $F(t)$, hamiltonijan sistema postaje

$$\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{W}(t), \quad (2.38)$$

gde je \hat{H}_0 neperturbovani hamiltonijan atoma u jednoelektronskoj aproksimaciji, a $\hat{W}(t) = -F(t)\hat{z}$. Prema tome, Šredingerova jednačina valentnog elektrona (u koordinatnoj reprezentaciji) je

$$i\frac{\partial\psi(\vec{r}, t)}{\partial t} = [\hat{H}_0 + \hat{W}(t)]\psi(\vec{r}, t). \quad (2.39)$$

2.3.1 Metod vremenski zavisnih koeficijenata

Vremenski zavisna Šredingerova jednačina u opštem obliku glasi

$$i\frac{d}{dt}|\psi\rangle = \hat{H}|\psi\rangle, \quad (2.40)$$

gde je Hamiltonijan \hat{H} dat kao suma neperturbovanog dela i perturbacije $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{W}$. Stanje perturbovanog sistema možemo da razvijemo u bazu neperturbovanih atomskih stanja $|\varphi_n\rangle$ kao

$$|\psi\rangle = \sum_n c_n(t)|\varphi_n\rangle e^{-iE_n^{(0)}t}, \quad (2.41)$$

gde su $c_n(t)$ koeficijenti u razvoju, a $E_n^{(0)}$ su energije neperturbovanih stanja sa kvantnim brojem n . Zamenjujući razvoj (2.41) u Šredingerovu jednačinu (2.40) dobijamo

$$i\sum_n \left(\frac{dc_n(t)}{dt} - iE_n c_n(t) \right) |\varphi_n\rangle e^{-iE_n^{(0)}t} = \sum_{n'} (\hat{H}_0 + \hat{W})c_{n'}(t)|\varphi_{n'}\rangle e^{-iE_{n'}^{(0)}t}. \quad (2.42)$$

Kako dejstvo neperturbovanog Hamiltonijana \hat{H}_0 na svojstvene funkcije $|\varphi_n\rangle$ prosto izbacuje svojstvene energije svakog stanja E_n , prethodni izraz se može pojednostaviti kao

$$i\sum_n \frac{dc_n(t)}{dt} |\varphi_n\rangle e^{-iE_n^{(0)}t} = \sum_{n'} c_{n'}(t)\hat{W}|\varphi_{n'}\rangle e^{-iE_{n'}^{(0)}t}. \quad (2.43)$$

Da bismo dobili sistem diferencijalnih jednačina po koeficijentima c_n , čitavu jednačinu (2.43) množimo sa $\langle\varphi_{n''}|$ i uz prelaz $(n'') \rightarrow (n)$ dobijamo

$$i\frac{dc_n(t)}{dt} e^{-iE_n^{(0)}t} = \sum_{n'} c_{n'}(t)\langle\varphi_n|\hat{W}|\varphi_{n'}\rangle e^{-iE_{n'}^{(0)}t}. \quad (2.44)$$

Izraz (2.44) je sistem diferencijalnih jednačina prvog reda po vremenski zavisnim koeficijentima $c_n(t)$ koji se može rešiti uz poznavanje matričnih elemenata $W_{n,n'} = \langle\varphi_n|\hat{W}|\varphi_{n'}\rangle$.

2.3.2 Floquet-ova teorija i spektar kvazienergija

Poznato je da u vremenski zavisnom polju, energija sistema nije održana veličina i teško je uopšte govoriti o energetskom pomaku. Međutim u slučaju monohromatskog polja, može se govoriti o pomaku energijskih nivoa u okviru Floquet-ove teorije.

Po Floquet-ovom teoremu za rešavanje linearne diferencijalne jednačine sa periodičnim koeficijentima [48], rešenje Šredingerove jednačine (2.39) u slučaju monohromatskog polja ima oblik

$$\psi(\vec{r}, t) = e^{-iE_i t} \varphi(\vec{r}, t) \quad (2.45)$$

gde periodičnu funkciju $\varphi(\vec{r}, t) = \varphi(\vec{r}, t + \frac{2\pi}{\omega})$ možemo razviti u Furijeov red tako da

$$\psi(\vec{r}, t) = e^{-iE_i t} \sum_{k=-\infty}^{\infty} C_k(\vec{r}) e^{-ik\omega t}. \quad (2.46)$$

Ovako zapisana, talasna funkcija $\psi(\vec{r}, t)$ je superpozicija stacionarnih stanja sa energijama $E_i + k\omega$. Ovo zovemo kvazienergijsko stanje, a energiju E_i kvazienergiju. Broj kvazienergijskih stanja, jednak je broju stanja neperturbovanog sistema, a spektar vrednosti $E_i + k\omega$ zove se kvazienergijski spektar (ili spektar kvaziharmonika) [49].

Spektar kvaziharmonika predstavlja spektar stanja novog sistema "atom + polje", a svojstvene energije E_i zavise od parametara polja. Da bi energijski pomak stanja prilikom izlaganja sistema spoljašnjem polju $\delta E_i(F, \omega)$ imao fizički smisao, potrebno nam je da imamo situaciju u kojoj su svi članovi sume u jednačini (2.46) sa $k \neq 0$ zanemarljivi u odnosu na $k = 0$ jer je tada energija održana. Tada se prilikom perturbacije popunjava samo najniži kvaziharmonik što odgovara energijskom pomaku analognom kao u statičkom slučaju

$$\delta E_i(F, \omega) = E_i(F, \omega) - E_i^{(0)}, \quad (2.47)$$

gde su F i ω jačina i frekvencija polja, a i kvantni brojevi stanja čiji pomak razmatramo.

Da bismo razmotrili kada je ovo zadovoljeno, pogledajmo članove sa $k = \pm 1$. Da bismo imali $C_1(\vec{r}) \ll 1$ i $C_{-1}(\vec{r}) \ll 1$ potrebno je da bude zadovoljen uslov

$$z_{i,j} F \ll |\omega_{i,j} - \omega|, \quad (2.48)$$

gde je $z_{i,j}$ dipolni matrični element između stanja sa kvantnim brojevima i i j , a $\omega_{i,j}$ razlika između energija tih stanja.

Ako je uslov (2.48) zadovoljen, onda je popravka u prvom redu teorije perturbacije mala. Međutim to ne garantuje da će drugi red perturbacije dati male popravke, zbog

mogućnosti da pri izlaganju polju frekvence ω osnovno stanje bude u rezonanci sa nekim od viših stanja, a ova mogućnost je nevidljiva u popravci prvog reda. U slučaju nedegenerisanog stanja dovoljni uslovi da kvaziharmonici $k \neq 0$ budu zanemarljivi su $z_{i,j}F \ll \omega_{i,j}$ i $\delta E_i(F, \omega) \ll \omega_{i,j}$. Takođe, energije prelaza $\omega_{i,j}$ moraju biti veće ili istog reda kao ω i ne smeju da postoje rezonance.

2.3.3 Veza frekvencije polja i energija prelaza atoma

Poznato je da kod atoma, rastojanje među vezanim stanjima brzo opada sa porastom glavnog kvantnog broja n . Kod Ridbergovih stanja ovo rastojanje je proporcionalno sa n^{-3} . Kada razmatramo efekte koje frekvencija polja ima na Štarkov pomak različitih stanja, prirodno se javljaju dva granična slučaja.

Kada govorimo o osnovnom stanju, frekvenciju spoljašnjeg polja ω smatramo niskom ukoliko je manja od energijskog rastojanja između osnovnog i prvog pobuđenog stanja $\omega_{1,0}$. Sa druge strane kako se približavamo pragu jonizacije, za vrednosti glavnog kvantnog broja $n > 10$, rastojanje među nivoima je već manje od $0.01eV$ pa se praktično bilo koja frekvencija spoljašnjeg polja može smatrati visokom.

Ova dva granična slučaja su veoma važna jer tipični eksperiment ne meri perturbaciju izolovanog stanja već energijsku razliku između dva stanja. Ako spoljašnje polje jonizuje atom iz osnovnog stanja, kombinovani efekti niskofrekventnog Štarkovog pomaka osnovnog stanja i visokofrekventnog Štarkovog pomaka praga jonizacije biće vidljivi u izmerenom spektru izlaznih elektrona

Razmotrimo još i relaciju neodređenosti $\Delta E \Delta t \geq \hbar$. Ovde je ΔE odstupanje određenog kvaziharmonika od najbliže rezonance (prilikom apsorpcije jednog fotona) uz dipolna selekciona pravila, a Δt je donja granica vremena potrebnog da se javi energijski pomak.

Minimalna vrednost za ΔE i maksimalna vrednost za Δt se javljaju u slučaju kada imamo jednofotonsku rezonancu. Tada je ΔE prirodna širina nivoa, a Δt je reda veličine preko $10^{-8}s$. Sa druge strane, maksimalna vrednost za ΔE je reda veličine $10eV$ pa je onda minimalna vrednost za Δt ispod $10^{-17}s$.

Pošto se u tipičnom eksperimentu koriste laseri sa pulsem od nekoliko nanosekundi do par desetina femtosekundi, tipična odstupanja od rezonance su takva da je Δt manje od trajanja pulsa. To znači da je dinamički pomak određen trenutnom jačinom polja tokom pulsa i da je najjači kada je polje u maksimumu, pa opada do nule na kraju pulsa. Integralni opservabilni efekat tokom pulsa je širenje spektralnih linija do maksimalne

vrednosti koja je određena pomakom u amplitudi pulsa.

2.3.4 Analitičko rešenje u sistemu sa jednim stanjem

Problem dinamičkog Štarkovog pomaka može se analitički rešiti u slučaju sistema poznate dinamičke polarizabilnosti α , sa konstantnim dipolnim momentom d i sa samo jednim kvantnim stanjem [50]. Šredingerova jednačina u koordinatnoj reprezentaciji za kvantno-mehaničku amplitudu ovog sistema u vremenski zavisnom potencijalu $V(t)$ je

$$i \frac{da(t)}{dt} = V(t)a(t) = \left(-dF \cos(\omega t) + \frac{1}{2} \alpha F^2 \cos^2(\omega t) \right) a(t). \quad (2.49)$$

U prethodnom izrazu faktor energije $e^{i(E_n - E_{n'})t}$ iz jednačine (2.44) jednak je nuli zbog postojanja samo jednog stanja. Radi jednostavnosti, energija neperturbovanog stanja je uzeta kao 0, i zanemarena je hiperpolarizabilnost sistema.

Ova jednačina ima rešenje u jednostavnom obliku

$$a(t) = \exp \left[- \int_0^t V(t') dt' \right]. \quad (2.50)$$

Razvijanjem ovog eksponenta u red dobijamo rešenje u obliku (2.46) sa dinamičkim pomakom nivoa

$$E_i(F) = -\frac{1}{4} \alpha F^2, \quad (2.51)$$

i populacijama kvaziharmonika

$$C_k = \sum_{s=-\infty}^{\infty} (-1)^k J_s \left(\frac{\alpha F^2}{8\omega} \right) J_{k+2s} \left(\frac{dF}{\omega} \right), \quad (2.52)$$

gde su J_s Beselove funkcije.

U principu, razni kvaziharmonici se popunjavaju tokom procesa. Međutim, izdvojimo nekoliko zanimljivih graničnih slučajeva.

1. *Slučaj slabog polja visoke frekvencije.* Tada su argumenti u Beselovim funkcijama u (2.52) mali

$$\alpha F^2 \ll \omega, \quad dF \ll \omega. \quad (2.53)$$

U ovom slučaju, zbog osobina Beselovih funkcija, jedini nezanemarljivi članovi su oni sa $k = s = 0$. Zbog ovoga, kvaziharmonici se ne popunjavaju i Štarkov pomak je kvadratnog oblika kao u (2.51).

2. *Slučaj jakog polja u srednjem domenu frekvencija.* U ovom slučaju imamo za argumente Beselovih funkcija

$$\alpha F^2 \ll \omega, \quad dF \gg \omega. \quad (2.54)$$

U ovom slučaju, jedini harmonici koji se popunjavaju su oni sa $k = \pm dF/\omega$ i $s = 0$. Energije ovih kvaziharmonika su

$$E = \pm dF, \quad (2.55)$$

gde je kvadratni efekat (2.51) zanemarljiv u poređenju sa (2.55). Dakle imamo linearni efekat koji se razlikuje od linearnog pomaka u konstantnom polju po tome što se stanja cepaju na dva simetrična podnivoa jednakih verovatnoća. Treba spomenuti da se sličan efekat dešava u sistemu sa dva stanja u rezonantnom slučaju.

3. *Slučaj jakog polja male frekvencije.* Tada su argumenti Beselovih funkcija

$$\alpha F^2 \gg \omega, \quad dF \gg \omega. \quad (2.56)$$

Popunjeni su kvaziharmonici sa

$$k = \pm \frac{dF}{\omega} \pm \frac{\alpha F^2}{4\omega}, \quad (2.57)$$

a energije pocepanih nivoa su

$$E(F) = \pm dF \pm \frac{\alpha F^2}{4} - \frac{\alpha F^2}{4}. \quad (2.58)$$

U sva tri navedena slučaja moguće je analitički odrediti Štarkov pomak. Međutim, u opštem slučaju, dolazi do popunjavanja raznih kvaziharmonika i dinamički Štarkov pomak nije vidljiv kao efekat.

2.3.5 Perturbacija nedegenerisanih nivoa u slabom promenljivom polju

Iako je teorijski opis dinamičkog Štarkovog pomaka u promenljivom polju zasnovan na vremenski zavisnoj teoriji perturbacija drugog reda, korišćenjem kvazienergjskih stanja sistema "atom + polje", problem je moguće pojednostaviti svođenjem na poznat DC slučaj [50]. Izraz za pomak energijskog nivoa atoma u DC polju je

$$\delta E_i = \sum_{j \neq i} \frac{|z_{j,i} F|^2}{E_i - E_j}. \quad (2.59)$$

Umesto neperturbovanih energija koristićemo kvazienergije $E_j + \omega$ i $E_j - \omega$ koje predstavljaju energije atoma u polju pri apsorpciji jednog fotona (višefotonski procesi postaju vidljivi u višim redovima teorije perturbacije). Takođe polje F u jednačini (2.59) menjamo sa njegovim promenljivim oblikom zapisanim u kompleksnom obliku

$$F \rightarrow F(t) = F \cos(\omega t) = \frac{F}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}). \quad (2.60)$$

Sa navedenim zamenama, izraz za dinamički Štarkov pomak u drugom redu teorije perturbacija ima oblik

$$\delta E_i = \sum_{j \neq i} \left| \frac{z_{j,i} F}{2} \right|^2 \left(\frac{1}{E_i - E_j - \omega} + \frac{1}{E_i - E_j + \omega} \right). \quad (2.61)$$

Sređivanjem izraza (2.61) dobijamo

$$\delta E_i = -\frac{\alpha_i(\omega) F^2}{4} = \frac{F^2}{2} \sum_j \frac{\omega_{i,j} |z_{j,i}|^2}{\omega_{j,i}^2 - \omega^2}. \quad (2.62)$$

Ovde je $\omega_{j,i} = E_j - E_i$ razlika između polaznog i nekog intermedijarnog stanja, a $\alpha_i(\omega)$ veličina poznata kao dinamička polarizabilnost. $z_{j,i}$ je dipolni matrični element i podleže uslovu za primenu drugog reda teorije perturbacija (2.48).

Dinamička polarizabilnost $\alpha_i(\omega)$ zavisi od magnetnog kvantnog broja i -tog stanja, i može se izračunati pomoću Wigner-Ekartovog teorema. U slučaju linearno polarisanog polja ona ima oblik

$$\alpha_i(m) = \alpha^S + \alpha^T \frac{3m^2 - j(j+1)}{j(2j-1)}, \quad (2.63)$$

gde je j kvantni broj ukupnog angularnog momenta stanja i , a veličine α^S i α^T su skalarna i tenzorska polarizabilnost, respektivno [50].

U slučaju cirkularno polarisanog polja imamo analogni izraz

$$\alpha_i(m) = \alpha^S + (\pm \alpha^A) \frac{m}{2j} + \alpha^T \frac{3m^2 - j(j+1)}{2j(2j-1)}, \quad (2.64)$$

gde je α^A asimetrična (aksijalna) polarizabilnost, a znak \pm odgovara levoj i desnoj cirkularnoj polarizaciji.

Na osnovu numeričkih proračuna, znamo da su aksijalna i tenzorska polarizabilnost značajno manje od skalarne polarizabilnosti, i zbog toga je dinamički energijski pomak jači efekat nego cepanje stanja u promenljivom polju. Ova razlika postaje sve veća za viša pobuđena stanja, posebno u slučaju visokih frekvencija gde je ω značajno veće od tipičnih energija prelaza $\omega_{i,j}$.

Na visokim frekvencijama $\omega \gg E_i$, tenzorska i aksijalna polarizabilnost opadaju mnogo brže od skalarnog dela koji se asimptotski ponaša kao

$$\alpha^S(\omega \gg E_i) \rightarrow -\frac{1}{\omega^2}. \quad (2.65)$$

Uzevši asimptotsko ponašanje dinamičke polarizabilnosti u obzir, izraz za dinamički Štarkov pomak (2.62) u limitu visokih frekvencija postaje

$$\delta E_i = \frac{F^2}{4\omega^2}, \quad (2.66)$$

što odgovara vibracionoj energiji koju elektron primi u promenljivom polju, poznatijoj kao ponderomotorni potencijal U_p .

U suprotnom limitu $\omega \ll \omega_{i,j}$, izraz (2.62), svodi se na izraz za statički Štarkov pomak u konstantnom polju

$$\delta E_i = -\alpha_{st} \frac{F^2}{4} = \frac{F^2}{2} \sum_j \frac{|z_{i,j}|^2}{\omega_{i,j}}, \quad (2.67)$$

gde je α_{st} statička polarizabilnost čije su vrednosti poznate i mogu se naći po raznim referencama [51].

2.3.6 Kinetička energija elektrona izbačenih jonizacijom atoma u promenljivom polju

Pažljivom upotrebom, dva granična slučaja diskutovana u prethodnom odeljku daju nam aproksimativnu formulu za kinetičku energiju elektrona izbačenog iz atoma pod dejstvom promenljivog spoljašnjeg polja. U opštem slučaju, ako imamo sistem u osnovnom stanju energije E_{gr} sa jonizacionim potencijalom $I_p = -E_{gr}$ pod dejstvom promenljivog polja frekvencije ω , da bi prešao granicu kontinuuma, elektron mora da apsorbuje K fotona tako da $K\omega > I_p$. Kinetička energija E_k tako izbačenog elektrona je (ne uzevši u obzir Štarkov pomak)

$$E_k = K\omega - I_p. \quad (2.68)$$

Zbog manjeg uticaja Štarkovog pomaka, ovaj izraz može poslužiti kao dobra aproksimacija u limitu slabih polja. Međutim pri jačim poljima, u relativno širokom domenu frekvencija uticaj Štarkovog pomaka ima dvojako dejstvo na energiju izlaznih elektrona jer se i osnovno stanje i granica kontinuuma pomeraju. Jonizacioni potencijal postaje

$$I_p(F, \omega) = I_p - \delta E_{gr}(F, \omega) + \delta E_{cont}(F, \omega). \quad (2.69)$$

Da bi procenili promenu jonizacionog potencijala, primenimo razmatranja iz prethodnog odeljka.

Ako je frekvencija ω manja od razlike energija između dva susedna stanja $\omega_{i,j}$, možemo smatrati da smo u domenu niskih frekvencija. Pošto nam kod većine atoma razlika između energija osnovnog i prvog pobuđenog stanja $\omega_{1,0}$ dozvoljava dovoljno širok opseg frekvencija, za sve slučajeve $\omega < \omega_{1,0}$ možemo koristiti aproksimativni izraz (2.67) za procenu pomaka osnovnog stanja

$$\delta E_{gr}(F, \omega) = -\alpha_{st} \frac{F^2}{4}. \quad (2.70)$$

Iz jednačine (2.70) vidimo da je Štarkov pomak osnovnog stanja negativan.

Ako hoćemo da procenimo pomak granice kontinuuma koja je određena limitom Ridbergovih stanja, podsetimo se da za bilo koju izabranu frekvenciju postoje Ridbergova stanja za koja važi $\omega \gg \omega_{i,j}$, tako da se u slučaju ovih stanja može smatrati da se nalazimo u domenu visokih frekvencija pa za procenu pomaka možemo da koristimo asimptotski izraz (2.66) za koji smo već spomenuli da ima fizički smisao ponderomomnog potencijala U_p

$$\delta E_{cont}(F, \omega) = U_p(F, \omega) = \frac{F^2}{4\omega^2}. \quad (2.71)$$

Iz jednačine (2.71) vidimo da je Štarkov pomak granice kontinuuma pozitivan.

Kombinacijom jednačina (2.68), (2.69), (2.70) i (2.71) dobijamo

$$E_k(F, \omega) = K\omega - (I_p + \alpha_{st} \frac{F^2}{4} + \frac{F^2}{4\omega^2}). \quad (2.72)$$

2.4 Rezonantni dinamički Štarkov pomak

Ako analiziramo izraz (2.62) za dinamički Štarkov pomak u drugom redu teorije perturbacija, možemo da primetimo da izraz divergira pri rezonantnim frekvencijama $\omega \rightarrow \omega_{j,i}$ kada imenilac postaje blizak nuli. U ovom slučaju takozvana rezonantna aproksimacija postaje primenljiva. Potrebno je da bude zadovoljen uslov

$$\Delta_i = \omega_{j,i} - K\omega \ll \omega, \quad (2.73)$$

gde je Δ_i odstupanje (razdešenost) od najbliže rezonance, K broj apsorbovanih fotona, a ω frekvencija spoljašnjeg polja. Ako je razdešenost od najbliže rezonance manja od frekvencije polja, u beskonačnim sumama u drugom redu teorije perturbacija kao (2.62) jedan član postaje dominantan u odnosu na sve ostale koji postaju zanemarljivi.

Uslov (2.73) je mnogo manje strog nego uslov za realizaciju same rezonance koji zahteva da

$$\Delta_i = \omega_{j,i} - K\omega < \Gamma_{j,i}, \quad (2.74)$$

gde je $\Gamma_{j,i}$ redukovana širina rezonantnog prelaza određena širinama rezonantnih stanja i i j .

Takođe jednačine se mogu značajno pojednostaviti u skladu sa rezonantnom aproksimacijom ako uzmemo u obzir da je spoljašnje polje dato u obliku (2.60). Član sa $e^{-i\omega t}$ vodi značajno manjeg imenioca nego član sa $e^{i\omega t}$. Posledica je da u izrazu (2.61) za popravku na energiju drugog reda, drugi član možemo da zanemarimo u odnosu na prvi. Time izolujemo sporo oscilujući deo amplitude, a zanemarujemo brze oscilacije.

2.4.1 Sistem sa dva nivoa u rezonantnom polju

Neka je Šredingerova jednačina sistema

$$i\frac{\partial\psi}{\partial t} = [\hat{H}_0 + V(t)]\psi, \quad (2.75)$$

gde je

$$V(t) = V^{(1)}(\vec{r}) \cos \omega t, \quad V^{(1)}(\vec{r}) = -\vec{r} \cdot \vec{F} = -zF \quad (2.76)$$

vremenski zavisna perturbacija, a \hat{H}_0 hamiltonijan neperturbovanog sistema, čije su rešenja u obliku

$$\psi_i^{(0)}(t) = \phi_i^{(0)} e^{-iE_i^{(0)}t}. \quad (2.77)$$

Ako opšte rešenje vremenski zavisne Šredingerove jednačine (2.75) pretpostavićemo u obliku

$$\psi = \sum_i c_i(t) \psi_i^{(0)}, \quad (2.78)$$

gde su $c_i(t)$ koeficijenti razvoja po neperturbovanim stanjima, na osnovu (2.44) koeficijenti razvoja zadovoljavaju sistem diferencijalnih jednačina

$$i\frac{dc_i(t)}{dt} = \cos \omega t \sum_j V_{i,j} e^{i\omega_{i,j}t} c_j(t), \quad (2.79)$$

gde su

$$\omega_{i,j} = E_i^{(0)} - E_j^{(0)}, \quad V_{i,j} = \int \phi_i^{(0)} V^{(1)}(\vec{r}) \phi_j^{(0)} d^3\vec{r}. \quad (2.80)$$

Razmotrimo sada jednostavan slučaj sistema sa samo dva nedegenerisana kvantna nivoa izložen spoljašnjem polju frekvencije ω takvoj da ovaj sistem dovodi blizu rezonance, to jest takvoj da je uslov (2.73) zadovoljen [52].

U jednostavnom slučaju jednofotonske rezonance $K = 1$ i $\omega_{i,j} \rightarrow \omega$, sistem jednačina (2.79) uzima oblik

$$\begin{aligned} i \frac{dc_1(t)}{dt} &= V_{1,2} \cos \omega t c_2(t) e^{i\omega_{1,2}t}, \\ i \frac{dc_2(t)}{dt} &= V_{2,1} \cos \omega t c_1(t) e^{i\omega_{2,1}t}. \end{aligned} \quad (2.81)$$

Na vremenski zavisni potencijal (2.76) primenićemo rezonantnu aproksimaciju koju smo razmatrali u prethodnom odeljku i zamenićeemo $\cos \omega t$ sa sporo oscilujućim članom $\frac{1}{2}e^{i\omega t}$. Uvođenjem razdešenosti od rezonance $\Delta = \omega_{i,j} - \omega$ dobijamo

$$\begin{aligned} i \frac{dc_1(t)}{dt} &= \frac{1}{2} V_{1,2}^{(1)} c_2(t) e^{-i\Delta t}, \\ i \frac{dc_2(t)}{dt} &= \frac{1}{2} V_{2,1}^{(1)} c_1(t) e^{i\Delta t}. \end{aligned} \quad (2.82)$$

Alternativno, možemo napisati opšte rešenje Šredingerove jednačine u obliku $\psi = D_1\psi_1 + D_2\psi_2$, gde su D_1 i D_2 arbitrarne konstante koje se određuju iz početnih uslova, a ψ_1 i ψ_2 ortonormirane bazisne talasne funkcije sistema "atom + polje"

$$\begin{aligned} \psi_1 &= \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 + \frac{\Delta}{\Omega}\right)} e^{i(\Omega - \frac{\Delta}{2})t} \psi_1^{(0)}(t) - S \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 - \frac{\Delta}{\Omega}\right)} e^{i(\Omega + \frac{\Delta}{2})t} \psi_2^{(0)}(t), \\ \psi_2 &= S^* \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 - \frac{\Delta}{\Omega}\right)} e^{-i(\Omega - \frac{\Delta}{2})t} \psi_1^{(0)}(t) + \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 + \frac{\Delta}{\Omega}\right)} e^{i(-\Omega + \frac{\Delta}{2})t} \psi_2^{(0)}(t), \end{aligned} \quad (2.83)$$

gde je

$$\Omega = \frac{1}{2} \left[\Delta^2 + |V_{1,2}^{(1)}|^2 \right]^{1/2} = \frac{1}{2} \left[\Delta^2 + |z_{1,2}|^2 F^2 \right]^{1/2} \quad (2.84)$$

Rabijeva frekvencija sistema, $S = V_{1,2}^{(1)} / |V_{1,2}^{(1)}|$, a $\psi_1^{(0)}$ i $\psi_2^{(0)}$ neperturbovane talasne funkcije. U slučaju tačno pogođene rezonance $\Delta = 0$, Rabijeva frekvencija postaje

$$\Omega_{res} = \frac{1}{2} |z_{1,2}| F \quad (2.85)$$

i određena je perturbacijama stanja 1 i 2. Ona takođe daje širinu rezonance. Konstante D_1 i D_2 određuju se iz početnih uslova i zavise od vremena aktivacije polja i razdešavanja od rezonance.

Energije stanja ψ_1 i ψ_2 su pomerene u odnosu na neperturbovane energije

$$E_1 = E_1^{(0)} - \Omega + \frac{1}{2}\Delta, \quad E_2 = E_2^{(0)} - \Omega - \frac{1}{2}\Delta, \quad (2.86)$$

gde su E_1 i E_2 kvazienergije sistema. Njihov razmak se razlikuje od razmaka neperturbiranih energije i jednak je $\omega_{k,n} - \Delta = \omega$.

Ako se vratimo na opšte rešenje Šredingerove jednačine dato superpozicijom stanja (2.83) sa koeficijentima D_1 i D_2 vidimo da se ono sastoji od četiri stanja sa energijama

$$\begin{aligned} E_1^- &= E_1^{(0)} + \frac{1}{2}\Delta - \Omega, & E_1^+ &= E_1^{(0)} + \frac{1}{2}\Delta + \Omega, \\ E_2^- &= E_2^{(0)} - \frac{1}{2}\Delta - \Omega, & E_2^+ &= E_2^{(0)} - \frac{1}{2}\Delta + \Omega, \end{aligned} \quad (2.87)$$

što znači da postaju mogući prelazi među njima i da cepanje nivoa postaje observabilno. U slučaju totalne rezonance kad je $\Delta = 0$ imamo frekvence prelaza među stanjima

$$\omega_1 = \omega_{1,2} - V_{1,2}^{(1)}, \quad \omega_2 = \omega_{1,2}, \quad \omega_3 = \omega_{1,2} + V_{1,2}^{(1)}, \quad (2.88)$$

koje su određene Rabijevom frekvencom, pa samim tim i jačinom polja.

Dakle u polju, podešenom tako da je pogođena rezonanca između početnog i nekog od pobuđenih stanja, možemo uočiti cepanje nivoa reda veličine Rabijeve frekvence. U slučaju multifotonske jonizacije preko nekog od rezonantnih stanja imaćemo elektrone kinetičkih energija čije razlike odgovaraju cepanju intermedijarnog rezonantnog stanja. Ovaj efekat opažen je i eksperimentalno [52].

Glava 3

Analitički opis jonizacionih procesa

3.1 Režimi jonizacije i Keldišev parametar

Kada je atom izložen spoljašnjem električnom polju, pored Štarkovog pomaka, za dinamiku takvog sistema bitno je razmotriti i efekat jonizacije. U jednostavnom slučaju statičkog polja manjeg intenziteta usmerenog duž z -ose opisanog perturbacijom $V_{field} = -Fz$, oblik Kulonove jame u kojoj se vezani elektron nalazi, deformisaće se tako da u oblasti $z \rightarrow \infty$ više ne postoji donja granica za potencijalnu energiju elektrona. Zbog ove deformacije, pored oblasti unutar Kulonove jame, za elektron negativne energije E koji se kreće u potencijalu $V(\vec{r})$ otvara se još jedna oblast u kojoj je razlika $E - V(\vec{r})$ pozitivna. Ove dve oblasti u kojima je u klasičnom smislu kretanje elektrona dozvoljeno, razdvojene su potencijalnom barijerom čija je visina određena jačinom spoljašnjeg polja F . Klasično, prolazak kroz ovu barijeru nije dozvoljen, ali u formalizmu kvantne mehanike uvek postoji nenulta verovatnoća da će elektron proći ("tunelirati") na drugu stranu potencijalne barijere. Potencijal u oblasti van Kulonove jame nije ograničen sa donje strane i ubrzava elektron ka asimptotskoj oblasti. Ovo je proces jonizacije.

U slučaju opšteg promenljivog polja amplitude F i frekvencije ω , ovaj proces može biti realizovan na različite načine među kojima postoje principijelne razlike. Pored parametara spoljašnjeg polja, na režim jonizacije utiče i vrednost jonizacionog potencijala I_p atoma koji posmatramo. U svom radu iz 1964. godine [1], L. V. Keldiš utvrdio je da je u domenu frekvencija do neke granične frekvencije ω_t stopa jonizacije određena samo trenutnom vrednošću jačine polja. Frekvencija ω_t određena je širinom barijere, to jest srednjim vremenom potrebnom elektronu da prođe kroz barijeru. Njena vrednost

je definisana parametrima atoma i polja kao

$$\omega_t = \frac{F}{\sqrt{2I_p}}. \quad (3.1)$$

Posmatrajući frekvenciju spoljašnjeg polja ω u odnosu na frekvenciju ω_t kroz parametar

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t} = \frac{\omega\sqrt{2I_p}}{F}, \quad (3.2)$$

razlikujemo dva principijalno drugačija režima za jonizaciju.

Ako je $\gamma \ll 1$ nalazimo se u režimu jakih intenziteta i niskih frekvencija polja. Veća jačina polja potiskuje barijeru dovoljno da je verovatnoća tuneliranja nezanemarljiva, a oscilovanje potencijalne barijere je daleko sporije od vremena potrebnom elektronu da tunelira, pa možemo smatrati da je proces tuneliranja adijabatski i čitav proces posmatrati u kvazistatičkoj aproksimaciji. U ovom režimu, pri većim jačinama polja može takođe doći i do potpunog potiskivanja barijere ispod energije vezanog elektrona. Tada imamo prekobarijernu jonizaciju koja je za razliku od tunel jonizacije dozvoljena i u klasičnom smislu. Kvantno-mehanički, među procesima tunel jonizacije i prekobarijerne jonizacije nema principijalne razlike osim što drugi daje značajno veće koeficijente transmisije.

Sa druge strane ako je $\gamma \gg 1$ nalazimo se u režimu slabih intenziteta i visokih frekvencija u kom je barijera za sve vrednosti faze polja toliko široka tako da je verovatnoća tuneliranja zanemarljiva. Međutim, energije fotona su dovoljno visoke da apsorpcijom jednog ili više fotona elektron dobija dovoljnu energiju da se nađe u oblasti kontinuumu i jonizuje na taj način. Ovaj proces zove se multifotonska jonizacija (MPI - *multiphoton ionization*). Takođe, eksperimentalno je zabeleženo da postoji verovatnoća da elektron apsorbuje jedan ili više dodatnih fotona nego što je potrebno za jonizaciju (sa opadajućom verovatnoćom zavisno od broja fotona) [53]. Ovaj proces zovemo jonizacijom preko praga (ATI - *above threshold ionization*).

Zajedničko za sve navedene procese i složene procese koji nastaju kao njihova posledica je što, ne mogu biti opisani u okviru teorije perturbacija pa je za proračune potrebno koristiti numeričke metode.

3.2 Tunel jonizacija kod atoma vodonika

U prethodnom odeljku spomenuli smo da je u slučaju kada je $\gamma \ll 1$ verovatnoća jonizacije određena trenutnom vrednošću jačine polja i da se može računati u kvazistatičkoj aproksimaciji. Ako je uticaj polja u koordinatnoj reprezentaciji dat izrazom

$H' = -zF$, jonizacija će odgovarati prelasku elektrona u regiju $z \rightarrow \infty$ što u paraboličkim koordinatama odgovara prelasku u regiju velikih ξ i malih η .

U odsustvu polja talasna funkcija osnovnog stanja vodonika data je sa

$$\psi_0 = \frac{1}{\sqrt{\pi}} e^{-r} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} e^{-\frac{\xi+\eta}{2}}. \quad (3.3)$$

Da bi pronašli talasnu funkciju u prisustvu polja u jednačinu (2.27) uvodimo smene $E = -\frac{1}{2}$, $\beta_1 = \frac{1}{2}$ i $m = 0$ što odgovara osnovnom stanju. Takođe uvodimo smenu $\chi(\xi, \eta) = \sqrt{\xi}\psi(\xi, \eta)$ pa jednačina postaje

$$\frac{\partial^2 \chi}{\partial \xi^2} + \left[\frac{1}{2\xi} + \frac{1}{4\xi^2} + \frac{1}{4}F\xi - \frac{1}{4} \right] \chi = 0. \quad (3.4)$$

Ako odaberemo tačku ξ_0 takvu da se nalazi unutar barijere ali dovoljno blizu ulaznoj tački tako da je uticaj Kulonovog polja u $\xi = \xi_0$ dominantan u odnosu na uticaj spoljašnjeg polja onda je $1 \ll \xi_0 \ll \xi_1$ gde je ξ_1 izlazna tačka iz barijere. Talasnu funkciju tražimo tako da u delu prostora $\xi < \xi_0$ ima oblik (3.3), a u oblasti $\xi > \xi_0$ oblik kao u semiklasičnoj (WKB) aproksimaciji (formule 50.2 u referenci [46]), uz granični uslov se ove dve funkcije glatko spajaju u $\xi = \xi_0$. Na ovaj način dobijamo sledeću funkciju

$$\chi = \sqrt{\frac{\xi_0 |p_0|}{\pi p}} e^{-\frac{\xi_0 + \eta}{2} + i \int_{\xi_0}^{\xi} p d\xi + i \frac{\pi}{4}}, \quad (3.5)$$

gde je

$$p(\xi) = \sqrt{\frac{1}{2\xi} + \frac{1}{4\xi^2} + \frac{1}{4}F\xi - \frac{1}{4}}, \quad (3.6)$$

a $p_0 = p(\xi_0)$.

Pošto je stopa jonizacije proporcionalna verovatnoći nalaženja elektrona u delu prostora van uticaja Kulonovog potencijala, za dalji račun nam je potrebno $|\chi|^2$ tako da imaginarni deo u eksponentu izraza (3.5) ne uzimamo u obzir ($i\frac{\pi}{4}$ i deo integrala u oblasti $\xi > \xi_1$). Prema tome

$$|\chi|^2 = \frac{\xi_0 |p_0|}{\pi p} e^{-\xi_0 - \eta - 2 \int_{\xi_0}^{\xi_1} |p| d\xi}. \quad (3.7)$$

U slučaju slabih polja ($F \ll 1$), vrednost ξ_1 koja je određena uslovom $p(\xi_1) = 0$ iznosi $\frac{1}{F}$. U oblasti $\xi \gg 1$ imamo približne izraze za impuls

$$p \approx \frac{1}{2} \sqrt{F\xi - 1} + \frac{1}{2\xi \sqrt{F\xi - 1}}, \quad |p_0| \approx \frac{1}{2} \quad (3.8)$$

pa integral u izrazu (3.7) možemo da rešimo analitički. Dobijamo rezultat

$$|\chi|^2 = \frac{2}{\pi p F} e^{-\frac{2}{3F} - \eta}. \quad (3.9)$$

Da bi dobili stopu jonizacije, računamo struju verovatnoće kroz ravan normalnu na z -osu. Gustina ove struje duž z -ose data je sa $j = |\psi|^2 v_z$, gde je v_z brzina elektrona duž tog pravca. Ukupnu struju dobijamo kao integral gustine kroz normalnu ravan

$$w = \int_0^\infty |\psi|^2 v_z 2\pi \rho d\rho. \quad (3.10)$$

Koristići se transformacijama za prelaz u paraboličke koordinate (2.3) imamo da je $\rho = \sqrt{\xi\eta}$. Znamo da je $|\psi|^2 = \frac{|\chi|^2}{\xi}$, a po napuštanju barijere elektron ima brzinu $v_z = \sqrt{2(E - V)}$ gde su $E \approx -\frac{1}{2}$ i $V \approx 2U = -\frac{1}{2\xi} - \frac{1}{4\xi^2} - \frac{1}{4}F\xi$, iz čega sledi da je $v_z = \sqrt{-1 - 4U(\xi)} = 2p$. Takođe, diferencijal u (3.10) možemo aproksimirati koristeći činjenicu da je $\xi \gg 1$ i da se menja sporo, dok se η menja brzo. Iz toga sledi da je $d\rho = d(\sqrt{\xi\eta}) \approx \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\xi}{\eta}}d\eta$. Izraz (3.10) postaje

$$w = 2\pi \int_0^\infty |\chi|^2 p d\eta, \quad (3.11)$$

pa konačno zamenom (3.9) u (3.11) dobijamo izraz

$$w = \frac{4}{F} e^{-\frac{2}{3F}} \quad (3.12)$$

3.3 ADK teorija

Takozvana Landauova formula (3.12) lako se može uopštiti na pozitivne jone sa jednim preostalim elektronom koji se mogu tretirati kao vodoniku slični (He^{2+}, Li^{2+}, \dots). Kada se u izvođenje uključi i naelektrisanje jezgra Z izraz (3.12) dobija oblik

$$w = \frac{4Z^5}{F} e^{-\frac{2Z^3}{3F}}. \quad (3.13)$$

Ovaj izraz je pogodno prepisati preko unutrašnjih parametara za atom. U slučaju ovakvih jona, jonizacioni potencijal dat je sa $I_p = \frac{Z^2}{2}$, a jačina električnog polja na elektronskoj orbiti $F_0 = (2I_p)^{3/2}$. Zamenom ovih parametara u (3.13) dobijamo

$$w = 8I_p \frac{F_0}{F} e^{-\frac{2F_0}{3F}}. \quad (3.14)$$

Uopštenje izraza (3.14) na vodoniku sličan atom u proizvoljnom stanju sa kvantnim brojevima (n, l, m) razmatrali su Čibišev i Smirnov [54], a konačno izračunali Pere-
lomov, Popov i Terentev [5]. Kao i u slučaju atoma vodonika, glavna ideja je da se
WKB talasna funkcija koja opisuje asimptotsku oblast graničnim uslovima glatko po-
veže sa neperturovanom talasnom funkcijom osnovnog stanja u tački ξ_0 takvoj da
 $1 \ll k\xi_0 \ll \frac{F_0}{F}$ oko koje je doprinos potencijala spoljašnjeg polja istog reda kao dopri-
nos Kulonovog potencijala. Konstanta iz uslova određena je relacijama $k = (2I_p)^{1/2}$
i $F_0 = k^3$, pri čemu je $I_p = \frac{Z^2}{2n^2}$. Iz ovih uslova dobija se uopštena formula analogna
izrazu (3.14) poznata kao PPT (Perelomov, Popov i Terentev) formula

$$w = |C_{n,l}|^2 I_P \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!(l-|m|)!} \left(\frac{2F_0}{F}\right)^{2n-|m|-1} e^{-\frac{2F_0}{3F}} \quad (3.15)$$

gde je

$$|C_{n,l}|^2 = \frac{2^{2n}}{n(n+l)!(n-l-1)!}. \quad (3.16)$$

PPT formulu moguće je uopštiti i na atome koji nisu vodonikovog tipa. Kulo-
nov potencijal jezgra prilikom jonizacije zameničemo efektivnim potencijalom atomskog
ostatka (jezgro + vezani elektroni). Ekraniranje pozitivnog jezgra vezanim elektronima
opisano je kvantnim defektom μ koji je jednak razlici između glavnog kvantnog broja
 n i necelobrojnog efektivnog kvantnog broja $n^* = Z/\sqrt{2I_p}$ za dati nivo. Zamenom
 $n \rightarrow n^*$ i analogno $l \rightarrow l^* = n_0^* - l$ (gde je n_0^* efektivni kvantni broj najnižeg stanja za
dato l) u izraz (3.15) dobijamo

$$w = |C_{n^*,l^*}|^2 I_P \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!(l-|m|)!} \left(\frac{2F_0}{F}\right)^{2n^*-|m|-1} e^{-\frac{2F_0}{3F}} \quad (3.17)$$

gde su konstantu $|C_{n^*,l^*}|^2$ za nevodonične atome izračunali Amosov, Delone i Krainov.
Ovaj izraz ima oblik

$$|C_{n^*,l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^*\Gamma(n^*+l^*+1)\Gamma(n^*-l^*)}. \quad (3.18)$$

Zajedno, izrazi (3.17) i (3.18) često se u literaturi nazivaju ADK formulom. Kon-
stantu $|C_{n^*,l^*}|^2$ često u praksi računamo za velike kvantne brojeve pa Γ -funkcije u njoj
možemo aproksimirati Stirlingovom formulom da dobijemo numerički pogodniji izraz

$$|C_{n^*,l^*}|^2 = \left(\frac{4e^2}{n^{*2} - l^{*2}}\right)^{n^*} \left(\frac{n^* + l^*}{n^* - l^*}\right)^{l^* + \frac{1}{2}} \frac{1}{2\pi n^*}. \quad (3.19)$$

ADK teorija primenljiva je isključivo kada je zadovoljen uslov tunel jonizacije $\gamma \ll 1$ koji nam garantuje da je takozvano vreme tuneliranja mnogo kraće od perioda oscilovanja spoljašnjeg polja. Ovo znači da se promena spoljašnjeg polja posmatra kao adijabatska i da u svakom trenutku možemo smatrati da proces ima statički karakter. Međutim, ovaj kvazistatički pristup nas ne ograničava u mogućnosti da proces opišemo i za promenljivo polje. Da bismo dobili vrednosti stope jonizacije u promenljivom polju maksimalne jačine F_{peak} , frekvencije ω i faze obvojnice φ , potrebno je u formulama (3.17) izvršiti zamenu

$$F \rightarrow F(t) = F_{peak}(t) \cos(\omega t + \varphi) \quad (3.20)$$

i izvršiti usrednjavanje po periodu polja. Na taj način dobijamo vrednosti stope jonizacije bez narušavanja kvazistatičnosti koja je potrebna da bi formula bila primenljiva.

Glava 4

Metodi propagacije talasnog paketa

4.1 Šredingerova jednačina i modelni potencijal

Numeričko rešavanje Šredingerove jednačine atomskog sistema sa proizvoljnim brojem elektrona zahteva primenu računarskih sistema visokih performansi i često je programerski zahtevan problem. Međutim, u slučaju jednoelektronskih procesa, ovaj težak problem moguće je pojednostaviti upotrebom modelnih potencijala i izvesnih aproksimacija koje nam u proračunima smanjuju broj razmatranih stepeni slobode.

4.1.1 Efektivni potencijal valentnog elektrona u polju atomskog ostatka i spoljašnjeg polja

Kod alkalnih metala izloženih elektromagnetnom polju energija u blizini vidljivog spektra, ovakvu aproksimaciju pogodno je uvesti jer energije polja u tom opsegu nisu dovoljne da značajno perturbuju elektrone u zatvorenim ljuskama. Stoga, atomsko jezgro i sve zatvorene ljuske zajedno možemo posmatrati kao efektivno jezgro (atomski ostatak) koje opisujemo efektivnim potencijalom, a interakciju atoma sa poljem opisujemo samo kroz dinamiku valentnog elektrona. U slučaju alkalnih metala koji imaju samo jedan valentni elektron, Kulonov potencijal jezgra naelektrisanja Z , ekraniran je sa $Z - 1$ elektrona u zatvorenim ljuskama. Potencijal atomskog ostatka potrebno je konstruisati tako da u blizini jezgra uzme u obzir ovo ekraniranje i opiše odbojnu elektron-elektron interakciju, a u asimptotskoj oblasti $r \rightarrow \infty$ odgovara Kulonovom potencijalu atoma vodonika $V_c(r) = -\frac{1}{r}$ i da, do na zadovoljavajuću tačnost, reprodukuje energije vezanih stanja datog alkalnog metala poznate iz eksperimentalnih podataka.

Nalik na vodonik, energetske nivoe alkalnih metala moguće je reprodukovati formulom Ridbergovog (Rydberg) tipa $E_{n,l} = -1/2n^{*2}$ koja umesto glavnog kvatnog broja

koristi efektivni kvantni broj $n^* = n - \mu_{n,l}$ ($n > n_0$) gde je $\mu_{n,l}$ takozvani kvantni defekt koji u sebi implicitno sadrži informaciju o uticaju vezanih elektrona na valentni elektron i približno je funkcija samo od kvantnog broja l .

Međutim, pristup samo preko efektivnih kvantnih brojeva ima ograničenu primenu i za potpunije razumevanje dinamike valentnog elektrona potrebno je da znamo eksplicitan oblik potencijala. Da bi dodatno pojednostavili problem, u model efektivnog potencijala pogodno je uvesti i aproksimaciju da je uticaj spoljašnjeg polja na unutrašnje elektrone zanemarljivo mali. Ova aproksimacija poznata je u literaturi kao aproksimacija zamrznutog jezgra (FCA - frozen core approximation) i važi ukoliko je elektron-elektron i elektron-jezgro interakcija mnogo intenzivnija od interakcije elektrona sa spoljašnjim poljem. Ukoliko polje nije mnogo jako, ovaj uslov je skoro uvek zadovoljen.

Jedan od jednostavnijih potencijala koji zadovoljava sve navedene kriterijume u svom radu, predložio je Helman (Hellmann) [55]. Ovaj potencijal ima oblik

$$V_{core} = -\frac{1}{r} + \frac{A}{r}e^{-\alpha r}. \quad (4.1)$$

Pored uobičajenog Kulonovog člana, potencijalu je dodat i kratkodometni član sa podesnim parametrima A i α . Na manjim rastojanjima, kratkodometni član je dominantan i odbojnog je karaktera, a u asimptotskoj oblasti ovaj član brzo opada i dominantna postaje Kulonova interakcija sa atomskim ostatkom.

Podesni parametri A i α u principu nisu jednoznačni i u literaturi postoje različite predložene vrednosti od različitih autora [56, 57]. Ovo je posledica toga što je jedan parametar uvek moguće prilagoditi promeni drugog tako da se zadrži ista vrednost jonizacionog potencijala.

Vrednosti koje ćemo u ovom istraživanju koristiti da opišemo stanja atoma natrijuma su $A = 21$ i $\alpha = 2.5492$ za koja se pokazalo da su, pored energije osnovnog stanja, dobro reprodukovane i energije jednostruko pobuđenih stanja (do na grešku od 1%). Primenljivost ovog pseudopotencijala proizilazi iz pretpostavke u okviru teorije kvantnih defekata [58] koja tvrdi da je moguće dobiti dobre aproksimacije funkcije stanja valentnog elektrona $\Psi_{n,l,m}(\mathbf{r})$ van jezgra, ako pseudopotencijal vodi do tačnih energija svih stanja Ridbergove serije. Ova stanja imaju uobičajen oblik razbijen na radijalnu funkciju i sferne harmonike $\Psi_{n,l,m}(\mathbf{r}) = R_{n,l}(r)Y_{l,m}(\Omega)$, gde radijalne funkcije dobijamo numeričkim rešavanjem Šredingerove jednačine sa pseudopotencijalom (4.1).

Uz primenu ovog potencijala, hamiltonijan koji opisuje dinamiku valentnog elektrona atoma natrijuma u promenljivom električnom polju usmerenom duž z -ose ima

oblik

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{core} - F(t)z, \quad (4.2)$$

gde je

$$F(t) = F_{env}(t) \cos(\omega t + \phi). \quad (4.3)$$

Vrednosti ω i ϕ su frekvencija i faza spoljašnjeg polja, respektivno, a $F_{env}(t)$ je funkcija obvojnice koja se može prilagoditi željenom obliku pulsa. Za linearno polarisano polje, sistem ima aksijalnu simetriju pa magnetni kvantni broj m ostaje dobar kvantni broj za bilo koju jačinu polja. Pošto su u osnovnom stanju atoma natrijuma i orbitalni i magnetni kvantni broj jednaki nuli, zbog simetrije možemo bez gubitka opštosti da u svim proračunima izaberemo $m = 0$.

4.2 Vremenski zavisani opis dinamike valentnog elektrona

Dinamika valentnog elektrona u jakom, elektromagnetnom polju je vremenski zavisani problem sa vrednostima potencijala koje ispadaju iz domena primenljivosti teorije perturbacija. Za pun, vremenski zavisani opis, potrebno je rešiti vremenski zavisnu Šredingerovu jednačinu oblika

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\Psi(t)\rangle = \hat{H}|\Psi(t)\rangle \quad (4.4)$$

gde je $H(t)$ hamiltonijan (4.2), a $|\Psi(t)\rangle$ vektor stanja valentnog elektrona u trenutku t . Ekvivalentno, ova jednačina se može zapisati i pomoću evolucionog operatora kao

$$|\Psi(t)\rangle = \hat{U}(t)|\Psi(0)\rangle \quad (4.5)$$

gde je

$$\hat{U}(t) = e^{i\hat{H}t} \quad (4.6)$$

evolucionom operatoru.

Prelazak sa diferencijalnog na integralni zakon kretanja omogućava nam da ovaj inače zahtevan problem rešavamo koristeći adekvatnu reprezentaciju evolucionog operatora u nekom malom vremenskom intervalu Δt . Jednačina koju numerički integralimo je (u koordinatnoj reprezentaciji)

$$\Psi(\vec{r}, t + \Delta t) = \hat{U}(t, t + \Delta t)\Psi(\vec{r}, t). \quad (4.7)$$

Integracija se vrši sukcesivnom primenom evolucionog operatora sa malim vremenskim korakom na talasnu funkciju predstavljenu na koordinatnoj mreži. Ako imamo numerički stabilnu šemu za reprezentaciju evolucionog operatora u koraku Δt , kompletnu dinamiku sistema možemo opisati počevši od poznavanja oblika talasne funkcije neperturbovanog sistema $\Psi_0(\vec{r}) = \Psi(\vec{r}, 0)$.

4.3 Određivanje talasnih funkcija neperturbovanog sistema

Pre uključanja polja, valentni elektron atoma natrijuma, nalazi se u sferno simetričnom potencijalu, a njegova dinamika opisana je vremenski nezavisnom Šredingerovom jednačinom

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{core}(\vec{r}) \right] \Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}) \quad (4.8)$$

gde je E svojstvena energija stanja.

Zbog sferne simetrije, ovaj problem možemo rešavati slično kao kod atoma vodonika, prelaskom na sferne koordinate. Uz eksplicitnu reprezentaciju laplasijana u sfernim koordinatama, Šredingerova jednačina dobija oblik

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \Psi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \left[\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \phi^2} \right] + 2[E - V_{core}(r)] \Psi = 0, \quad (4.9)$$

gde je

$$V_{core}(r) = -\frac{1}{r} + \frac{A}{r} e^{\alpha r} \quad (4.10)$$

Helmanov pseudopotencijal sa parametrima za atom natrijuma.

Ako u jednačini (4.9) prepoznamo operator kvadrata angularnog momenta

$$\hat{L}^2 = - \left[\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \right], \quad (4.11)$$

onda ona dobija oblik

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \Psi}{\partial r} \right) + 2 \left[E - V_{core}(r) - \frac{\hat{L}^2}{2r^2} \right] \Psi = 0. \quad (4.12)$$

U centralno simetričnom polju, angularni moment i njegova projekcija su održane fizičke veličine i imaju dobro određene vrednosti. Zbog ovoga, rešenje Šredingerove jednačine (4.12) možemo da tražimo u obliku

$$\Psi(\vec{r}) = R(r)Y_{l,m}(\theta, \phi), \quad (4.13)$$

gde su funkcije $Y_{l,m}(\theta, \phi)$ sferni harmonici.

Sferni harmonici su svojstvene funkcije operatora \hat{L}^2 , sa svojstvenim vrednostima $l(l+1)$. Koristeći se ovom činjenicom, iz jednačine (4.14) možemo eliminasti sferne harmonike i dobiti jednačinu za $R(r)$

$$\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{dR}{dr} \right) + 2 \left[E - V_{core}(r) - \frac{l(l+1)}{2r^2} \right] R = 0. \quad (4.14)$$

Konačno, radi jednostavnosti uvodimo smenu

$$R(r) = \frac{u(r)}{r} \quad (4.15)$$

pa, uz eksplicitnu reprezentaciju potencijala, jednačina (4.14) postaje

$$\frac{d^2 u}{dr^2} + \left[E + \frac{1}{r} - \frac{A}{r} e^{-\alpha r} - \frac{l(l+1)}{2r^2} \right] u = 0. \quad (4.16)$$

Za parametre pseudopotencijala koristimo vrednosti navedene u prethodnom odeljku, a budući da su energije stanja atoma natrijuma dobro poznate u literaturi [63], funkcije stanja možemo dobiti varijaciono tražeći stabilno rešenje jednačine (4.16) u okolinama poznatih energija. Na ovaj način možemo dobiti ne samo funkciju osnovnog stanja, već i bilo kog pobuđenog stanja što nam je od velikog značaja za analize o kojima će biti reči kasnije.

4.4 Numerički metodi

Jednom kada imamo eksplicitni oblik neperturbovane talasne funkcije, potrebno je da imamo stabilnu šemu numeričke integracije Šredingerove jednačine. U odeljku 4.2 bilo je reči o evolucionom operatoru i njegovom značaju u formiranju jedne takve šeme. U ovom odeljku reći ćemo nešto više o prednostima i manama različitih šema predloženih u literaturi [59].

4.4.1 Metod konačnih razlika prvog reda

Ako razmatramo vremenski zavisnu Šredingerovu jednačinu u jednoj dimenziji

$$\frac{\partial}{\partial t} \Psi = -i \hat{H} \Psi \quad (4.17)$$

gde je Hamiltonijan u koordinatnoj reprezentaciji dat sa

$$\hat{H}(t) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x, t). \quad (4.18)$$

Evolucionni operator $\hat{U}(t, t + \Delta t) = e^{-i\Delta t \hat{H}(t)}$ deluje na talasnu funkciju kao

$$\Psi(x, t + \Delta t) = \hat{U}(t, t + \Delta t)\Psi(x, t). \quad (4.19)$$

Pošto je prilikom rešavanja Šredingerove jednačine nužno diskretizovati prostor i vreme sa koracima Δx i Δt respektivno, radi preglednosti umesto notacije koja koristi kontinualne koordinate x i t zgodnije je uvesti diskretnu notaciju koja prebrojava poziciju na diskretnoj mreži

$$\Psi(x, t) \rightarrow \Psi_j^n = \Psi(x_j, t_n), \quad x_j = j\Delta x, \quad t_n = n\Delta t. \quad (4.20)$$

Koristeći notaciju (4.20) i jednačinu (4.19) imamo sledeće izraze za vremensku evoluciju talasne funkcije reprezentovane na diskretnoj mreži

$$\Psi_j^{n+1} = e^{-i\Delta t \hat{H}} \Psi_j^n, \quad \Psi_j^{n-1} = e^{i\Delta t \hat{H}} \Psi_j^n, \quad (4.21)$$

koje nam omogućavaju da, ako poznajemo oblik talasne funkcije u nekom trenutku, izračunamo njen oblik u bilo kom susednom trenutku.

Najjednostavniji metod za rešavanje jednačina (4.21) koristi se razvojem evolucionog operatora u Tejlorov red ograničavajući se na član prvog reda

$$\Psi_j^{n+1} = \left(1 - i\Delta t \hat{H}\right) \Psi_j^n. \quad (4.22)$$

Hamiltonijan H u kinetičkom članu sadrži izvod drugog reda po koordinati. Da bi dobili eksplicitni oblik jednačine (4.22) koristimo izraz za izvod drugog reda do tačnosti $o(\Delta x^2)$ za ravnomernu diskretnu mrežu

$$\left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial x^2} \right|_j^n = \frac{\Psi_{j+1}^n + \Psi_{j-1}^n - 2\Psi_j^n}{\Delta x^2}. \quad (4.23)$$

Zamenom u jednačinu (4.22) imamo

$$\Psi_j^{n+1} = [1 - i(2\alpha + V_j^n \Delta t)] \Psi_j^n + i\alpha (\Psi_{j+1}^n + \Psi_{j-1}^n), \quad (4.24)$$

gde je $V_j^n = V(x_j, t_n)$ diskretizovani potencijal, a parametar α je dat sa

$$\alpha = \frac{1}{2} \frac{\Delta t}{\Delta x^2}. \quad (4.25)$$

Ovaj metod rešavanja vremenski zavisne Šredingerove jednačine zove se metod konačnih razlika prvog reda ili grubi Ojlerov metod. Da bi proverili numeričku stabilnost ovog metoda prema Kurant-Levi-Fridrihovom kriterijumu [60], razmotrićemo grešku

$$\epsilon_j^n = \hat{\epsilon}^n \exp(iq x_j), \quad (4.26)$$

u talasnoj funkciji Ψ_j^n i uračunaćemo evoluciju ove greške ϵ_j^{n+1} tokom evolucije talasne funkcije u Ψ_j^{n+1} . Zamenom izraza

$$\begin{aligned}\Psi_j^n &\rightarrow \Psi_j^n + \epsilon_j^n, \\ \Psi_j^{n+1} &\rightarrow \Psi_j^{n+1} + \epsilon_j^{n+1}\end{aligned}\tag{4.27}$$

u jednačinu (4.24) imamo

$$\hat{\epsilon}^{n+1} = [1 - \imath (2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + V_j^n \Delta t)] \hat{\epsilon}^n.\tag{4.28}$$

Odnos $\hat{\epsilon}^{n+1}/\hat{\epsilon}^n$, naziva se faktorom rasta g i koristi se za procenu numeričke stabilnosti. Za grubu Ojlerovu šemu

$$g = 1 - \imath (2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + V_j^n \Delta t).\tag{4.29}$$

Uslov nestabilnosti numeričke šeme je $|g| > 1$. Ako je ovaj uslov zadovoljen, pri svakom koraku računanja vremenske evolucije, greška će se brzo nagomilavati i rezultat će početi da divergira. U slučaju grube Ojlerove šeme

$$|g|^2 = 1 + (2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + V_j^n \Delta t)^2,\tag{4.30}$$

dakle $|g| > 1$ za bilo koji talasni broj q u greškama. Ova nestabilnost je rezultat asimetričnosti u računanju vremenskog izvoda u (4.24) koja efektivno nagomilava grešku samo sa jedne strane. Iako sama po sebi ova šema nije primenljiva na zahtevnije probleme, pruža nam dobru polaznu tačku za druge, stabilnije, metode računa.

4.4.2 Krank-Nikolsonov metod

Krank-Nikolsonova šema rešava problem asimetričnosti vremenskog izvoda eliminacijom Ψ_j^n iz jednačina (4.21) koja proizvodi izraz

$$e^{\imath\hat{H}\Delta t}\Psi_j^{n+1} = e^{-\imath\hat{H}\Delta t}\Psi_j^{n-1}.\tag{4.31}$$

Ako zatim, kao u prethodnom odeljku, razvijemo eksponente u red do tačnosti $o(\Delta t^2)$ dobijamo

$$(1 + \imath\hat{H}\Delta t)\Psi_j^{n+1} = (1 - \imath\hat{H}\Delta t)\Psi_j^{n-1},\tag{4.32}$$

gde kao u jednačini (4.23) možemo prostorne izvode u Hamiltonijanu da prikažemo preko konačnih razlika da bismo dobili izraz

$$\begin{aligned}& [1 + \imath(2\alpha + V_j^n \Delta t)] \Psi_j^{n+1} - \imath\alpha (\Psi_{j+1}^{n+1} + \Psi_{j-1}^{n+1}) \\ &= [1 - \imath(2\alpha + V_j^n \Delta t)] \Psi_j^{n-1} + \imath\alpha (\Psi_{j+1}^{n-1} + \Psi_{j-1}^{n-1}),\end{aligned}\tag{4.33}$$

koji čini Krank-Nikolsonovu šemu. Ako definišemo Ψ^n kao vektor sa bazisnim komponentama Ψ_j^n , prethodnu jednačinu možemo zapisati u matričnom obliku

$$A \cdot \Psi^{n+1} = B \cdot \Psi^{n-1}, \quad (4.34)$$

gde je $A = B^*$, a njihove matrične elemente lako možemo dobiti iz (4.33). Krank-Nikolsonova šema je onda šema implicitne integracije gde Ψ^{n+1} možemo dobiti invertovanjem matrice A .

Kao i u prethodnom odeljku, možemo testirati stabilnost ovog metoda pomoću faktora rasta g koji je u ovom slučaju

$$g = \frac{1 - i[2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + 2V_j^n \Delta t]}{1 + i[2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + 2V_j^n \Delta t]}, \quad (4.35)$$

pa je stoga

$$|g| = 1, \quad (4.36)$$

što znači da numerička greška ne raste eksponencijalno.

Šema je implicitna u smislu da su preko matrične jednačine (4.34) vrednosti talasne funkcije u tačkama na diskretnoj mreži međusobno spregnute i da se umesto rešavanja diferencijalnih jednačina, problem svodi na algebarske jednačine sa komponentama funkcije Ψ^n .

4.4.3 Metod konačnih razlika drugog reda

Počevši od slične pretpostavke kao za Krank-Nikolsonov metod, možemo dobiti i malo drugačiju šemu za numeričku integraciju. Umesto eliminacije Ψ_j^n iz jednačina (4.21), te jednačine možemo oduzeti jednu od druge da dobijemo

$$\Psi_j^{n+1} - \Psi_j^{n-1} = (e^{-i\hat{H}\Delta t} - e^{i\hat{H}\Delta t})\Psi_j^n, \quad (4.37)$$

a zatim, ekspanzijom eksponenata u Tejlorov red

$$\Psi_j^{n+1} = -2i\hat{H}\Delta t\Psi_j^n + \Psi_j^{n-1}. \quad (4.38)$$

Ponovo, ako prostorne izvode u hamiltonijanu napišemo preko konačnih razlika, dobijamo izraz

$$\Psi_j^{n+1} = -2i[(2\alpha + V_j^n \Delta t)\Psi_j^n - \alpha(\Psi_{j+1}^n - \Psi_{j-1}^n)] + \Psi_j^{n-1} \quad (4.39)$$

koji čini metod konačnih razlika drugog reda.

Pri analizi numeričke stabilnosti kao u ostalim metodama ovog tipa u prethodnim odeljcima dobijamo jednačinu za faktor rasta g

$$g^2 + 2i [2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + V_j^n \Delta t] g - 1 = 0. \quad (4.40)$$

Iz kvadratne jednačine (4.40) za g dobijamo dva rešenja

$$g_{1,2} = -i[2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + V_j^n \Delta t] \pm [1 - [2\alpha(1 - \cos q\Delta x) + V_j^n \Delta t]^2]^{1/2}. \quad (4.41)$$

Kao i u Krenk-Nikolsonovoj šemi, apsolutna vrednost faktora rasta je

$$|g_1| = |g_2| = 1 \quad (4.42)$$

i šema je stabilna.

Prednost metoda konačnih razlika drugog reda u odnosu na Krenk-Nikolsonov metod je u tome što evoluciju može da računa direktno iz poznavanja talasne funkcije u prethodnim vremenskim trenucima bez potrebe za prethodnu inverziju matrice.

Pošto je za računanje talasne funkcije u trenutku $t + \Delta t$ potrebno znati oblik funkcije u trenutku t i u trenutku $t - \Delta t$, u praksi ovaj metod koristimo uz pomoć metoda konačnih razlika prvog reda koji koristimo samo u prvom koraku da bi izbegli dalje nagomilavanje greške.

Preciznost svih metoda konačnih razlika može se povećati uz korišćenje bolje aproksimacije za drugi izvod po prostornoj koordinati. Šema korišćena za ove proračune data je u dodatku A na kraju teze.

4.4.4 Metod razdvojenog operatora

U prethodnim odeljcima već smo napomenuli da se evolucija talasne funkcije $\Psi(\vec{r}, t)$ za vremenski korak Δt može zapisati preko evolucionog operatora $\hat{U}(t + \Delta t, t)$ kao

$$\Psi(\vec{r}, t + \Delta t) = \hat{U}(t + \Delta t, t)\Psi(\vec{r}, t) \quad (4.43)$$

gde je evolucioni operator dat sa

$$\hat{U}(t + \Delta t) = \exp(-i\hat{H}\Delta t). \quad (4.44)$$

Evolucionni operator u sebi sadrži Hamiltonijan sistema koji se može razložiti na kinetički i potencijalni deo kao $\hat{H} = \hat{T} + \hat{V}$. Međutim, pošto operatori kinetičke i potencijalne

energije međusobno ne komutiraju, kao posledicu Bejker-Kempbel-Hausdorfove formule imamo da

$$e^{i\hat{H}\Delta t} \neq e^{i\hat{T}\Delta t} e^{i\hat{V}\Delta t}. \quad (4.45)$$

Međutim, za malo Δt važi približno razlaganje [61]:

$$e^{i\hat{H}\Delta t} = e^{i\frac{\hat{V}}{2}\Delta t} e^{i\hat{T}\Delta t} e^{i\frac{\hat{V}}{2}\Delta t} + O(\Delta t^3). \quad (4.46)$$

Članovi višeg reda u izrazu (4.46) sadrže višestruke komutatore između operatora \hat{T} i \hat{V} , ali se uz izbor dovoljno malog Δt ovi članovi mogu zanemariti pa izraz daje približno razlaganje evolucionog operatora. Korišćenje ovog razlaganja za rešavanje vremenski zavisne Šredingerove jednačine zove se metod razloženog operatora.

Ovaj metod posebno je pogodan ako je Hamiltonijan dat u Dekartovom koordinatnom sistemu jer se onda u koordinatnom i impulsnom prostoru operatori potencijalne i kinetičke energije svode na obično množenje. Metod se svodi na sukcesivnu primenu odgovarajućih faktora operatora vremenske evolucije iz jednačine (4.46) na talasnu funkciju u reprezentaciji u kojoj je odgovarajući faktor multiplikativni operator. Brz prelazak iz koordinatne u impulsnu reprezentaciju i nazad postizemo diskretnom Furijeovom transformacijom i FFT algoritmom (Fast Fourier Transform - brzi Furijeov transform). Numerički kod za računanje brzog Furijeovog transformata dostupan je u dodatku B

Pri numeričkom računanju, talasna funkcija predstavljena je nizom diskretizovanih vrednosti u konfiguracionom (odnosno impulsnom) prostoru. Ako je x koordinata u konfiguracionom prostoru ograničena na interval dužine L koji je podeljen na N segmenata, onda je odgovarajuća komponenta impulsa u impulsnom prostoru ograničena na interval $-\pi/L < p_x < \pi/L$ koji takođe ima N segmenata. Prema tome, veličine odgovarajućih segmenata moraju biti $\Delta x = L/N$ i $\Delta p_x = 2\pi/L$. Zbog prirode FFT algoritma, broj segmenata na bilo kom intervalu mora biti 2^n (gde je n prirodan broj).

Ako stanja sistema nisu vezana stanja, metod razloženog operatora baziran na FFT algoritmu ima osobinu da delovi talasnog paketa koji dostignu granicu domena nastavlja svoju propagaciju sa suprotne strane. Metod, dakle implicitno nameće granični uslov $\Psi(x + L, t) = \Psi(x, t)$. Ovaj uslov je koristan ukoliko se metod koristi za opisivanje propagacije kroz periodične potencijale. Međutim, u slučaju kada u problemu nema periodičnosti, da bismo efektivno eliminisali ovaj uslov, blizu granice domena uvodimo čisto imaginaran član potencijalu koji ima ulogu apsorbera i naziva se apsorbujući potencijal.

4.4.5 Diskretizacija u vremenski zavisnim metodama

Kao što se može videti u prethodnim odeljcima, diskretizacija prostornih i vremenskih koordinata je važan korak u numeričkom rešavanju Šredingerove jednačine, a ona sa sobom nosi izvesne poteškoće koje se retko spominju u literaturi.

U ovom radu, najzastupljeniji metod izračunavanja vremenske evolucije je metod konačnih razlika drugog reda (SOD metod) prilagođen za rad u cilindričnim koordinatama. Hamiltonijan razmatranog sistema u sfernom koordinatnom sistemu ima oblik

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{core}(r) + V_{ext}(\vec{r}), \quad (4.47)$$

gde je $V_{core}(r)$ efektivni potencijal atomskog ostatka, a $V_{ext}(\vec{r})$ potencijal spoljašnjeg polja. U okviru SOD metoda, jednačina vremenske evolucije koju rešavamo je

$$\Psi(\vec{r}, t + \Delta t) = \Psi(\vec{r}, t - \Delta t) - 2i\Delta t \hat{H} \Psi(\vec{r}, t). \quad (4.48)$$

Ako $V_{ext}(\vec{r})$ iz jednačine (4.47) opisuje linearno polarisano spoljašnje polje usmereno duž z -ose, onda sistem ima aksijalnu simetriju i zgodno je da napišemo talasnu funkciju u cilintričnim koordinatama. Ako uvedemo smenu

$$\Psi(\vec{r}, t) = \Phi(\rho, z, t) \frac{e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi\rho}} \quad (4.49)$$

gde je m magnetni kvantni broj, jednačina (4.48) postaje

$$\Phi(\rho, z, t + \Delta t) = \Phi(\rho, z, t - \Delta t) - 2i\Delta t \hat{\mathcal{H}} \Phi(\rho, z, t) \quad (4.50)$$

gde je

$$\hat{\mathcal{H}} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V_{eff}(\rho, z) \quad (4.51)$$

sa efektivnim potencijalom

$$V_{eff}(\rho, z) = \frac{m^2 + 1/4}{2\rho^2} + V_{core}(r) + V_{ext}(\vec{r}). \quad (4.52)$$

Izvode drugog reda $\partial^2\Phi/\partial\rho^2$ i $\partial^2\Phi/\partial z^2$ koji se pojavljuju pri računanju $\hat{\mathcal{H}}\Phi$ računamo koristeći metod konačnih razlika (videti dodatak A). Ovaj metod, međutim, divergira pri vrednostima ρ bliskim nuli. Efektivni potencijal (4.52) sa $m = 0$ se u limitu $\rho \rightarrow 0$ ponaša kao $-1/8\rho^2$, dok se rešenja Šredingerove jednačine ponašaju kao $\Phi \sim \sqrt{\rho}$, a njihov drugi izvod $\partial^2\Phi/\partial\rho^2 \sim -\rho^{-3/2} \rightarrow -\infty$. Stoga, direktna primena

metoda konačnih razlika za malo ρ može da dovede do brzog nagomilavanja velike numeričke greške.

Ovaj problem rešavamo tako što uvodimo smenu

$$u(\rho, z) = \Phi(\rho, z)/\sqrt{\rho} \quad (4.53)$$

koja sporo varira za vrednosti ρ bliske nuli. Posledica ovoga je da su ρ -izvodi funkcije $u(\rho, z)$ male (konačne) vrednosti koje mogu biti precizno određene metodom konačnih razlika. Odgovarajuće vrednosti $\partial^2\Phi/\partial\rho^2$ onda dobijamo inverznom transformacijom

$$\frac{\partial^2\Phi}{\partial\rho^2} = -\frac{u(\rho, z)}{4\rho^{3/2}} + \frac{1}{\rho^{1/2}}\frac{\partial u}{\partial\rho} + \rho^{1/2}\frac{\partial^2 u}{\partial\rho^2}. \quad (4.54)$$

Ovaj pristup daje najbolje rezultate kada se funkcija (4.53) koristi za $\rho \leq \rho_c$, gde je ρ_c neka razdaljina reda Borovog radijusa, a kada izvode od Φ računamo direktno za $\rho > \rho_c$.

Glava 5

Kvazistatički procesi kod atoma natrijuma

5.1 Kvazistatička aproksimacija

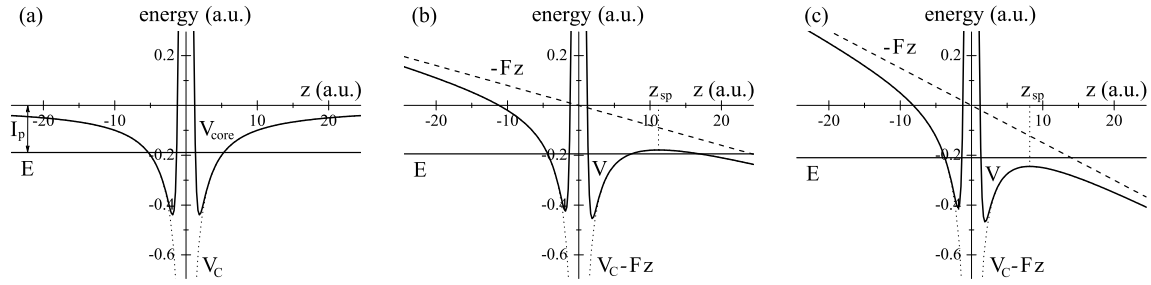
Kao što je rečeno u prethodnom odeljku, interakciju laserskog zračenja energija u blizini vidljivog spektra sa atomima alkalnih metala možemo dobro opisati kroz dinamiku valentnog elektrona posmatrajući te atome kao jednoelektronske sisteme. Dobro slaganje energijskog spektra sa dostupnim eksperimentalnim rezultatima možemo postići koristeći Helman-ov pseudopotencijal (4.1) za opis ekraniranja pozitivnog jezgra elektronima iz popunjenih ljuski. Hamiltonijan ovako definisanog sistema ima opšti oblik

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 - \frac{1}{r} + \frac{A}{r}e^{-\alpha r} - F_{env}(t) \cos(\omega t + \phi)z, \quad (5.1)$$

gde prvi član predstavlja kinetičku energiju, drugi Kulonovu interakciju sa jezgrom, treći Helmanovu kratkodometnu korekciju, a četvrti interakciju sa spoljašnjim poljem frekvencije ω i faze ϕ linearno polarisanim duž z -ose.

U slučaju kada je frekvencija spoljašnjeg polja ω mala u poređenju sa graničnom frekvencijom ω_t (3.1), Keldišev parametar (3.2) je mnogo manji od jedinice ($\gamma \ll 1$) i sistem se nalazi u domenu u kom je dominantan proces jonizacije tuneliranje.

Iako je ovaj sistem u principu moguće numerički tretirati bez aproksimacija, radi ubrzanja numerike pogodno je kao u odeljku 3.3 uvesti takozvanu kvazistatičku aproksimaciju. Ako primetimo da se uz uslov $\omega \ll \omega_t$ posmatrani proces tuneliranja odvija adijabatski, možemo vremenski zavisni član u jednačini (5.1) da zamenimo statičkim poljem u nekom posmatranom trenutku t i jednačinu rešavamo kao statičku. Hamilto-



Slika 5.1: Potencijalna energija $V = V_{\text{core}}(r) - Fz$ (zapravo njen $x = y = 0$ presek – pune linije) i najniži energijski nivo E (horizontalne pune linije) valentnog elektrona atoma natrijuma za tri različita polja primenjenog električnog polja: (a) $F = 0$, (b) $F = 0.008$ a.u. i (c) $F = 0.015$ a.u. Efektivni potencijal jezgra $V_{\text{core}}(r)$ je predstavljen Helmanovim pseudopotencijalom [55]. Slučajevi (b) i (c) odgovaraju režimu tuneliranja i preko-barijernom režimu, respektivno. Radi poređenja, sume (tačkaste linije) Kulonovog potencijala $V_C = -1/r$ i odgovarajućih doprinosa spoljašnjeg polja $-Fz$ (isprekidane linije) prikazane su na istim graficima.

nijan (5.1) tada dobija oblik

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{\text{core}}(r) - Fz, \quad (5.2)$$

gde je $V_{\text{core}}(r)$ Helmanov pseudopotencijal, a F jačina statičkog električnog polja.

Ovako definisani, potencijal jezgra i spoljašnje električno polje formiraju sedlastu tačku duž z -ose. I pozicija $z = z_{\text{sp}}$ i visina $V_{\text{sp}} = V(\mathbf{r}_{\text{sp}})$ sedlaste tačke zavise od jačine polja (slika 5.1) Pošto elektron može da tunelira kroz barijeru, atom ima nenultu verovatnoću jonizacije čak i kada je sedlasta tačka daleko iznad vezanog stanja. Stoga sva stanja opisana Hamiltonijanom (5.2) imaju rezonantni karakter.

Ako polje nije prejako, energija najnižeg stanja $E(F)$ leži ispod sedlaste tačke barijere i elektron se jonizuje tuneliranjem kroz barijeru. Međutim, pojačavanjem polja sedlasta tačka se spušta ka nižim energijama dok konačno za neku specifičnu vrednost polja $F = F_s$ ne bude suzbijena ispod energije najnižeg stanja $E(F)$. Od te jačine polja proces jonizacije prestaje da se dešava tuneliranjem već putem jonizacije preko barijere - OBI (Over-Barrier-Ionization). Iz kvantno-mehaničke tačke gledišta, ne postoji suštinska razlika između ova dva tipa procesa.

Vrednost jačine polja koja razdvaja ova dva režima, definisana je uslovom

$$E(F) = V_{\text{sp}}(F), \quad (5.3)$$

gde je $E(F)$ vrednost energije najnižeg stanja u polju jačine F , a $V_{\text{sp}}(F)$ vrednost potencijala u sedlastoj tački pri istom polju. Ova vrednost za alkalne metale je dovoljno

mala da se na rastojanjima $r = |z_{sp}|$ potencijal jezgra može aproksimirati čistim Kulonovim potencijalom. Tada je $z_{sp} = 1/\sqrt{F}$, $V_{sp} = -2\sqrt{F}$ i vrednost polja F_s je rešenje jednačine $E(F) = -2\sqrt{F}$. Uzevši približno $E(F) \approx E(0) = -I_p$ dobija se

$$F_s = \frac{I_p^2}{4} = 0.00892. \quad (5.4)$$

Preciznija vrednost za F_s može se dobiti ukoliko se u obzir uzme i Štarkov pomak najnižeg nivoa [62]. Kada je $F \ll 1$, Štarkov pomak može se razviti u Maklorenov red

$$\Delta E = -\alpha \frac{F^2}{2!} - \gamma \frac{F^4}{4!} - \dots, \quad (5.5)$$

gde su α i γ dipolna polarizabilnost i dipolna hiperpolarizabilnost, respektivno. Kako je onda

$$E(F) = E(0) + \Delta E = -I_p - \frac{1}{2}\alpha F^2 - \frac{1}{24}\gamma F^4, \quad (5.6)$$

rešenje jednačine (5.5) uz ekspanziju (5.6) je $F_s = 0.00969$. Intenzitet lasera koji odgovara ovoj jačini polja je oko $3.3 \times 10^{12} \text{W/cm}^3$.

Kako potencijal efektivnog jezgra $V_{core}(r)$ teži Kulonovom potencijalu $V_C(r)$ u domenu $r > |z_{sp}(F_s)|$, vrednost F_s ne zavisi od izbora efektivnog potencijala. Iz sličnog razloga, oblik barijere i stopa jonizacije (u režimu tuneliranja) skoro su nezavisni od modela. Stoga, iako postoje precizniji modeli za alkalne metale za ovo razmatranje držaćemo se Helmanovog potencijala zbog njegove jednostavnosti.

5.2 Autokorelaciona funkcija i stopa jonizacije

Iako je problem koji razmatramo statički u svom opisu, radi pogodnije analize rezonantnih stanja i radi lakše tranzitivnosti na dinamički slučaj, za analizu koristimo vremenski zavisni pristup. Kao što je već bilo reči u poglavlju 4.4, za poznatu inicijalnu talasnu funkciju $\psi(\mathbf{r}, 0)$, može se dobiti talasna funkcija $\psi(\mathbf{r}, t)$ u trenutku t rešavanjem vremenski zavisne Šredingerove jednačine.

Za računanje evolucije valentnog elektrona atoma natrijuma koristimo metod konačnih razlika drugog reda kao što je opisano u poglavlju 4.4. Kao inicijalnu talasnu funkciju $\psi(\mathbf{r}, 0)$ biramo najniže svojstveno stanje hamiltonijana (5.2) za $F = 0$ i računamo njegovu evoluciju pri datom polju $F > 0$. Pošto je polje linearno polarisano duž z -ose, problem ima aksijalnu simetriju. Ako izaberemo da problem rešavamo u cilindričnim koordinatama, talasna funkcija neće zavisiti od azimutalnog ugla ϕ pa se problem svodi na dva stepena slobode ρ i z .

Energijski spektar može se dobiti izračunavanjem autokorelacione funkcije koja je definisana kao

$$c(t) = \langle \psi(0) | \psi(t) \rangle = \langle \psi(0) | e^{-\frac{i}{\hbar} E_n t} | \psi(t) \rangle. \quad (5.7)$$

Ako razvijemo $|\psi(t)\rangle$ preko svojstvenih stanja hamiltonijana $|n\rangle$

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n e^{-\frac{i}{\hbar} E_n t} |n\rangle, \quad (5.8)$$

gde su $\hat{H}|n\rangle = E_n|n\rangle$ i $a_n = \langle n | \psi(0) \rangle$ sledi

$$c(t) = \sum_n |a_n|^2 e^{-\frac{i}{\hbar} E_n t}. \quad (5.9)$$

Ovako definisana, autokorelaciona funkcija sadrži informaciju energijskom spektru sistema koja se može dobiti njenim Furijeovim transformom

$$F(E) = FT[c(t)] = \int c(t) e^{-\frac{i}{\hbar} E t} dt. \quad (5.10)$$

Svojstvene energije čistog diskretnog spektra javljaju se kao polovi transformata 5.10.

$$F(E) = \sum_n |a_n|^2 \int e^{-\frac{i}{\hbar} (E - E_n) t} dt = 2\pi\hbar \sum_n |a_n|^2 \delta(E - E_n) \quad (5.11)$$

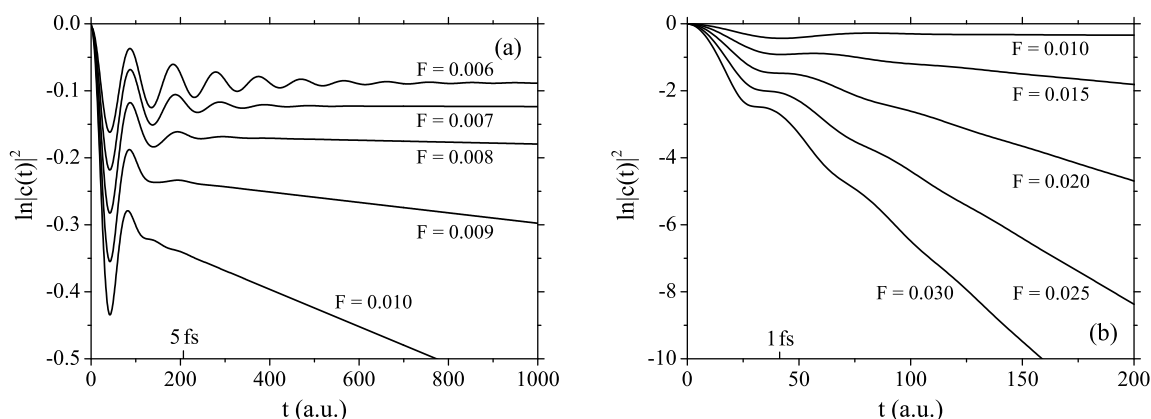
Kako ovaj transform može biti i kompleksan, položaje svojstvenih energija dobijamo računanjem njegovog kvadrata $|FT[c(t)]|^2$ ("power spectrum"). Rezonance se pojavljuju kao (približni) Lorencijanski profili centrirani oko rezonantnih energija E sa širinama Γ . Ako u spektru postoji samo jedna rezonanca (a to zavisi od izbora osnovnog stanja) imamo da je

$$|c(t)|^2 = \exp[-wt], \quad (5.12)$$

gde w (u atomskim jedinicama) predstavlja stopu jonizacije. Γ se može precizno odrediti računanjem linearnog gradijenta funkcije $\ln(|c(t)|^2)$. Na ovaj način mogu se dobiti stope jonizacije pri različitim jačinama polja.

5.3 Rezultati

Funkcija $\ln(|c(t)|^2)$ za atom natrijuma na različitim vrednostima primenjenog električnog polja računata koristeći metode i model date u poglavljima 5.1 i 5.2 prikazana je na slici 5.2. Tokom početnog perioda nestacionarnog raspada u funkciji se vide prigušene oscilacije čije se vreme relaksacije smanjuje povećavanjem jačine polja. Ovakvo



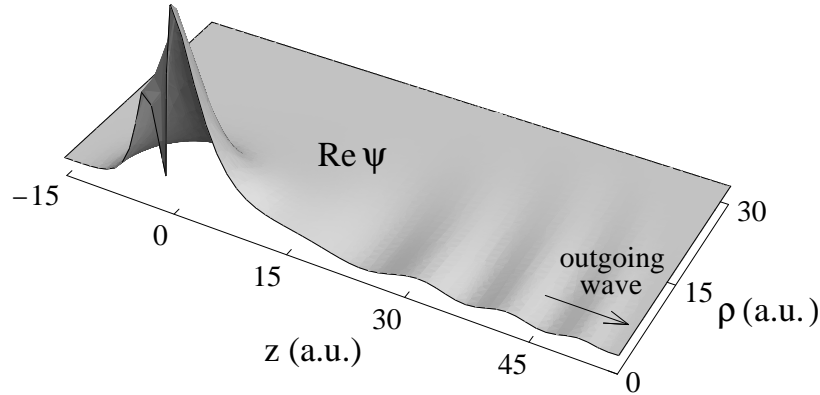
Slika 5.2: Funkcije $\ln|c(t)|^2$ računane za atom natrijuma na različitim jačinama spoljašnjeg statičkog električnog polja F , koje odgovaraju: (a) tunel-režimu i (b) preko-barijernom režimu. Inicijalno stanje $\psi(0)$ korišćeno u računanju autokorelacione funkcije $c(t) = \langle \psi(0) | \psi(t) \rangle$ je neperturbovano osnovno stanje slobodnog atoma.

ponašanje je posledica činjenice da odabrana inicijalna talasna funkcija - osnovno stanje neperturbovanog atoma - prestaje da bude stacionarno stanje kada se polje uključi (jer u tom slučaju $V \neq V_{core}$) i počinje da pokazuje osobine talasnog paketa. Može se tretirati kao superpozicija svojstvenih stanja hamiltonijana 5.1 za datu jačinu polja F . Što je veća energija svakog od svojstvenih stanja koja se javljaju u ovoj superpoziciji to je brži njegov raspad preko potencijalne barijere. Tako se, tokom svake refleksije od potencijalne barijere deo talasnog paketa transmituje u spoljnu regiju pa se paket posle nekog vremena redukuje na najniže stacionarno stanje sa dobro definisanim izlaznim talasom - rezonantnu talasnu funkciju (slika 5.3). Ovaj proces je mnogo brži u preko-barijernom režimu nego u tunel režimu (slika 5.2). Za $F = F_s$ trajanje nestacionarnog perioda je samo par femtosekundi ($1 \text{ fs} = 41.34 \text{ a.u.}$).

Iako inicijalna faza jonizacionog procesa u statičnom polju nije relevantna za računanje odgovarajuće stope jonizacije (koju dobijamo iz $|c(t)|^2$ u asimptotskom domenu), treba primetiti da trenutno uključanje polja u $t = 0$ ne predstavlja realističnu eksperimentalno izvodljivu situaciju. Iz tog razloga mi isputujemo ponašanje autokorelacione funkcije $|c(t)|^2$ kada se polje uključuje postepeno. Umesto statičkog polja koristimo vremenski zavisno polje sa saturacionom funkcijom

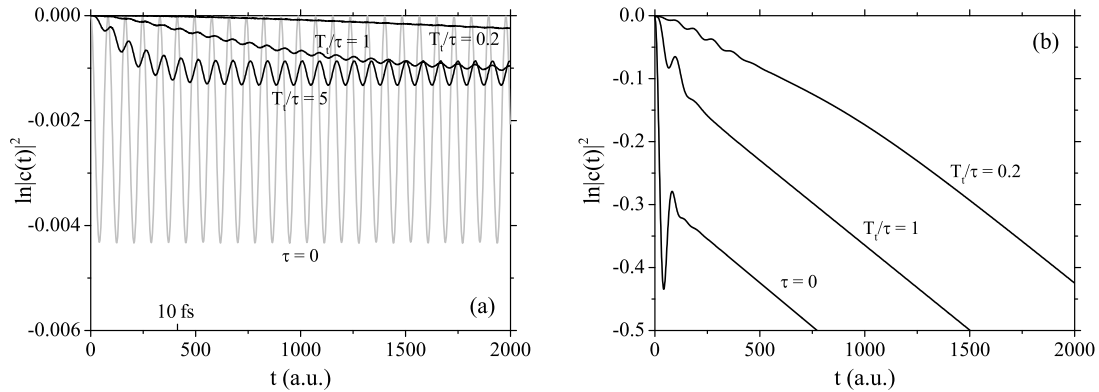
$$F(t) = F_{stat}(1 - \exp[-t/\tau]), \quad (5.13)$$

koja opisuje proces uspostavljanja statičkog električnog polja između dve kondenzatorske ploče povezane na izvor jednosmerne struje. Vremenska konstanta τ određena je



Slika 5.3: Realni deo talasne funkcije $\psi(\mathbf{r})$ najnižeg stacionarnog stanja atoma natrijuma (u jednoelektronskom modelu) u električnom polju jačine $F = 0.01$ a.u. Ovo rezonantno stanje određeno je vremenskom propagacijom neperturbovanog natrijumovog osnovnog stanja u ukupnom potencijalu 5.1 do uspostavljanja stacionarnosti ($t \approx 400$ a.u.).

otpornošću i kapacitivnošću kola, R i C , respektivno. Na primer, za dato $R = 0.1\Omega$ i $C = 1pF$ imamo da je $\tau = RC = 100fs$. Adijabatičnost procesa onda možemo da opišemo odnosom T_t/τ (gde je $T_t = (2I_p)^{1/2}/F$) analogno Keldiševom parametru za dinamička polja. Nalazimo da kada je $T_t/\tau \ll 1$, shodno uspostavljenoj adijabatičnosti, oscilacije bivaju u skoro u potpunosti prigušene, a funkcija $|c(t)|^2$ uzima eksponencijalno opadajući oblik nakon svega nekoliko τ (slika 5.4).

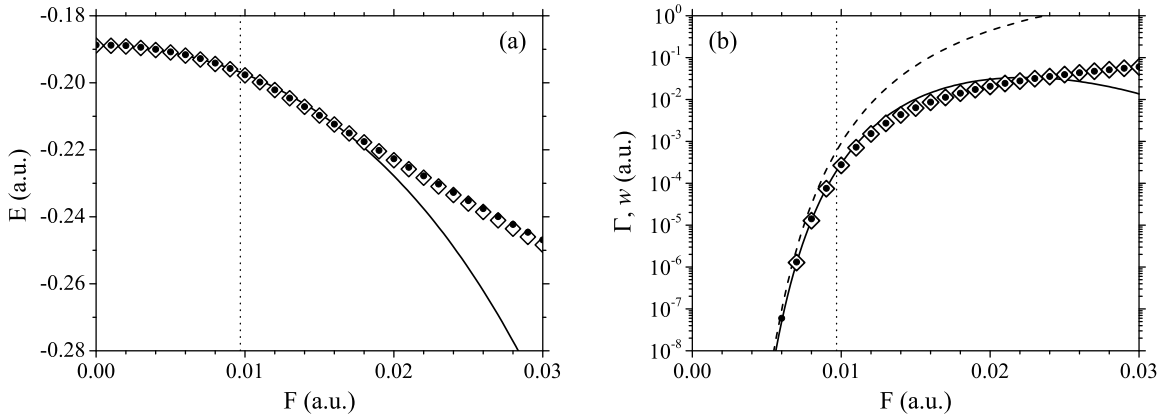


Slika 5.4: Funkcije $\ln|c(t)|^2$ za natrijum u postepeno uključenom električnom polju: (a) $F_{\text{stat}} = 0.001$ a.u. ($= 5.14$ MV/cm, $T_t = 614.6$ a.u.) i (b) $F_{\text{stat}} = 0.01$ a.u. ($= 51.4$ MV/cm, $T_t = 61.46$ a.u.) za različite vrednosti vremenske konstante τ .

U tabeli 5.1 prikazane su energije i širine rezonance najnižeg stanja atoma natrijuma računane metodom evolucije talasnog paketa [30] za različite vrednosti jačine polja za-

F	WP method		CR method	
	E	Γ	E	Γ
0.000	-0.1887	0	-0.18886	0
0.001	-0.1888	-	-0.18894	-
0.002	-0.1889	-	-0.18919	-
0.003	-0.1894	-	-0.18961	-
0.004	-0.1900	-	-0.19020	-
0.005	-0.1908	-	-0.19096	-
0.006	-0.1916	6×10^{-8}	-0.19190	-
0.007	-0.1928	1.32×10^{-6}	-0.19303	1.276×10^{-6}
0.008	-0.1941	1.42×10^{-5}	-0.19437	1.279×10^{-5}
0.009	-0.1957	7.59×10^{-5}	-0.19595	7.426×10^{-5}
0.010	-0.1976	2.78×10^{-4}	-0.19778	2.684×10^{-4}
0.011	-0.1998	7.28×10^{-4}	-0.19986	7.097×10^{-4}
0.012	-0.2021	1.53×10^{-3}	-0.20215	1.503×10^{-3}
0.013	-0.2046	2.74×10^{-3}	-0.20461	2.691×10^{-3}
0.014	-0.2071	4.36×10^{-3}	-0.20717	4.287×10^{-3}
0.015	-0.2097	6.37×10^{-3}	-0.20979	6.261×10^{-3}
0.016	-0.2123	8.69×10^{-3}	-0.21245	8.577×10^{-3}
0.017	-0.2150	0.0113	-0.21513	0.01120
0.018	-0.2176	0.0142	-0.21780	0.01409
0.019	-0.2201	0.0174	-0.22047	0.01721
0.020	-0.2227	0.0208	-0.22312	0.02051
0.021	-0.2252	0.0243	-0.22575	0.02400
0.022	-0.2278	0.0280	-0.22836	0.02763
0.023	-0.2302	0.0317	-0.23094	0.03139
0.024	-0.2327	0.0356	-0.23351	0.03527
0.025	-0.2351	0.0395	-0.23605	0.03928
0.026	-0.2376	0.0434	-0.23856	0.04331
0.027	-0.2399	0.0475	-0.24106	0.04745
0.028	-0.2423	0.0517	-0.24353	0.05166
0.029	-0.2446	0.0561	-0.24598	0.05595
0.030	-0.2469	0.0608	-0.24841	0.06025

Tabela 5.1: Poređenje energija najnižeg stanja E i širina Γ natrijuma dobijenih metodom talasnog paketa (WP) i metodom kompleksne rotacije (CR) u jedno-elektronskoj aproksimaciji za različite vrednosti primenjenog električnog polja F .



Slika 5.5: Energije (a) i širine (b) najnižeg stanja natrijuma na različitim jačinama primenjenog električnog polja. Rezultati dobijeni propagacijom talasnog paketa (ovo istraživanje) označeni su punim krugovima. Radi poređenja, odgovarajući rezultati dobijeni metodom kompleksne rotacije [62] su prikazani (prazni rombovi). Pored toga, energija najnižeg stanja u funkciji jačine polja određena formulom četvrtog reda (5.6) (puna linija) prikazana je na delu (a), a stope jonizacije određene originalnom ADK formulom (3.17) (isprekidana linija) kao i ADK formulom sa korekcijom Štarkovog pomaka (5.6) (puna linija) prikazane su na delu (b). Vertikalne tačkaste linije označavaju jačine polja F_s koje dele režim tuneliranja i preko-barijerni režim.

jedno sa vrednostima dobijenim nedavno metodom kompleksne rotacije [62]. Rezultati su u jako dobrom slaganju u razmatranom domenu $F \in (0, 0.03)$. Rezultati iz tabele 5.1 prikazani su na slici 5.5 zajedno sa analitički izračunatim stopama raspada baziranim na razvoju Štarkovog pomaka do četvrtog reda (5.5) i ADK teoriji (opisanoj detaljno u poglavlju 3). Formula za energiju najnižeg stanja (5.6) koja uračunava ekspanziju Štarkovog pomaka do četvrtog reda u dobrom je slaganju sa numeričkim rezultatima u domenu $F < F_s$. Stopa jonizacije dobijena popraavljenom ADK formulom [6, 62] je u odličnom slaganju sa numeričkim rezultatima u domenu $F < F_s$ (slika 5.5).

Konačno, pokazujemo da je u kvazistatičkom režimu ($\gamma \ll 1$) moguće precizno odrediti stope jonizacije atoma ozračenim realnim pulsom iz stopa izračunatih u statičkoj aproksimaciji. Na jačini polja $F = F_s$, uslov $\gamma \ll 1$ za natrijum ispunjen je kada $\lambda \gg 3\mu m$, a u domenu tuneliranja talasna dužina λ još je duža. Razmatramo linearno polarisani puls oblika

$$F(t) = \begin{cases} F_{peak} \sin^2(\pi t/T_p) \cos(2\pi t/T_c), & 0 < t < T_p, \\ 0, & \text{u suprotnom.} \end{cases} \quad (5.14)$$

i uzimamo maksimalnu vrednost jačine polja $F_{peak} = 0.01 a.u.$ (koja odgovara intenzitetu lasera $I \approx 3.5 \times 10^{12} W/cm^2$) blisku vrednosti F_s . Biramo period optičkog ciklusa $T_c = 1931 a.u.$ ($\approx 46.7 fs$, $\lambda = 14 \mu m$) sa kojim je $\gamma = 0.2$ i totalno trajanje pulsa takvo

da sadrži četiri optička ciklusa ($T_p = 4T_c$).

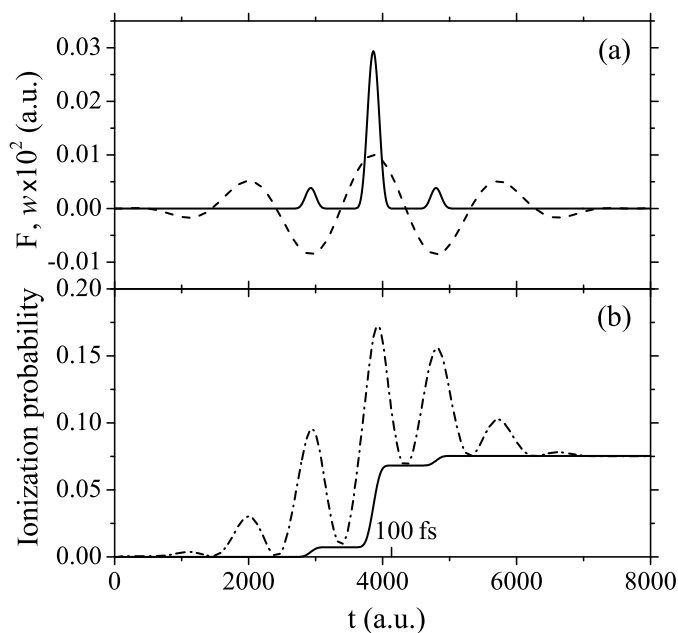
Kvazistatičke stope jonizacije $w(F(t))$ za puls (5.14) dobijamo korigovanom ADK formulom koja se dobija zamenom $I_p \rightarrow I_p - \Delta E(F)$ (gde se $\Delta E(F)$ dobija iz razvoja (5.6)) u ADK formulu (3.17). Nakon toga, odgovarajuću kvazistatičku verovatnoću jonizacije dobijamo zamenom u izraz

$$P_{ion}^{(qs)} = \int_0^t w(F(t)) dt. \quad (5.15)$$

Sa druge strane, istu verovatnoću jonizacije dobijamo iz izraza

$$P_{ion} = 1 - |c(t)|^2, \quad (5.16)$$

gde je $c(t)$ autokorelaciona funkcija dobijena rešavanjem vremenski zavisne Šredingerove jednačine za hamiltonijan oblika (5.1) metodom konačnih razlika drugog reda. Izraz (5.16) je specijalan slučaj opštijeg izraza o kom će biti više reči kasnije, a ilustruje da je verovatnoća jonizacije suprotna populaciji u osnovnom stanju (jer su verovatnoće pobuđivanja viših stanja u kvazistatičkom procesu bliske nuli).



Slika 5.6: (a) Laserski puls oblika (5.14) sa $F_{\text{peak}} = 0.01$ a.u., $T_c = 1931$ a.u., $T_p = 4T_c$ (isprekidana linija) i odgovarajuća kvazistatička stopa jonizacije $w(F(t))$ za natrijum (puna linija). (b) Verovatnoća jonizacije određena integracijom kvazistatičke stope (puna linija) i egzaktnim rešavanjem vremenski zavisne Šredingerove jednačine sa promenljivim poljem (5.14) (crta-tačka linija).

Na osnovu slike 5.6 vidimo da se funkcije $P_{ion}^{(qs)}(t)$ i $P_{ion}(t)$ značajno razlikuju tokom trajanja pulsa jer prva pokazuje verovatnoću prelaza iz osnovnog stanja u asimptotsko stanje kontinuuma, a druga prikazuje verovatnoću prelaza iz osnovnog u bilo koje nevezano stanje pa i slučajeve u kojima je elektron privremeno izbačen, pa u drugom poluperiodu ciklusa zahvaćen nazad u atom. Međutim, kako se pri kraju trajanja pulsa jačina polja približava nuli tako se i vrednosti ove dve funkcije približavaju istoj vrednosti. Na osnovu ovog poređenja, tvrdimo da je za vrednost Keldiševog parametra $\gamma \approx 0.2$ i manje možemo sa visokom preciznošću dobiti verovatnoće jonizacije koristeći se kvazistatičkom aproksimacijom koja sam proces računanja čini daleko bržim i efikasnijim.

Glava 6

Multifotonski procesi kod atoma natrijuma

Ako je atomski sistem izložen elektromagnetnom polju veće frekvencije, vreme prolaska kroz barijeru opisanu u prethodnom odeljku postaje jako veliko u odnosu na period oscilovanja polja. Keldišev parametar (3.2) postaje $\gamma \gg 1$, statička aproksimacija prestaje da bude primenljiva, a dominantan mehanizam jonizacije postaje apsorpcija fotona ukupne energije veće od jonizacionog potencijala (multifotonska jonizacija). Rešavanju ovog problema pristupamo tako što računamo vremensku evoluciju početnog talasnog paketa u vremenski zavisnom potencijalu opisanom Hamiltonijanom

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{core}(r) - F(t)z, \quad (6.1)$$

gde za V_{core} uzimamo Helmanov pseudopotencijal u slučaju atoma natrijuma, a spoljašnje polje $F(t)$ opisujemo kao

$$F(t) = F_{peak} \sin^2\left(\frac{\pi t}{T_p}\right) \cos\left[\omega\left(t - \frac{T_p}{2}\right) + \phi\right], \quad 0 < t < T_p, \quad (6.2)$$

gde je F_{peak} vrednost amplitude polja, T_p vreme trajanja pulsa, a ϕ faza obvojnice koja opisuje razliku u fazama između obvojnice opisane članom sa kvadratom sinusa i oscilovanja samog polja opisanog kosinusnom funkcijom. Ako je $\phi = 0$ ove dve funkcije su u fazi pa će polje dostići svoj maksimum tačno na sredini pulsa.

Kao i u kvazistatičkom slučaju, sistem ima cilindričnu simetriju pa je projekcija orbitalnog momenta na z -osu očuvana veličina, a magnetni kvantni broj m je dobar kvantni broj. Stoga bez gubitka opštosti, u svim daljim proračunima možemo staviti da je $m = 0$.

6.1 Selekciona pravila

Osnovno stanje atoma natrijuma je najniže stanje njegovog valentnog elektrona koje ima kvantne brojeve $n = 3$ i $l = 0$ i spektroskopsku oznaku $3s$. Kako se proces jonizacije u domenu razmatranih frekvencija dešava apsorpcijom jednog ili više fotona korisno je ispitati selekciona pravila kako bismo lakše opisali ove procese. Zbog zakona održanja angularnog momenta i održanja parnosti prilikom apsorpcije fotona, promena orbitalnog angularnog kvantnog broja mora biti

$$\Delta l = \pm 1. \quad (6.3)$$

Ovo u praksi znači da apsorpcijom samo jednog fotona iz bilo kog s stanja sistem može preći samo u neko p stanje, iz p stanja samo u s i d stanja itd. U zavisnosti od energije samih fotona, ovo znači da raspodela izlaznih elektrona po parcijalnim talasima nije arbitrarna već ima neke nametnute restrikcije. Za foton talasne dužine $800nm$, ovo je šematski ilustrovano na slici 6.1. Vidimo da počevši od $3s$ nivoa preko granice kontinuuma možemo doći apsorpcijom 4 fotona putem jedne od "apsorpcionih putanja" preko virtualnih stanja koja su na slici označena crvenim platoima. Izlazni talas će biti dat superpozicijom s , d i g parcijalnih talasa.

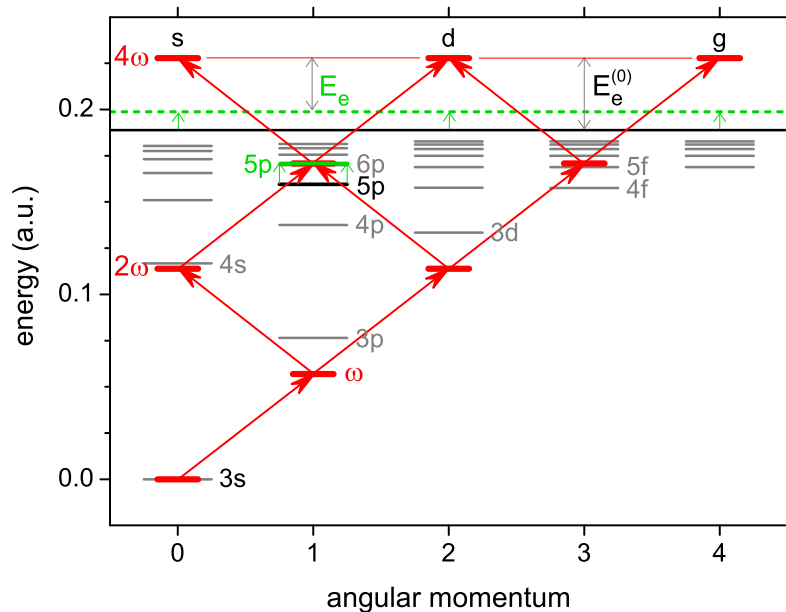
6.2 Verovatnoće ekscitacije i jonizacije

Kao i u kvazistatičkom slučaju, Šredingerovu jednačinu ovog sistema rešavamo vremenskom evolucijom početnog talasnog paketa primenom metoda konačnih razlika drugog reda, s tim što sada koristimo pun vremenski zavisani hamiltonijan iz jednačine (6.1). Za razliku od kvazistatičkog problema gde su verovatnoće prelaza u ekscitovana stanja približno jednake nuli, imamo da su energije fotona uporedive sa razmacima između energetske nivoa i shodno tome nenultu naseljenost viših energetske stanja tokom i na kraju pulsa.

Da bismo izračunali verovatnoću jonizacije više nije dovoljno samo oduzeti auto-korelacionu funkciju sa kraja pulsa od jedinice, već moramo pratiti naseljenosti svih stanja u koja verovatnoća prelaza nije zanemarljivo mala.

Da bi izračunali verovatnoću pobuđivanja svakog od pojedinačnih stanja prvo je potrebno da poznamo oblik njegove neperturbovane talasne funkcije. Ove funkcije računamo rešavajući vremenski nezavisnu Šredingerovu jednačinu za sistem bez polja

$$\hat{H}(t = 0)\psi = E\psi, \quad (6.4)$$



Slika 6.1: Energetska šema za (neperturbovane) najniže nivoe natrijuma (sive linije) kao i moguće četvorofotonske apsorpcione kanale od osnovnog stanja do kontinuuma (crvene strelice) koji se mogu ostvariti interakcijom sa laserskim zračenjem od 800 nm talasne dužine ($\omega = 0.05695$ a.u.). Prkazan je i pomak granice kontinuuma (puna crna i isprekidana zelena linija) koji odgovara snazi laserskog polja u trenutku kada se 5p nivo pomera u trofotonsku rezonancu usled efekta dinamičkog Štarkovog pomaka.

gde je

$$\hat{H}(t=0) = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{core}(r). \quad (6.5)$$

Zbog odsustva polja, sistem je sferno simetričan pa se kao kod rešavanja atoma vodonika može preći na sferne koordinate u kojima hamiltonijan $H(t=0)$ dobija oblik

$$\hat{H}(t=0) = -\frac{1}{2} \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \phi} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \frac{1}{r^2 \sin^2 \phi} \frac{\partial}{\partial \phi} \left(\sin \phi \frac{\partial}{\partial \phi} \right) \right] + V_{core}(r), \quad (6.6)$$

gde su članovi sa izvodima po θ i ϕ zapravo operator kvadrata angularnog momenta \hat{L}^2 čije su svojstvene funkcije sferni harmonici $Y_l^m(\theta, \phi)$. Zbog ovoga, rešenje Šredingerove jednačine sa hamiltonijanom (6.6) možemo da tražimo u obliku

$$\psi(r, \theta, \phi) = R_{nl}(r) Y_l^m(\theta, \phi), \quad (6.7)$$

gde je $R_{nl}(r)$ radijalni deo talasne funkcije. Radi jednostavnijeg računa, uvodimo još i

dodatnu smenu

$$R_{nl}(r) = \frac{u_{nl}(r)}{r}, \quad (6.8)$$

nakon koje se Šredingerova jednačina (6.4) sa hamiltonijanom (6.6) svodi na oblik

$$\frac{\partial^2 u_{nl}(r)}{\partial r^2} + 2 \left(E_{nl} - V_{core}(r) - \frac{l(l+1)}{2r^2} \right) u_{nl}(r) = 0, \quad (6.9)$$

gde je $l(l+1)$ svojstvena vrednost operatora kvadrata momenta impulsa, a E_{nl} svojstvena energija stanja sa kvantnim brojevima n i l .

Da bismo dobili tačan oblik talasne funkcije svojstvenog stanja u potencijalu $V_{core}(r)$, jednačinu (6.9) rešavamo numerički koristeći za E_{nl} vrednosti poznate iz eksperimentalnih merenja [63]. Talasnu funkciju $\psi_{nl}(r, \theta, \phi)$ dobijamo inverznom transformacijom radijalne funkcije $u_{nl}(r)$ i množenjem odgovarajućim sfernim harmonikom.

Jednom kada imamo izračunate talasne funkcije neperturbovanih stanja, verovatnoću prelaza u stanje sa kvantnim brojevima n i l nakon izlaganja sistema laserskom pulsu trajanja T_p možemo računati kao

$$P_{nl} = |\langle \psi_{nl} | \psi(T_p) \rangle|^2, \quad (6.10)$$

gde je $\psi(T_p)$ talasna funkcija dobijena vremenskom evolucijom sistema u hamiltonijanu (6.1) do vremena $t = T_p$. Ako verovatnoće prelaza izračunamo za dovoljan broj stanja onda verovatnoću jonizacije možemo dobiti izrazom

$$P_{ion} = 1 - \sum_{n,l} P_{nl}. \quad (6.11)$$

6.3 Dinamički Štarkov pomak

Verovatnoće pobuđivanja P_{nl} (tj. naseljenosti stanja nl) jako zavise od parametara pulsa (ω, T_p, F_{peak}), a naročito se brzo menjaju variranjem frekvencije pulsa ω . Maksimumi naseljenosti stanja $P_{nl}(\omega)$ biće realizovani kada se rastojanje između osnovnog stanja ($3s$) i datog nivoa (nl) poklapa sa celobrojnim umnoškom energije fotona (ω) to jest kada je zadovoljen uslov multifotonske rezonance

$$K\omega = \omega_{nl,3s}, \quad (6.12)$$

gde je K ceo broj, a $\omega_{nl,3s} = E_{nl} - E_{3s}$. Dodatni uslov (zbog selekcionih pravila u diplonoj aproksimaciji) je da $K + l$ mora biti paran broj.

Položaji rezonantnih maksimuma u $P_{nl}(\omega)$ zavise od jačine polja i ta zavisnost je posledica dinamičkog Štarkovog pomaka. U opštem slučaju, dinamički Štarkov pomak zavisi i od jačine i od frekvencije polja. Ako je F amplituda promenljivog polja onda je pomak energijskog nivoa E_{nl}

$$\delta E_{nl}(F, \omega) = E_{nl}(F, \omega) - E_{nl}^0, \quad (6.13)$$

gde je $E_{nl}^0 = E_{nl}(0, \omega)$ energija u odsustvu polja. U limitu slabih polja ovaj pomak je

$$\delta E_{nl} = -\alpha(\omega) \frac{F^2}{4}, \quad (6.14)$$

gde je $\alpha(\omega)$ dinamička polarizabilnost datog stanja. Specijalno u limitu slabih polja i visokih frekvencija imamo da $\alpha(\omega)$ teži svojoj asimptotskoj vrednosti $-1/\omega^2$ pa je

$$\delta E_{nl} = \frac{F^2}{4\omega^2}. \quad (6.15)$$

Ova vrednost odgovara vibracionoj energiji slobodnog elektrona u linearno polarisanom elektromagnetnom polju poznatijoj kao ponderomotorni potencijal U_p . Suprotno, pomak osnovnog stanja, u odnosu na koje ovo zračenje možemo da posmatramo kao da je male energije, je negativno kao u slučaju statičkog Štarkovog pomaka. Uzevši ovo u obzir, zaključujemo da je jonizacioni potencijal u laserskom polju veći nego u slučaju neperturbovanog atoma.

Pošto eksperimentalno ne možemo da vidimo Štarkov pomak jednog stanja već promenu energije prelaza između dva stanja, a pošto naši proračuni maksimuma P_{nl} takođe daju rastojanja između nivoa $(\omega_{nl,3s})$, razmatraćemo dinamički Štarkov pomak stanja natrijuma u odnosu na osnovno stanje

$$\delta\omega_{nl,3s}(F, \omega) = \delta E_{nl}(F, \omega) - \delta E_{3s}(F, \omega) = \omega_{nl,3s}(F, \omega) - \omega_{nl,3s}^{(0)}, \quad (6.16)$$

gde je $\omega_{nl,3s}^{(0)} = E_{nl}^{(0)} - E_{3s}^{(0)}$.

Ako ovaj pomak posmatramo striktno pod uslovom rezonantnosti, parametri ω i F nisu više nezavisni i možemo da zapišemo

$$\delta\omega_{nl,3s}^{res}(F) = \omega_{nl,3s}^{res}(F) - \omega_{nl,3s}^{(0)}, \quad (6.17)$$

gde su

$$\omega_{nl,3s}^{res}(F) = \omega_{nl,3s}(F, \omega_{res}) \quad (6.18)$$

rastojanja između nivoa pod uslovom multifotonske rezonance na rezonantnoj frekvenciji

$$\omega_{res} = \frac{\omega_{nl,3s}^{res}(F)}{K}. \quad (6.19)$$

Formalno $\omega_{nl,3s}^{res}(F)$ je rešenje sistema jednačina (6.18) i (6.19). Međutim pošto funkcije $\omega_{nl,3s}(F, \omega)$ u principu nisu poznate, u praksi $\omega_{nl,3s}^{res}(F)$ dobijamo iz jednačine (6.19) pomoću vrednosti ω_{res} koje određujemo iz vrednosti maksimuma funkcija P_{nl} na različitim vrednostima jačine polja F .

6.4 Metoda vremenski zavisnih koeficijenata

Radi dodatne analize i provere validnosti rezultata dobijenih metodom evolucije talasnog paketa, isti proces ispitan je i metodom vremenski zavisnih koeficijenata opisanim u glavi 2, a detaljnije u referenci [64]. U osnovi, ovaj metod se sastoji od reprezentacije talasne funkcije u nekom pogodnom bazu (to je najčešće bazis neperturbovanih atomskih stanja). Ako je talasna funkcija ψ , razvijena u bazu atomskih stanja φ_{nl} imamo

$$\psi = \sum_{n,l} c_{nl}(t) \varphi_{nl} e^{-iE_{nl}^{(0)}t} \quad (6.20)$$

gde je vremenska evolucija talasne funkcije ψ data kroz koeficijente $c_{nl}(t)$ koji predstavljaju težine atomskih stanja u superpoziciji.

Sistem jednačina (2.44) za vremenski zavisne koeficijente $c_{nl}(t)$ u ovom slučaju glasi

$$i \frac{dc_{nl}}{dt}(t) = \sum_{n'l'} c_{n'l'}(t) W_{nl,n'l'} e^{i\omega_{nl,n'l'}t}, \quad (6.21)$$

gde su $W_{nl,n'l'} = \langle \varphi_{nl} | \hat{W} | \varphi_{n'l'} \rangle$, matrični elementi operatora perturbacije, a $\omega_{nl,n'l'} = E_{nl}^{(0)} - E_{n'l'}^{(0)}$ energije prelaza između stanja sa kvantnim brojevima (n, l) i (n', l') .

Izraz (6.21) je sistem diferencijalnih jednačina prvog reda po vremenski zavisnim koeficijentima $c_{nl}(t)$ koji se može jednostavno rešiti ako poznajemo matrične elemente $W_{nl,n'l'}$. Treba napomenuti da je broj stanja u sumama u prethodnim izrazima u principu beskonačan, pa se stoga u praksi moramo ograničiti na neki konačan broj stanja čiji je doprinos relevantan za željenu tačnost.

U proračunima urađenim za natrijum, korišćena su stanja sa kvantnim brojevima $n = 3, 4, 5, 6$ i $l = 0, 1, 2, 3$. Pošto bazis atomskih stanja ne opisuje stanja kontinuuma, ovim metodom ne možemo opisati proces jonizacije, već samo populaciju pobuđenih stanja pri dejstvu perturbacije.

Zbog toga što TDC metod nije iterativan, numerički je mnogo efikasniji od metoda evolucije talasnog paketa ali nam ne omogućava da posmatramo čitav proces i zbog ograničavanja na konačan broj stanja, nije jednako precizan.

6.5 Rezultati

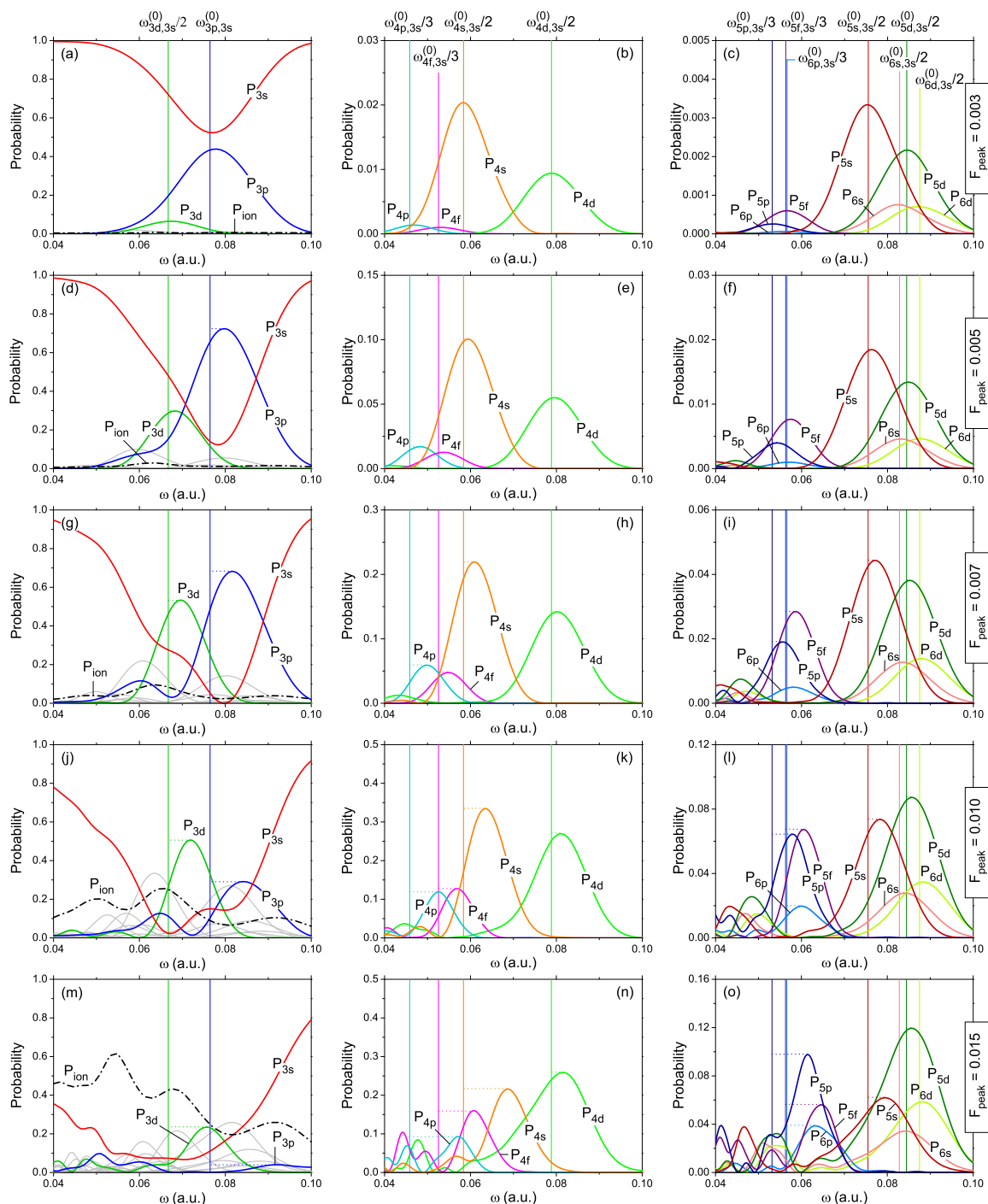
6.5.1 Verovatnoće prelaza i rezonantni dinamički Štarkov pomak za stanja sa $n \leq 6$ - metod propagacije talasnog paketa

Sa ciljem da napravimo set podataka za rezonantni dinamički Štarkov pomak atoma natrijuma, koristan za proučavanje raznih fenomena, računali smo verovatnoće prelaza is osnovnog u pobuđena atomska stanja kvantnih brojeva $n = 1, 2, 3, 4, 5, 6$ i $l = 0, 1, 2, 3$ pod dejstvom laserskog pulsa oblika (6.2) za vrednosti $F_{peak} \leq 0.015$ a.u. (ili maksimalnog intenziteta zračenja $7.90 \times 10^{12} W/cm^2$) u domenu frekvencija od 0.04 do 0.1 a.u. (što odgovara talasnim dužinama između 1139 i 455.6 nm) za tri različite dužine trajanja pulsa: $T_p = 5, 10$ and 20 fs ($1fs = 41.34$ a.u.)

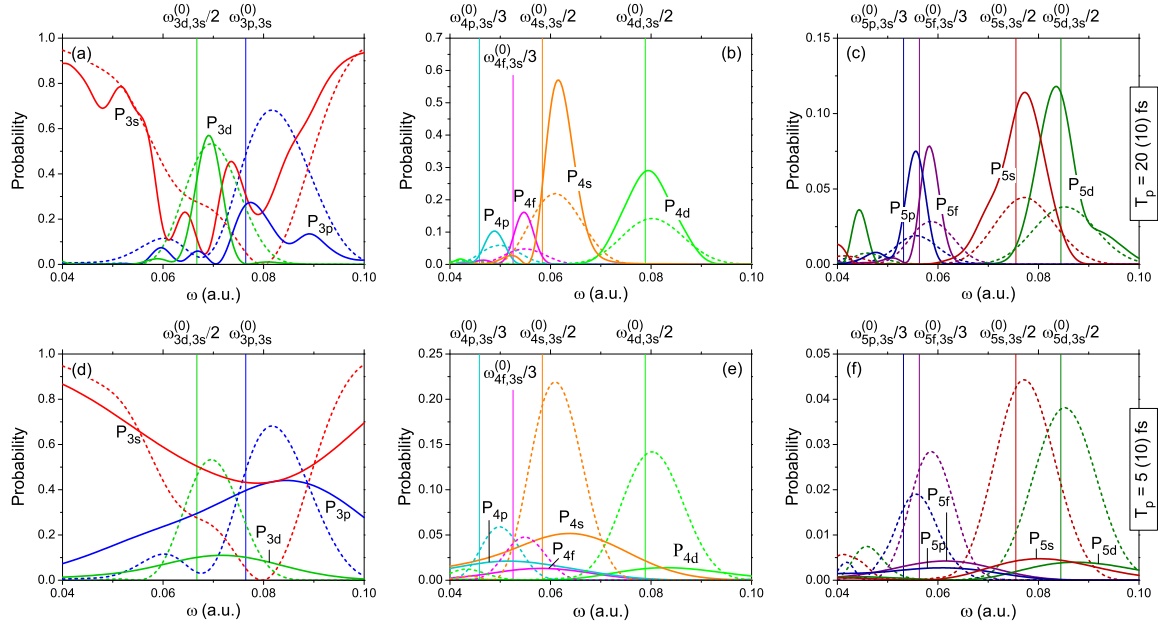
Na slici 6.2 su predstavljene verovatnoće P_{nl} prelaza iz osnovnog u pobuđena stanja sa kvantnim brojevima $n = 3$ ($3s, 3p$ i $3d$), $n = 4$ ($4s, 4p, 4d$ i $4f$), $n = 5$ ($5s, 5p, 5d$ i $5f$) i $n = 6$ ($6s, 6p$ i $6d$) za vrednosti parametara lasera $T_p = 10$ fs, $F_{peak} = 0.003, 0.005, 0.007, 0.010$ i 0.015 a.u. u domenu frekvencija $\omega \in (0.04, 0.10)$ računane sa korakom od $\delta\omega = 0.001$. Kao što je objašnjeno u odeljku 6.3, položaji maksimuma $P_{nl}(\omega)$ mogu da se povežu sa rezonantnim frekvencijama ω_{res} za prelaze $3s \rightarrow nl$ koje određuju energije prelaza $\omega_{nl,3s}^{res}(F_{peak})$ na datim jačinama polja.

Važna karakteristika ovih procesa je da položaji maksimuma raspodela $P_{nl}(\omega)$ ostaju na približno istim pozicijama kada variramo dužinu pulsa. Međutim, što je duži puls, maksimumi će biti uži i biće moguće preciznije odrediti njihove položaje fitovanjem gausijanskih profila. Na slici 6.3 vidimo verovatnoće popunjenosti računane za $F_{peak} = 0.007$ a.u. i tri različite dužine pulsa ($T_p = 5, 10$ i 20 fs). Ovo se može objasniti činjenicom da rezonantna frekvencija u principu varira tokom trajanja pulsa zbog varijacije jačine polja, ali da vrednost ω_{res} koja odgovara maksimumu verovatnoće uvek zavisi samo od jačine polja F_{peak} .

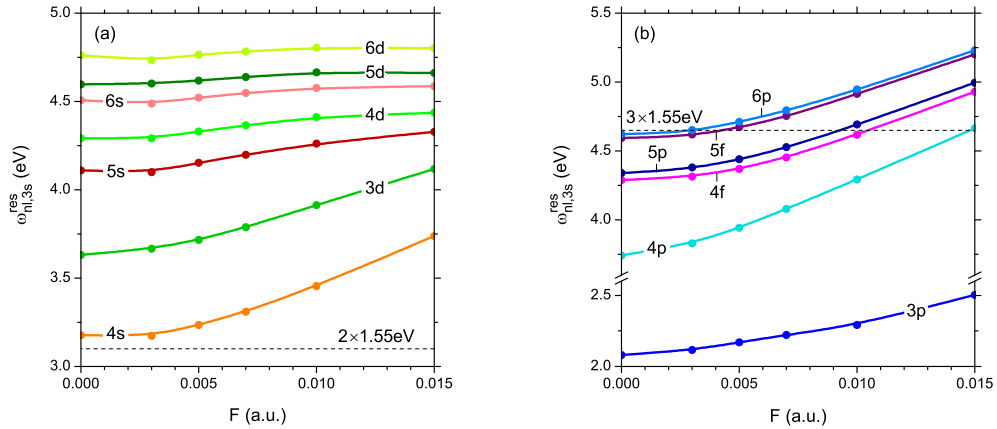
Najveći broj proračuna urađen je za pulseve dužine 10 fs što je procenjeno kao optimalna dužina zbog balansa između dobijene širine gausijanskih profila u raspodeli i numeričke efikasnosti. Rezultati (energijski razmaci $\omega_{nl,3s}^{res}(F)$ za $n \leq 6$ računati za 6 vrednosti jačine polja) su prikazani u tabeli 6.1 i nacrtani sa interpolacionim krivama na slici 6.4. U sledećem odeljku biće pokazano kako interpolacione krive dobijene na ovaj način mogu da se koriste za predviđanje rezonantnih frekvencija i procenu dinamičkog Štarkovog pomaka za prelaze $3s \rightarrow nl$.



Slika 6.2: Računate verovatnoće prelaza u P_{nl} natrijumova stanja sa $n = 3, 4, 5, 6$ za laserski puls (6.2) od 10 fs sa: $F_{\text{peak}} = 0.003$ a.u. (a, b, c), $F_{\text{peak}} = 0.005$ a.u. (d, e, f), $F_{\text{peak}} = 0.007$ a.u. (g, h, i), $F_{\text{peak}} = 0.010$ a.u. (j, k, l) i $F_{\text{peak}} = 0.015$ a.u. (m, n, o) kao funkcije od frekvencije lasera ω (pune linije različitih boja). Vertikalne linije označavaju energiju (frekvenciju) prelaza iz osnovnog stanja ($3s$) u druga stanja (nl) podeljenu sa brojem apsorbiranih fotona K kada $F_{\text{peak}} \rightarrow 0$. Verovatnoće jonizacije $P_{\text{ion}}(\omega)$ (crta-tačka linije) za pet jačina polja prikazane su na delovima (a, d, g, j, m).



Slika 6.3: Izračunate verovatnoće prelaza u P_{nl} natrijumova stanja $n = 3, 4, 5$ za laserske pulseve (6.2) trajanja 20 fs (a, b, c) i 5 fs (d, e, f), jačine $F_{\text{peak}} = 0.007$ a.u., date kao funkcije laserske frekvencije ω (pune linije različitih boja). Radi poređenja date su i verovatnoće prelaza u ista stanja u slučaju 10 fs laserskog pulsa (tačkaste linije).



Slika 6.4: Zavisnost relativne energije ekscitovanih stanja od jačine polja u odnosu na energiju osnovnog stanja za natrijum u laserskom polju koje je u K -fotonskoj rezonanci sa prelazima $3s \rightarrow nl$: (a) $K = 2$, (b) $K = 1$ (za $3s \rightarrow 3p$) i $K = 3$. Horizontalne isprekidane linije u delovima (a) i (b) označavaju dvo- i tro-fotonske energije, respektivno, za lasersko polje sa 800 nm talasne dužine.

nl :	3p	3d	4s	4p	4d	4f
K :	1	2	2	3	2	3
F (a.u.)	$\omega_{nl,3s}^{\text{res}}$ (eV)					
0	2.0800	3.6316	3.1772	3.7429	4.2912	4.2891
0.003	2.1154	3.6663	3.1733	3.8297	4.2919	4.3145
0.005	2.1707	3.7170	3.2346	3.9429	4.3299	4.3695
0.007	2.2226	3.7889	3.3103	4.0803	4.3657	4.4540
0.010	2.2912	3.9128	3.4546	4.2938	4.4123	4.6174
0.015	2.5025	4.1176	3.7382	4.6655	4.4375	4.9304

nl :	5s	5p	5d	5f	6s	6p	6d
K :	2	3	2	3	2	3	2
F (a.u.)	$\omega_{nl,3s}^{\text{res}}$ (eV)						
0	4.1095	4.3397	4.5966	4.5952	4.5061	4.6213	4.7620
0.003	4.0995	4.3813	4.6018	4.6206	4.4876	4.6532	4.7334
0.005	4.1535	4.4412	4.6183	4.6733	4.5219	4.7121	4.7643
0.007	4.1990	4.5288	4.6380	4.7545	4.5481	4.7948	4.7841
0.010	4.2609	4.6934	4.6643	4.9142	4.5772	4.9467	4.8053
0.015	4.3278	4.9962	4.6610	5.2001	4.5869	5.2287	4.8012

Tabela 6.1: Energije ekscitovanih stanja (nl) natrijuma u odnosu na osnovno stanje (3s) koje su u K -fotonskoj rezonanci sa primenjenim laserskim poljem jačina $F = 0, \dots, 0.015$ a.u. Energije ($\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F)$) povezane su uslovom (6.19) sa rezonantnim laserskim frekvencijama koje se dobijaju iz položaja maksimuma verovatnoće naseljenosti $P_{nl}(\omega)$. Proračuni su izvedeni koristeći $T_p = 10$ fs za dužinu trajanja pulsa, osim a stanja 4f, 5p, 5f i 6p gde je $T_p = 20$ fs.

6.5.2 Verovatnoće prelaza - metod vremenski zavisnih koeficijenata

Radi potencijalnog povećanja efikasnosti u određenim domenima jačine polja kao i radi poređenja različitih metoda, račun iz prethodnog odeljka ponovili smo koristeći se metodom vremenski zavisnih koeficijenata objašnjen u odeljku 6.4.

Problem evolucije talasnog paketa rešavamo koristeći sistem diferencijalnih jednačina po vremenski zavisnim koeficijentima razvoja u bazu

$$i\dot{c}_{nl} = \sum_{n',l'} W_{nl,n'l'} c_{n'l'}(t) e^{i\omega_{nl,n'l'}^{(0)} t}, \quad (6.22)$$

gde su $W_{nl,n'l'} = \langle \varphi_{nl} | F(t) z | \varphi_{n'l'} \rangle$ i $\omega_{nl,n'l'}^{(0)} = E_{nl}^{(0)} - E_{n'l'}^{(0)}$ okarakterisan početnim uslovima

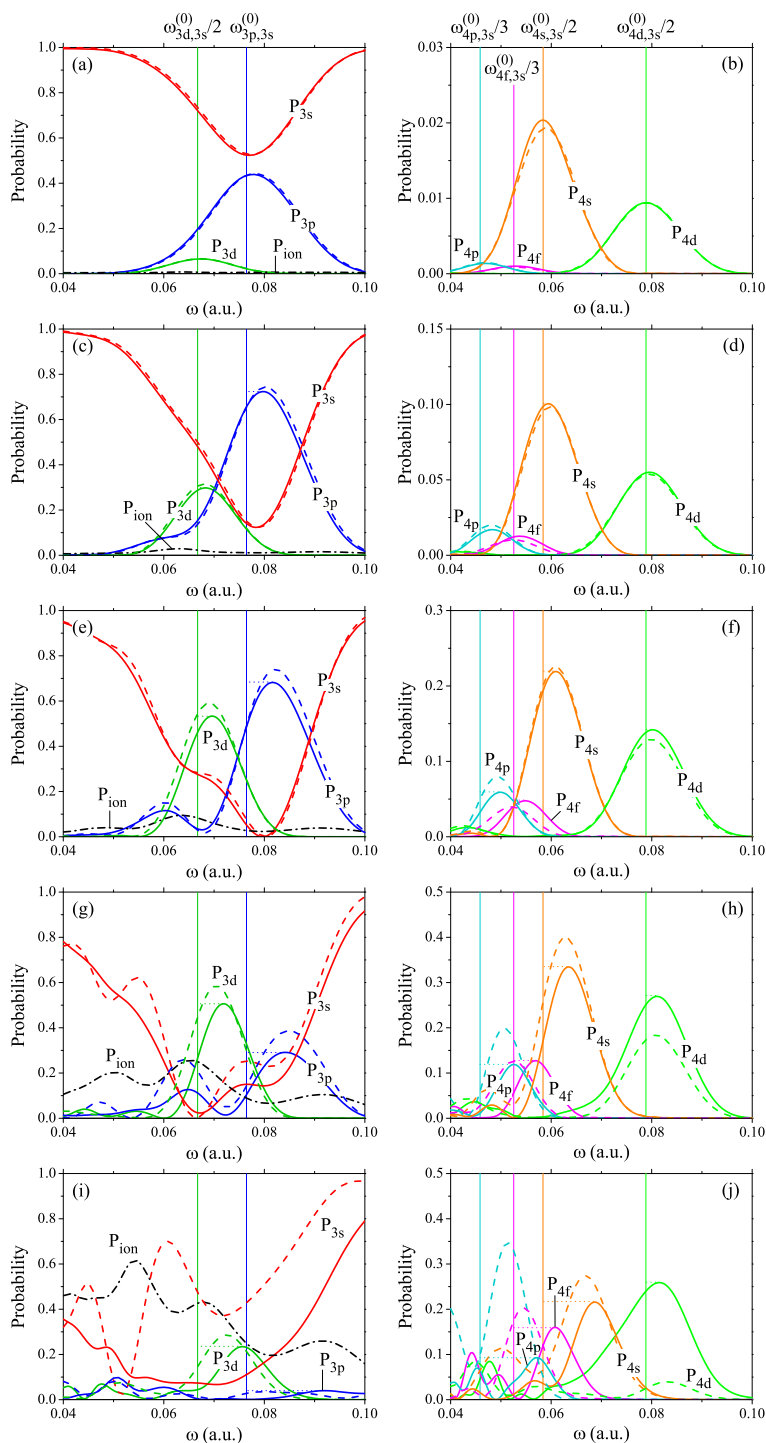
$$c_{nl}(0) = \delta_{n,3} \delta_{l,0}, \quad (6.23)$$

kojima osiguravamo da se u početnom trenutku sistem nalazi u osnovnom stanju.

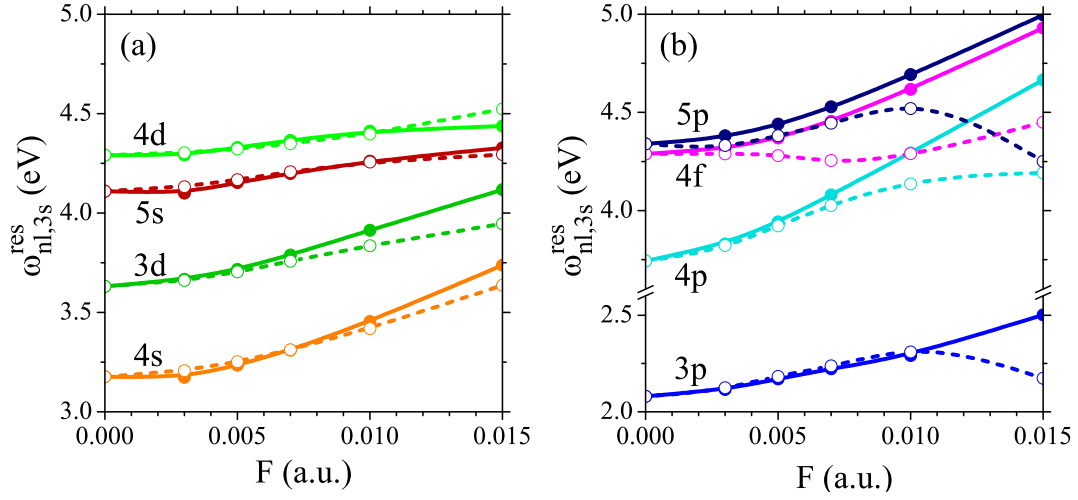
Za rešavanje ovog problema neophodno je prvo izračunati diplone matrične elemente $\langle \varphi_{nl} | z | \varphi_{n'l'} \rangle$. Ovo radimo numerički koristeći se numerički izračunatim svojstvenim stanjima neperturbovanog atoma (kod za računanje je dat u dodatku C).

Jednom kada smo izračunali matrične elemente, ostatak računa se svodi na variranje parametara F_{peak} i ω da bismo proanalizirali željeni domen jačina i frekvencija spoljašnjeg polja. Kao i kod računa metodom talasnog paketa, račun smo sprovedi za 5 različitih vrednosti jačina polja (0.003, 0.005, 0.007, 0.010 i 0.015 a.u.) u domenu frekvencija od 0.040 do 0.100 a.u. Rezultati za verovatnoće prelaza u određena ekscitovana stanja, prikazani su na isti način kao u prethodnom odeljku, a zatim su iz dobijenih lokalnih maksimuma tražene vrednosti dobijene iz jednačine (6.19).

Na slici 6.5 vidimo rezultate dobijene metodom vremenski zavisnih koeficijenata upoređene sa rezultatima dobijenim metodom evolucije talasnog paketa. I po položaju i po intenzitetu maksimuma rezultati se odlično poklapaju u slučaju slabijih polja, međutim uz povećavanje jačine polja odstupanje postaje sve veće. Na slici 6.6 prikazane su interpolacione krive objašnjene u prethodnom odeljku za oba metoda. Primećujemo kao trend da su metodom vremenski zavisnih koeficijenata bolje opisani prelazi sa parnim brojem fotona jer krive nemaju veliko odstupanje čak i pri jačim poljima, međutim viša p i f stanja jako odstupaju od metoda talasnog paketa već pri poljima od oko 0.005 a.u. Glavni razlog odstupanja ovog metoda je u tome što bazis atomskih stanja ne sadrži stanja kontinuuma pomoću kojih bi mogao biti opisan proces jonizacije koji je izraženiji pri jakim poljima.



Slika 6.5: Naseljenosti 3s, 3p, 3d, 4s, 4p, 4d i 4f stanja nakon interakcije natrijuma u osnovnom stanju (3s) sa laserskim pulsom trajanja 10 fs i jačina: $F_{peak} = 0.003$ a.u. ($I_{peak} = 3.16 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$), $F_{peak} = 0.005$ a.u. ($I_{peak} = 8.77 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$), $F_{peak} = 0.007$ a.u. ($I_{peak} = 1.72 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$) kao funkcije frekvencije lasera ω . Rezultati su dobijeni metodom vremenski zavisnih koeficijenata (isprekidane linije) i upoređeni sa rezultatima dobijenim evolucijom talasnog paketa (pune linije). Vertikalne linije označavaju energije prelaza iz osnovnog stanja (3s) u stanje (nl) podeljeno sa brojem apsorbovanih fotona K u limitu slabih polja. Verovatnoća jonizacije $P_{ion}(\omega)$ predstavljena je tačkacrtta linijom. Zbog preglednosti, naseljenosti za stanja sa glavnim kvantnim brojem $n = 5$ i $n = 6$ nisu prikazana.



Slika 6.6: Zavisnost energija ekscitovanih stanja E_{nl} relativnih na energiju osnovnog stanja E_{3s} u zavisnosti od jačine polja za atom natrijuma u laserskom polju, koje je u K -fotonskoj rezonanci sa prelazima $(3s) \rightarrow (nl)$: (a) $K = 2$, (b) $K = 1$ i $K = 3$.

Ipak, metod vremenski zavisnih koeficijenata može dosta dobro da opiše glavne kanale ekscitacije pri slabijim poljima, a njegova numerička efikasnost omogućava nam da ga koristimo sa lakoćom u poređenju sa drugim pomenutim metodama.

6.5.3 Analiza fotoelektronskog spektra atoma natrijuma pri dejstvu polja frekvencije od 800 nm

Friman i saradnici [65] pokazali su da se u fotoelektronskom spektru mogu detektovati strukture korelisane sa ulascima i izlascima atomskih stanja u rezonance tokom pulsa kao posledica Štarkovog pomaka. Teorijski, ako se multifotonska rezonanca dešava apsorpcijom N fotona, onda je energija fotoelektrona u limitu slabih polja $E_e = N\omega - I_p$. Međutim, u slučaju jakih polja imamo pomak i osnovnog stanja i granice kontinuuma koje doprinose ukupnoj promeni jonizacionog potencijala

$$I_p \rightarrow I_p - \delta E_{gr}(F, \omega) + U_p(F, \omega) \quad (6.24)$$

i energija fotoelektrona E_e postaje zavisna od jačine polja. Zbog toga, ako se tokom pulsa dogodi pomak zbog kog jedno od prelaznih stanja postane rezonantno (slika 6.1), videćemo oštar skok prinosa fotoelektrona na toj frekvenciji. Dakle, lokalne maksimume u fotoelektronskom spektru možemo povezati za rezonantnim dinamičkim Štarkovim

pomakom preko nekih od prelaznih stanja. Ako primenimo formulu $\delta E_{gr} = -\alpha_{gr} F^2/4$ i aproksimiramo dinamičku polarizabilnost poznatom statičkom vrednošću ($\alpha_{gr}^{stat} = 167.7$ [66]), energija fotoelektrona biće određena izrazom

$$E_e = N\omega - \left[I_p + \frac{1}{4} (\alpha_{gr}^{stat} + \omega^{-2}) F^2 \right]. \quad (6.25)$$

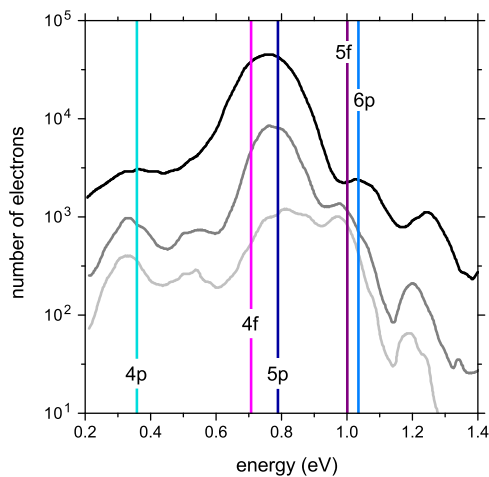
Koristeći se interpolacionim krivama objašnjenim na kraju prethodnog odeljka i jednačinom (6.25) analizirani su podaci dobijeni u nedavno objavljenom merenju prinosa fotoelektrona za natrijum pri polju od 800 nm [67] (aparatura ovog eksperimenta detaljno je opisana u referenci [68]). Na slici 6.4 možemo videti da na ovoj frekvenciji (koja odgovara energiji fotona od $\omega = 0.05695$ a.u. ≈ 1.55 eV) funkcije $\omega_{nl,3s}^{res}(F)$ za $4p$, $4f$, $5p$, $5f$ i $6p$ presecaju trostruku energiju fotona ($\approx 3 \times 1.55$ eV) to jest ulaze u rezonancu za različite vrednosti jačine spoljašnjeg polja F . Ove vrednosti polja i vrednosti energija izlaznih fotona izračunate primenom jednačine (6.25) date su u tabeli 6.2, a poređenje sa eksperimentalnim rezultatima dato je na slici 6.7. Sa slike 6.7 vidimo da je dominantni maksimum u prinosu fotoelektrona ($E_e \approx 0.76$ eV) povezan sa rezonantnim prelazima preko $4f$ i $5p$ stanja, lokalni maksimum na $E_e \approx 0.35$ eV povezan je sa prelazom preko $4p$ rezonantnog stanja, a lokalni maksimum na $E_e \approx 1$ eV povezan je sa prelazom preko $5f$ i $6p$ rezonantnog stanja. Treba spomenuti takođe da jednofotonske i dvofotonske rezonance nisu moguće pri ovim parametrima polja.

stanje	F (a.u.)	intenzitet (W/cm ²)	E_e (eV)
4p	0.0148	7.69×10^{12}	0.358
4f	0.0105	3.87×10^{12}	0.707
5p	0.0092	2.97×10^{12}	0.789
5f	0.0043	0.65×10^{12}	1.001
6p	0.0028	0.28×10^{12}	1.035

Tabela 6.2: Vrednosti jačine laserskog polja (električne komponente), intenzitet lasera i energiju fotoelektrona koja karakteriše rezonantne tro-fotonske ekscitacije $4p$, $4f$, $5p$, $5f$ i $6p$ stanja natrijuma laserskim poljem talasne dužine od 800 nm ($\omega \approx 1.55$ eV).

Konačno, diskutujemo ekscitaciju $4s$ stanja pošto su autori eksperimentalnog merenja [67] predložili da su zbog rezonance sa tim stanjem dominantni kanali jonizacije preko $4s$ i $5p$ i $6p$ intermedijarnih stanja. Zaista, sa slike 6.5 vidimo da je pri frekvenciji od 800 nm ovo stanje blisko rezonanci u limitu slabih polja. Međutim, vidimo da pri višim poljima usled Štarkovog pomaka ovo stanje izlazi iz rezonance pa se shodno i verovatnoća njegovog pobuđivanja smanjuje. Naš je zaključak stoga da $4s$ stanje ne

doprinosi preferentnoj naseljenosti P stanja ($4p$, $5p$ i $6p$) u odnosu na F stanja ($5f$ i $6f$) kao što je bilo očekivano [69, 70]. Štaviše, sa slike 6.3 na osnovu simulacije vidimo da je naseljenost stanja nf istog reda ili veća od stanja $(n + 1)p$.



Slika 6.7: Računate vrednosti za fotoelektronske energije (vertikalne linije) koje karakterišu četvorofotonsku rezonantno pojačanu jonizaciju (REMPI) natrijuma preko $4p$, $4f$, $5p$, $5f$ i $6p$ stanja laserskim poljem od 800 nm (iz tabele 6.2), prikazani zajedno sa eksperimentalno merenim prinosom elektrona u zavisnosti od njihove energije dobijene za puls od 57 fs sa intenzitetima $3.5 \times 10^{12}\text{ W/cm}^2$ (bledo siva, donja kriva), $4.9 \times 10^{12}\text{ W/cm}^2$ (siva, srednja kriva), and $8.8 \times 10^{12}\text{ W/cm}^2$ (crna gornja kriva) [67].

Glava 7

Jonizacija preko praga kod atoma natrijuma i litijuma

Kao što je prodiskutovano u prethodnim odeljcima, kod procesa u kojima je Keldišev parametar (3.2) mnogo veći od 1, dominantan mehanizam jonizacije valentnog elektrona je apsorpcija jednog ili više fotona iz upadnog laserskog snopa. Da bi jonizacija na ovaj način uopšte bila moguća potrebno je da bude zadovoljen uslov

$$N\omega - I_p(F, \omega) > 0, \quad (7.1)$$

gde je N broj apsorbovanih fotona, ω frekvencija (energija) fotona, a $I_p(F, \omega)$ jonizacioni potencijal posmatranog atoma sa uračunatim Štarkovim pomakom. Ovaj proces naziva se multifotonskom jonizacijom. Na slici 7.1 vidimo energijsku šemu jednog takvog procesa kod atoma Na izloženog pulsu talasne dužine od 760nm ($\omega = 0.06$ a.u.). Sa ovako definisanim parameterima, potrebna je apsorpcija 4 fotona da bi elektron dobio dovoljno energije da napusti privlačni potencijal atomskog ostatka.

Jedna od indikacija neperturbativne prirode ovog procesa je mogućnost apsorpcije većeg broja fotona od onog koji je potreban za jonizaciju. Takav proces prvi put je zapažen eksperimentalno na atomima Xe u laserskom polju 1979 godine [71]. Autori originalnog rada, merili su 6-fotonsku jonizaciju atoma Xe izloženih pulsu intenziteta $8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ trajanja 10 ns (duboko u režimu dugih pulseva). Rezultati koje su dobili, bili su iznenađujući jer slobodan elektron ne može da dobije tako veliku energiju u asimptotskoj oblasti samo apsorpcijom fotona u oscilujućem spoljašnjem polju jer je maksimalna kinetička potencijalna energija polja koju elektron može da konvertuje u kinetičku limitirana ponderomotornim potencijalom U_p . Ono što omogućava dalju apsorpciju fotona je prisustvo Kulonovog polja atomskog ostatka nakon apsorpcije dovoljnog broja fotona za jonizaciju. U izmerenom energijskom spektru fotoelektrona

atoma Xe, zapažen je maksimum pored glavnog 6-fotonskog sa razmakom od tačno energije jednog fotona koji je pripisan apsorpciji i sedmog fotona. Za više intenzitete, primećene su čitave serije maksimuma sa istim razmakom. Ova fenomen naziva se jonizacijom preko praga (above threshold ionization - ATI). Energija elektrona ATI maksimuma reda s je:

$$E_{ATI}^s = n\omega + s\omega - I_p - U_p \quad (7.2)$$

gde je n minimalni broj fotona frekvencije ω potreban da se jonizuje atom jonizacionog potencijala I_p . U_p je ponderomotorna energija koja je uključena u jednačinu zbog toga što je pri jačinama polja potrebnim da bi ATI postao opservabilan istog reda veličine kao energije fotona i elektrona. U eksperimentima sa dužim pulsevima, ponderomotorni član iz (7.2) postaje blizak nuli jer fotoelektroni vraćaju ovu energiju tokom izlaska iz fokusa lasera. Stoga u takvim eksperimentima ne zapažamo ponderomotorni pomak. Perturbativni treman ATI dao je stepeni zakon da opiše relativne intenzitete pojedinačnih ATI maksimuma [72]

$$\Gamma_{n+s} \propto I^{n+s}, \quad (7.3)$$

koji je potvrđen i eksperimentalno [73]. Sa povećanom dostupnošću lasera visokih intenziteta reda veličine 10^{14} W/cm^2 , ubrzo su zapažene i devijacije od očekivanog spektra kao što je jako suzbijanje n -tog maksimuma u odnosu na $(n + 1)$ [74]. Za pravilnu interpretaciju eksperimentalnih podataka, bilo je potrebno uzeti u obzir efekte zavisne od intenziteta vezane za ponderomotorni potencijal [75].

Zbog ponderomotornog potencijala, energija fotoelektrona ne zavisi samo od broja fotona koji je apsorbovan već i od jačine polja u trenutku apsorpcije, što postaje naročito bitno za kratke pulseve. Jedan od zanimljivih efekata zapažen od strane Frimana (Freeman) i saradnika je cepanje ATI maksimuma na finu strukturu nekolicine bliskih maksimuma pri kratkim pulsevima [65]. Ovakvi maksimumi zapaženi su kao serija sa pravilnim razmacima širine jedne fotonske energije.

Fina struktura ATI maksimuma dobro je opisana jednostavnim modelom. Kada zbog dinamičkog Štarkovog pomaka neko od vezanih stanja blisko kontinuumu postane rezonantno sa osnovnim stanjem, verovatnoća jednofotonske jonizacije sa ovog stanja naglo raste. Kako se jačina polja menja tokom pulsa, a sa njom i ponderomotorni potencijal koji smanjuje energiju fotoelektrona, u zavisnosti od rezonantnog stanja preko kog se jonizacija realizuje vidimo male razlike u energiji fotoelektrona. Ove rezonance poznate su kao Frimanove rezonance, a posledica su rezonantno pojačane multifotonske

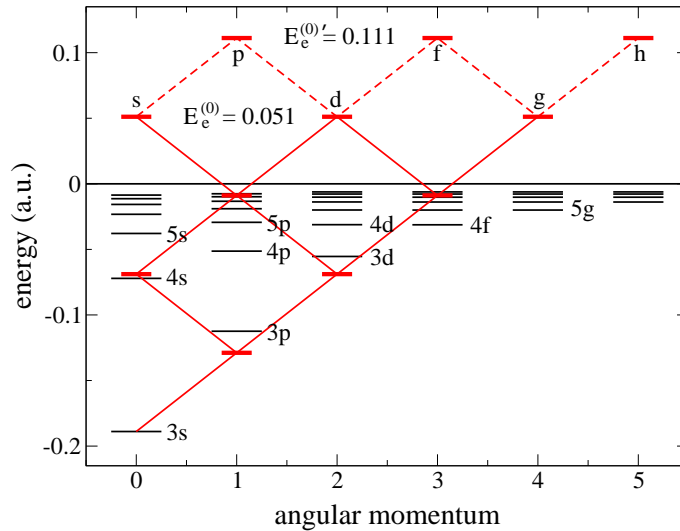
jonizacije (REMPI - resonantly enhanced multiphoton ionization). Naime, ako se m -fotonska rezonanca između osnovnog stanja $|\phi_0\rangle$ i stanja $|\phi_i\rangle$ realizuje pri intenzitetu polja F_i koja je nakon toga ispraćena sa $(s + 1)$ -fotonskom jonizacijom u kontinuum (gde je s broj fotona preko broja potrebnog za jonizaciju), energija koju izlazni elektron ima je

$$E_e = (m + s + 1)\omega - I_p - U_p(F_i). \quad (7.4)$$

Stoga energijska razlika maksimuma fine strukture dobijena jonizacijom preko dva različita rezonantna stanja zavisi samo od ponderomotornog potencijala kao

$$\Delta E_{i,j} = U_p(F_i) - U_p(F_j). \quad (7.5)$$

7.1 Šema ekscitacija i energija fotoelektrona



Slika 7.1: Energetska šema natrijuma koja pokazuje jednostruko pobuđena stanja i moguće četvoroi peto-fotonske (ATI) apsorpcione putanje iz osnovnog stanja u kontinuum pri dejstvu laserskog pulsa od 760 nm ($\omega = 0.06$ a.u.).

Slika 7.1 pokazuje najniže energije nivoa koji odgovaraju jednostruko pobuđenim stanjima natrijuma i moguće multifotonske apsorpcione putanje tokom interakcije sa laserskim pulsem talasne dužine 760 nm ($\omega = 0.06$ a.u.). Kao što je opisano u prethodnom odeljku, energija fotoelektrona zavisi od ponderomotornog potencijala kao u formulama (7.4) i (7.5). Za još precizniji proračun, pored ponderomotornog potencijala,

može se uzeti u obzir i Štarkov pomak osnovnog stanja koji dodatno povećava jonizaci-
oni potencijal koji prelazi iz I_p u $I_p - \delta E_{gr} + U_p$. Za pomak osnovnog stanja koristimo
aproksimativni izraz $\delta E_{gr} = -\alpha_{gr}(\omega)F^2/4$ [50] u kojoj je dinamička polarizabilnost
aproksimirana svojom statičkom vrednošću (za natrijum $\alpha_{gr}^{stat} = 162.7$ [66]), a ponde-
romotorni potencijal računamo kao $U_p = F^2/4\omega^2$. Ovako modifikovan, aproksimativan
izraz iz formule (7.4) za izlaznu energiju fotoelektrona poprma oblik [29]:

$$E_e = (m + s + 1)\omega - \left[I_p + \frac{1}{4} (\alpha_{gr}^{stat} + \omega^{-2}) F^2 \right]. \quad (7.6)$$

Dijagram energetske nivoa na slici 7.1 ilustruje da je potrebno bar 4 fotona frekven-
cije $\omega = 0.06$ a.u. da bi elektron iz osnovnog stanja ($3s$) mogao da stigne u kontinuum.
U režimu niskih intenziteta, ovakva nerezonantna multifotonska jonizacija je dominan-
tan proces i $E_e \approx E_e^{(0)} = 0.051$ a.u. = 1.39 eV. Ako je apsorbovano pet fotona, energija
takvog fotoelektrona biće $E_e^{(0)'} = E_e^{(0)} + \omega = 0.111$ a.u. = 3.02 eV (prvi ATI maksimum).
Povećavanjem jačine polja energija fotoelektrona E_e se smanjuje, ali sa druge strane
se mogu uočiti Frimanove rezonance i REMPI spektar. Ovo se vidi kao substrukture
u glavnom (nerezonantnom) maksimumu u fotoelektronskom spektru. Ovaj spektar se
dobija iz impulsne distribucije fotoelektrona čije računanje je objašnjeno u narednom
odeljku.

7.2 Furijeov transform u cilindričnim koordinatama

Kao i u prethodnim odeljcima, efekte jonizacije preko praga kod atoma Na i Li, do-
bijamo simulacijom evolucije talasnog paketa valentnog elektrona u spoljašnjem polju
metodom konačnih razlika drugog reda (SOD) adaptiranom za upotrebu u cilindrič-
nim koordinatama. Raspodela po impulsima i energijama dobija se iz kvadrata talasne
funkcije u impulsnom prostoru $|\bar{\psi}(\vec{k}, t)|^2$ za $t > T_p$, gde je T_p vreme trajanja pulsa. Da
bi ova distribucija bila vidljiva, prvo je potrebno da razdvojimo izlazni talas $\psi_{out}(\vec{r}, t)$
od nejonizovanog (kvazi-vezanog) dela talasne funkcije koji je mnogo jači po intenzi-
tetu. Ovo se postiže puštanjem vremena propagacije da bude dovoljno duže od T_p
tako da preklapanje između izlaznog talasa i nejonizovanog dela postane zanemarljivo
malo. Transformaciju talasnog paketa u impulsnu reprezentaciju postizemo primenom
Furijeovog transform. Zbog aksijalne simetrije problema, nije potrebno da računamo
pun 3D Furijeov transform. Raspodelu po impulsima u (k_ρ, k_z) potprostoru možemo
da dobijemo direktno iz talasne funkcije $\psi(\vec{r})$ uz modifikaciju baziranu na pretpostavci

da je ona aksijalno smetrična ili

$$\psi(\vec{r}) = \psi(\rho, z). \quad (7.7)$$

Počevši od opšte formule za Furijeov transform

$$\bar{\psi}(\vec{k}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int \psi(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} d^3\vec{r}, \quad (7.8)$$

uz zamenu (7.7) i zapis vektora \vec{r} i \vec{k} po skalarnim cilindričnim komponentama imamo

$$\bar{\psi}(\vec{k}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_0^\infty \rho d\rho \int_0^{2\pi} d\phi \int_{-\infty}^\infty dz e^{-i[k_\rho \rho \cos(\phi_k - \phi) + k_z z]} \psi(\rho, z). \quad (7.9)$$

Da bismo rešili integral po ϕ , korsitimmo poznat rezultat za Beselovu funkciju J_0 [76]

$$\int_0^{2\pi} e^{-i[k_\rho \rho \cos(\phi_k - \phi)]} = 2\pi J_0(k_\rho \rho) \quad (7.10)$$

pa je konačno

$$\bar{\psi}(k_\rho, k_z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^\infty dz e^{-ik_z z} \int_0^\infty \rho d\rho J_0(k_\rho \rho) \psi(\rho, z). \quad (7.11)$$

Integral po z -koordinati u izrazu (7.11) može se dobiti pomoću FFT algoritma.

Fotoelektronski energijski spektar može se dobiti usrednjavanjem distribucije verovatnoće $|\bar{\psi}(k_\rho, k_z)|^2$ po polukružnicama $k_\rho^2 + k_z^2 = 2E$ koje odgovaraju različitim energijama E izbačenih elektrona.

7.3 Impulsna raspodela fotoelektrona

Furijeov transform talasne funkcije fotoelektrona objašnjen u prethodnom odeljku, omogućava nam analizu numeričkih podataka dobijenih simulacijom radi poređenja sa dostupnim eksperimentalnim rezultatima. Samo na osnovu talasne funkcije, možemo da uočimo preferentne pravce jonizacije u odnosu na osu definisanu pravcem spoljašnjeg polja, ali ne možemo ništa da kažemo o energijama ovih elektrona, niti možemo da uočimo strukture vezane za ATI.

Prvo što se uočava na impulsnoj raspodeli, je da su sve obrazovane strukture raspodeljene na kružnicama određenih radijusa. Radijus ovih kružnica je $k = \sqrt{2E}$ pa se sa njih može lako pročitati energija fotoelektrona. Kako su, zbog Štarkovog pomaka

osnovnog stanja i granice kontinuuma položaji kružnica jako zavisni od jačine polja, poređenjem istih struktura u limitu slabih polja sa onima dobijenim pri željenoj vrednosti spoljašnjeg električnog polja možemo proceniti pomak kao razliku ova dva radijusa

$$\Delta E = \frac{1}{2} [(k_e(F))^2 - (k_e^{(0)})^2], \quad (7.12)$$

gde je $k_e(F)$ radijus kružnice pri maksimalnoj vrednosti jačine polja F , a $k_e^{(0)}$ radijus kružnice u limitu slabih polja.

Osim procene Štarkovog pomaka, pomoću impulsne raspodele možemo uočiti i kružnice višeg reda čiji radijusi odgovaraju energijama za ATI apsorpcijom jednog više fotona.

Raspodela transformisane talasne funkcije duž ove dve kružnice ima karakterističnu nodalnu strukturu pomoću koje se lako mogu odrediti dominantni sferni harmonici pa samim tim i parcijalni talasni koji sačinjavaju izlazni talas. Ovo nam pomaže da utvrdimo koji kanali jonizacije su bili dominantni tokom procesa.

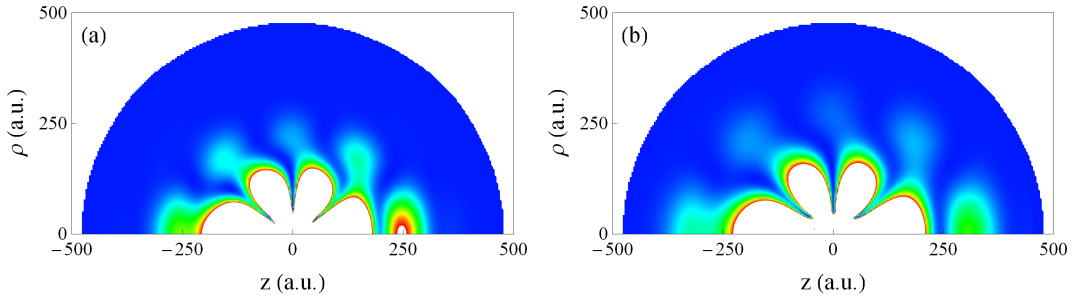
Za poređenje sa eksperimentalnim rezultatima, često je potrebno dati zavisnost prinosa elektrona (koji je proporcionalan sa verovatnoćom nalaženja u stanjima kontinuuma) od energije. Da bismo od ovde izračunali impulsne raspodele to i dobili, potrebno je da se u koracima od δk (koji predstavljaju rezoluciju numeričkih podataka) vrši integracija talasne funkcije impulsne raspodele po kružnici koja će dati ukupnu verovatnoću nalaženja fotoelektrona sa datom energijom. Pošto su rezultati koje mi dobijamo pomoću Furijeovog transformisa opisanog u prethodnom odeljku predstavljani na kvadratnoj mreži, radi lakše integracije po kružnici koristimo proceduru za dobijanje interpolacione funkcije dostupnu u programskom paketu Wolfram Mathematica pomoću koje dobijamo kontinualne vrednosti na talasne funkcije u impulsnom prostoru na osnovu našeg seta podataka.

7.4 Rezultati

7.4.1 Natrijum u promenljivom električnom polju

U okviru ovog istraživanja razmatrana je fotojonizacija atoma natrijuma u polju lasera talasne dužine od 760 nm ($\omega = 0.06$ a.u.) amplitude oblika

$$F(t) = F_{peak} \sin^2 \left(\frac{\pi(t - T_p/2)}{T_p} \right) \cos(\omega(t - T_p) + \phi) \quad (7.13)$$



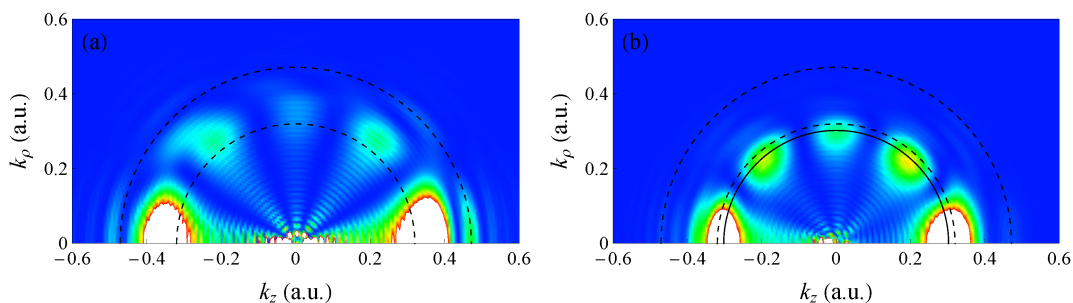
Slika 7.2: Raspodela verovatnoće $|\psi(\vec{r}, t)|^2$ aktivnog elektrona natrijuma ozračenog sa laserskim pulsem trajanja 10 fs, oblika (7.13) sa $\omega = 0.06$ a.u. i $F = 0.007$ a.u. u trenutku kada je (a) $t = 1000$ a.u. i (b) $t = 1200$ a.u. Izlazni talas (sa pet maksimuma) određuje angularnu distribuciju fotoelektrona.

gde je faza obvojnice uzeta kao $\phi = 0$, vreme trajanja pulsa $T_p = 10$ fs (413.4 a.u.), a račun je sproveden za tri vrednosti maksimalne vrednosti jačine polja $F_{peak} = 0.007, 0.010$ i 0.015 a.u. (odgovarajuće vrednosti intenziteta lasera su $1.72, 3.51$ i 7.90 TW/cm^2).

Prilikom računanja impulsnih distribucija fotoelektrona, radi bolje razdvojenosti dela talasne funkcije koji potiče od fotoelektrona od mnogo intenzivnijeg dela koji potiče od vezanih elektrona u jezgru, numerički račun urađen je za vreme značajno duže od vremena trajanja pulsa. Drugim rečima, nakon završetka pulsa u trenutku $t = T_p$, talasna funkcija puštena je da evoluiru dalje da se talasni paket fotoelektrona udalji dovoljno daleko od jezgra. U ovom konkretnom slučaju, račun je sproveden do $t = 1500$ a.u. što je nešto više nego trostruka dužina trajanja pulsa.

Slika 7.2 pokazuje raspodelu verovatnoće $|\Psi(\vec{r}, t)|^2$ nalaženja aktivnog (valentnog) elektrona u prostoru u trenutku $t = 1000$ a.u. i u trenutku $t = 1200$ a.u. za jačinu polja $F = 0.007$ a.u. Na slici se jasno vide dve strukture od kojih intenzivnija centralna predstavlja vezane elektrone dok spoljašnja struktura sa 5 maksimuma predstavlja izlazni talas. Pored dva intenzivna maksimuma u pravcu polarizacije lasera ($\varphi = 0^\circ$ i $\varphi = 180^\circ$) imamo i maksimume koji se nalaze na $\varphi \approx 45^\circ$, $\varphi \approx 90^\circ$ i $\varphi \approx 135^\circ$. Ova uočena struktura povezana je sa određenom kombinacijom dostupnih parcijalnih talasa (slika 7.1). U ovom slučaju to je kombinacija s , d i g parcijalnih talasa u kojoj je g talas dominantan što možemo zaključiti na osnovu odgovarajućeg sfernog harmonika koji ima 4 node i 5 maksimuma. Dakle najzastupljeniji jonizacioni kanal ide preko f stanja. Ovo je dodatno potvrđeno i strukturom unutrašnjeg dela talasne funkcije koji ima 4 maksimuma što odgovara f stanju.

Na slici 7.3 koja prikazuje impulsnu distribuciju fotoelektrona vidimo sličnu struk-



Slika 7.3: Impulsna distribucija fotoelektrona za proces prikazan na slici 7.2 u trenucima (a) $t = 800$ a.u. i (b) $t = 1000$ a.u. Isprekidane polukružnice predstavljaju očekivane vrednosti u četvorofotonskim (MPI) i peto-fotonskim (ATI) procesima u limitu slabih polja ($k_e^{(0)} \equiv (2E_e^{(0)})^{1/2} = 0.32$ a.u. i $k_e^{(0)'} \equiv (2E_e^{(0)'})^{1/2} = 0.47$ a.u.). Puna polukružnica odgovara impulsu fotoelektrona pri četvorofotonskoj jonizaciji kada se Štarkov pomak osnovnog stanja i granice kontinuuma (videti jednačinu (7.6)) uključe u proračune ($k_e \equiv (2E_e)^{1/2} = 0.30$ a.u.).

turu kao i kod angularne distribucije s tim što su maksimumi lokalizovani na polukružnicama radijusa $k_e \approx k_e^{(0)} \equiv (2E_e^{(0)})^{1/2} = 0.32$ a.u. Kratko nakon jonizacije, u trenutku u kom fotoelektroni još nisu stigli do asimptotske oblasti, njihovi impulsi su veći od k_e^0 ali ubrzo stižu do asimptotske oblasti i možemo da očitamo njihove energije. Preostala razlika između impulsa fotoelektrona k_e i $k_e^{(0)}$ (koja je približno 0.02 a.u.) potiče od dinamičkog Štarkovog pomaka.

Pored multifotonske jonizacije sa četiri fotona, na slici 7.3 primećujemo ATI strukture povezane sa peto-fotonskom apsorpcijom. U limitu slabih polja računata energija fotoelektrona (na osnovu dijagrama na 7.1) iznosi $k_e^{(0)'} \equiv (2E_e^{(0)'}) = 0.47$ a.u., a dozvoljeni parcijalni talasi na osnovu selekcionih pravila su p , f i h . Primetili smo da su ATI maksimumi uočljiviji kratko nakon kraja pulsa (uporediti slike 7.3 (a) i 7.3 (b)). Ovo može biti objašnjeno činjenicom da elektroni koji su apsorbovali više fotona nego što je potrebno za jonizaciju imaju veći impuls ($k_e' > k_e$) pa stoga brže stižu u asimptotsku oblast.

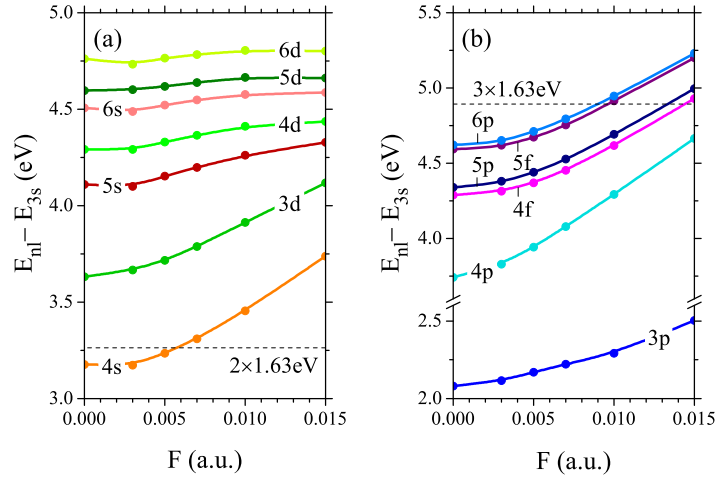
7.4.2 REMPI kod natrijuma pri pulsu od 760 nm

Freeman i saradnici [65] pokazali su da kada tokom pulsa, usled Štarkovog pomaka, atomska stanja prođu kroz rezonancu, mogu biti energijski uočena u spektru fotoelektrona. Za puls oblika (7.13), jačina polja varira od nule do F_{peak} i nazad, a ako jedno od prelaznih stanja ulazi u rezonancu na jačini polja $F \leq F_{peak}$ (ovo se dešava dva puta tokom pulsa), prinos fotoelektrona u tom periodu će se drastično povećati pa će

stanje	K	F (a.u.)	intenzitet (W/cm^2)	E_e (eV)
4s	2	0.0058	1.181×10^{12}	1.285
4f	3	0.0144	7.277×10^{12}	0.764
5p	3	0.0134	6.302×10^{12}	0.848
5f	3	0.0096	3.234×10^{12}	1.110
6p	3	0.0090	2.843×10^{12}	1.143

Tabela 7.1: Vrednosti jačine laserskog polja (električne komponente), intenziteta lasera i energije fotoelektrona koja karakteriše rezonantnu K -fotonske ekscitacije stanja natrijuma 4s, 4f, 5p, 5f i 6p i jonizaciju koja sledi usled njih pod dejstvom laserskog polja talasne dužine od 760 nm ($\omega \approx 1.63$ eV).

REMPI maksimum na odgovarajućoj vrednosti E_e postati uočljiv.

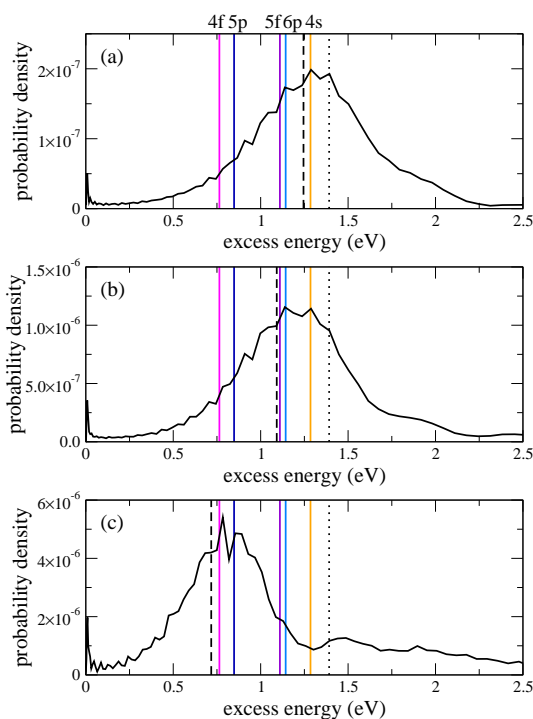


Slika 7.4: Zavisnost relativnih energija pobuđenih stanja E_{nl} u odnosu na energiju osnovnog stanja E_{3s} od jačine polja atoma natrijuma u lasersom polju frekvencije $\omega(F)$ pod K -fotonskim uslovom rezonance [$E_{nl}(\omega, F) - E_{3s}(\omega, F) = K\omega$]: (a) $K = 2$, (b) $K = 1$ (za $nl = 3p$) and $K = 3$ [29]. Horizontalne isprekidane linije u delovima (a) i (b) označavaju dvo- i tro-fotonske energije, respektivno, za lasersko polje talasne dužine 760 nm.

Položaji REMPI maksimuma mogu da se predvide koristeći podatke prikazane na slici 7.4 dobijenoj u računu za rezonantni dinamički Štarkov pomak natrijuma opisanim u poglavlju 6. Vidi se da se u slučaju pulsa od 760 nm stanja natrijuma 4s, 4f, 5p, 5f i 6p pomeraju u rezonancu sa celobrojnim umnoškom laserske frekvencije (2ω i 3ω) na različitim vrednostima jačine polja F , datim u tabeli 7.1. Ako se jačina polja pri kom se rezonanca ostvaruje iskoristi kao ulazni podatak u formuli 7.6, možemo da izračunamo energije svakog REMPI maksimuma.

Fotoelektronski spektar za tri vrednosti jačine polja, dobijen iz impulsne distribucije fotoelektrona prikazan je na slici 7.5. Slaganje između vrednosti E_e iz tabele

7.1 i položaja maksimuma u spektru potvrđuje da su substrukture (lokalni maksimumi) u glavnom (nerezonantnom) četvero-fotonskom apsorpcionom maksimumu vezane sa rezonantno pojačanom multifotonskom jonizacijom kroz prelazna stanja (2+2 REMPI kroz 4s stanje i 3+1 REMPI kroz 4f, 5p, 5f i 6p stanja). Tokom laserskog pulsa sa $F_{peak} = 0.007$ a.u. samo 4s stanje ulazi u rezonancu, ali tokom pulseva sa $F_{peak} = 0.01$ a.u. i $F_{peak} = 0.015$ a.u. ovo se dešava sa 5f i 6p stanjima (slika 7.4 (a)), kao i sa 4f i 5p stanjima (slika 7.4 (b)), repektivno.

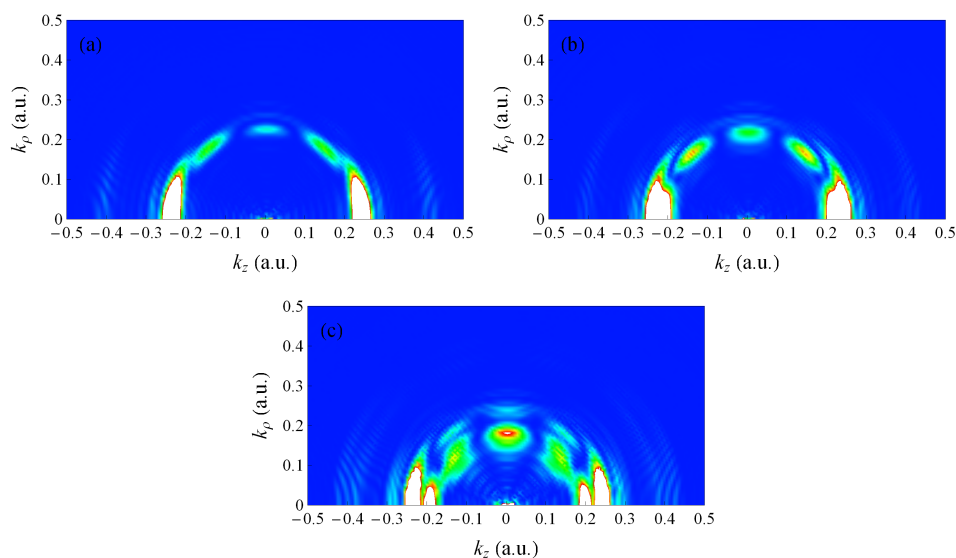


Slika 7.5: Izračunat fotoelektronski spektar (verovatnoća u zavisnosti od energije na $t = 1000$ a.u. – crna linija) atoma natrijuma koji interaguje sa laserskim pulsem trajanja 10fs (7.13) sa $\omega = 0.06$ a.u. (760nm talasne dužine) pri tri vrednosti maksimalne jačine polja: (a) $F_{peak} = 0.007$ a.u., (b) $F_{peak} = 0.01$ a.u. i (c) $F_{peak} = 0.015$ a.u. Substrukture u glavnom maksimumu vezane su sa 2+2 REMPI kroz 4s stanje i 3+z REMPI kroz 4f, 5p, 5f i 6p stanja. Prikazane su (vertikalne pune linije) i odgovarajuće vrednosti energija fotoelektrona E_e računane iz vrednosti rezonantnog dinamičkog Štarkovog pomaka (videti sliku 7.4) i jednačinu (7.6). Vrednost energije fotoelektrona u aproksimaciji slabog polja pri nerezonantnoj četvero-fotonskoj jonizaciji ($E_e^{(0)} = 1.39$ eV) kao i ista vrednost računata pomoću jednačine (7.6), prikazane su tačkastim i isrekidanim linijama, respektivno.

7.4.3 REMPI kod natrijuma pri pulsu od 800 nm

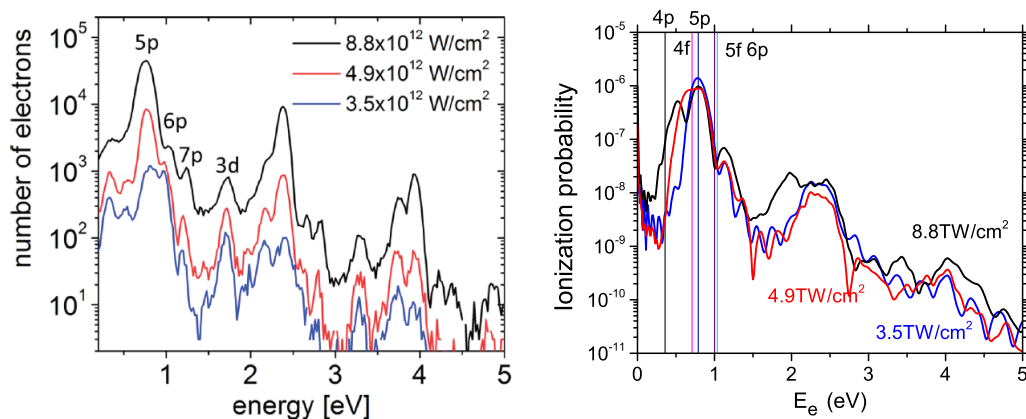
Koristeći metodologiju opisanu u ovom odeljku, vratili smo se na analizu procesa opisanog u odeljku 6.5.3 kako bismo ovaj metod uporedili sa dostupnim eksperimentalnim rezultatima [67] i sa druge strane kako bismo potvrdili svoje rezultate drugačijim metodom.

U svom radu [67], Hart i saradnici merili su energiju fotoelektrona pod dejstvom laserskog pulsa talasne dužine 800 nm i trajanja 57 fs. Intenzitet lasera varirali su u rasponu između $3.5 \times 10^{12} W/cm^2$ i $8.8 \times 10^{12} W/cm^2$. Rezultate njihovog merenja prikazali smo na slici 7.7 (levo) zajedno sa našim rezultatima dobijenim simulacijom metodom talasnog paketa.



Slika 7.6: Impulsna distribucija fotoelektrona dobijena simulacijom atoma natrijuma pod dejstvom laserskog pulsa oblika (7.6), dužine trajanja 57 fs (2356.437 a.u.), talasne dužine 800 nm ($\omega = 0.0596538$ a.u.) na tri vrednosti intenziteta polja: (a) $I = 3.5 \times 10^{12} W/cm^2$ ($F_{peak} = 0.00998653$ a.u.), (b) $I = 4.9 \times 10^{12} W/cm^2$ ($F_{peak} = 0.0118162$ a.u.) i (c) $I = 8.8 \times 10^{12} W/cm^2$ ($F_{peak} = 0.0158351$ a.u.).

U pokušaju da reprodukujemo pomenute eksperimentalne rezultate, pustili smo simulaciju atoma natrijuma pod dejstvom laserskog pulsa oblika (7.13) sa vremenom trajanja pulsa $T_p = 57$ fs (2356.437 a.u.), talasne dužine 800 nm ($\omega = 0.0596538$ a.u.) na tri vrednosti intenziteta polja: $I = 3.5 \times 10^{12} W/cm^2$ (što odgovara maksimalnoj vrednosti jačine polja $F_{peak} = 0.00998653$ a.u.), $I = 4.9 \times 10^{12} W/cm^2$ ($F_{peak} = 0.0118162$ a.u.) i $I = 8.8 \times 10^{12} W/cm^2$ ($F_{peak} = 0.0158351$ a.u.). Ovim simulacijama izračunali smo impulsne raspodele fotoelektrona (slika 7.6) kao u prethodnom odeljku, a energijski



Slika 7.7: Spektar atoma natrijuma pod dejstvom laserskog pulsa sa vremenom trajanja pulsa $T_p = 57$ fs (2356.437 a.u.), talasne dužine 800 nm ($\omega = 0.0596538$ a.u.) na tri vrednosti intenziteta polja: $I = 3.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (što odgovara maksimalnoj vrednosti jačine polja $F_{peak} = 0.00998653$ a.u.), $I = 4.9 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ($F_{peak} = 0.0118162$ a.u.) i $I = 8.8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ($F_{peak} = 0.0158351$ a.u.). (levo) Spektar dobijen eksperimentalnim merenjem objavljenim u referenci [67]. (desno) Spektar dobijen metodom evolucije talasnog paketa koristeći laserski puls oblika 7.13.

spektar smo iz njih dobili integracijom impulsne raspodele po kružnicama konstantne energije u intervalu uglova od 0° do 30° i od 150° do 180° kako bismo reprodukovali uslove njihove eksperimentalne aparature [67].

Na slici 7.7 dato je poređenje spektra dobijenog eksperimentalno (levo) i spektra dobijenog simulacijom (desno). Zbog numeričkih ograničenja, nismo bili u mogućnosti da dobijemo sliku na kojoj su i glavni jonizacioni maksimum i oba ATI maksimuma uporedivog intenziteta pa smo odabrali da prikazemo rezultat u vremenskom trenutku u kom je glavni jonizacioni maksimum najintenzivniji. Kao i u odeljku 6.5.3, vidimo da su dominantne strukture koje potiču od REMPI preko $4f$ i $5p$ stanja, kao i sporedne strukture koje potiču od REMPI preko $5f$ i $6p$ u dobrom slaganju sa strukturama vidljivim u eksperimentu. Takođe je uočljiva i struktura koja potiče od REMPI preko $4p$ stanja o kojoj je bilo reči u odeljku 6.5.3. Pored toga vidimo da su maksimumi koji potiču od dva ATI procesa (sa jednim i dva fotona preko praga na pozicijama od ≈ 2.5 eV i ≈ 4 eV, respektivno), u kvalitativno dobrom slaganju sa eksperimentalnim podacima.

7.4.4 Impulsna raspodela fotoelektrona atoma litijuma pod dejstvom jakog laserskog polja

Kako su u svom nedavno objavljenom radu [78], Šurike i saradnici koristili pulseve sličnog trajanja i u sličnom opsegu intenziteta i talasnih dužina da tretiraju atom litijuma, mi smo koristili već opisanu metodologiju (odjeljak 6.5.3) da dobijemo set rezultata uporediv sa njihovim eksperimentom.

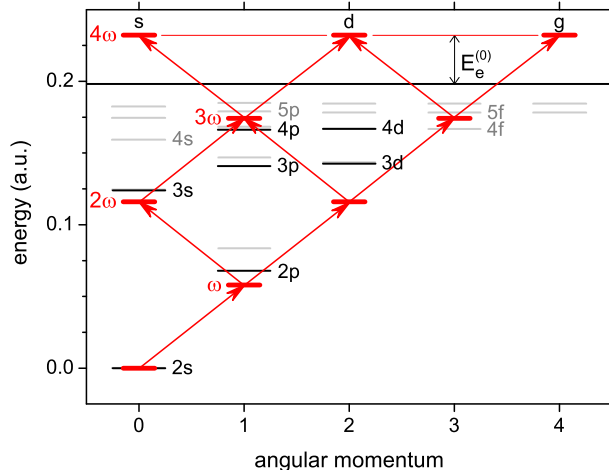
Pomenuti autori su merili impulsne raspodele i energijski spektar fotoelektrona atoma litijuma pod dejstvom laserskog pulsa talasne dužine 785 nm (što odgovara frekvenciji od $\omega = 0.058042$ a.u.) i trajanja 30 fs u opsegu intenziteta lasera od $I = 4 \times 10^{11} \text{W/cm}^2$ (što odgovara maksimalnoj jačini električne komponente laserskog polja $F_{peak} = 0.00337606$ a.u.) do $I = 7 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ (što odgovara maksimalnoj jačini električne komponente laserskog polja $F_{peak} = 0.0446611$ a.u.).

Slika 7.8 prikazuje energijsku šemu atoma litijuma pri dejstvu laserskog pulsa talasne dužine 785 nm koja nam je od koristi pri interpretaciji dobijenih rezultata. Prvo treba napomenuti da Helmanov potencijal (4.1) za atom litijuma ne daje jednako dobro slaganje kao za atom natrijuma te se njegovom upotrebom gubi na preciznosti. Parametri potencijala ($A = 34$ i $\alpha = 3.14331$) izabrani su tako da potencijal dobro reprodukuje 3s nivo i prihvatljivo dobro nivoe oko kojih se očekuju rezonance (4p, 4f, 5p i 5f). Iako ovako izabrani parametri daju značajno odstupanje u energiji 2p nivoa, dobijeni rezultati su i dalje u dobrom slaganju sa eksperimentalnim podacima zbog toga što pri izabranoj frekvenciji polja ovo stanje nije u jednofotonskoj rezonanci sa osnovnim stanjem, a njihova energijska razlika postaje sve veća usled Štarkovog pomaka pri jačim intenzitetima polja.

Na slici 7.9 prikazane su impulsne raspodele dobijene simulacijom za pet vrednosti polja ($I = 4 \times 10^{11} \text{W/cm}^2$, $I = 8 \times 10^{11} \text{W/cm}^2$, $I = 2 \times 10^{12} \text{W/cm}^2$, $I = 4 \times 10^{12} \text{W/cm}^2$ i $I = 8 \times 10^{12} \text{W/cm}^2$) zajedno sa eksperimentalnim rezultatima iz reference [78]. Poređenjem rezultata može se uočiti da su simulacijom uhvaćene sve dominantne strukture na primarnim kružnicama (broj noda i relativni intenziteti) kao i na kružnicama koje odgovaraju jonizaciji preko praga, vidljivim samo pri jačim intenzitetima polja.

Na slici 7.10 prikazani su energijski spektri dobijeni integracijom podataka sa slike 7.9 po kružnicama konstantne energije, zajedno sa slikama preuzetim iz reference [78] gde su energetska spektri dati iz eksperimenta i računati korišćenjem dva različita teorijska modela.

Dijagram 7.8 ilustruje da je, polazeći od osnovnog stanja pod dejstvom fotona tala-

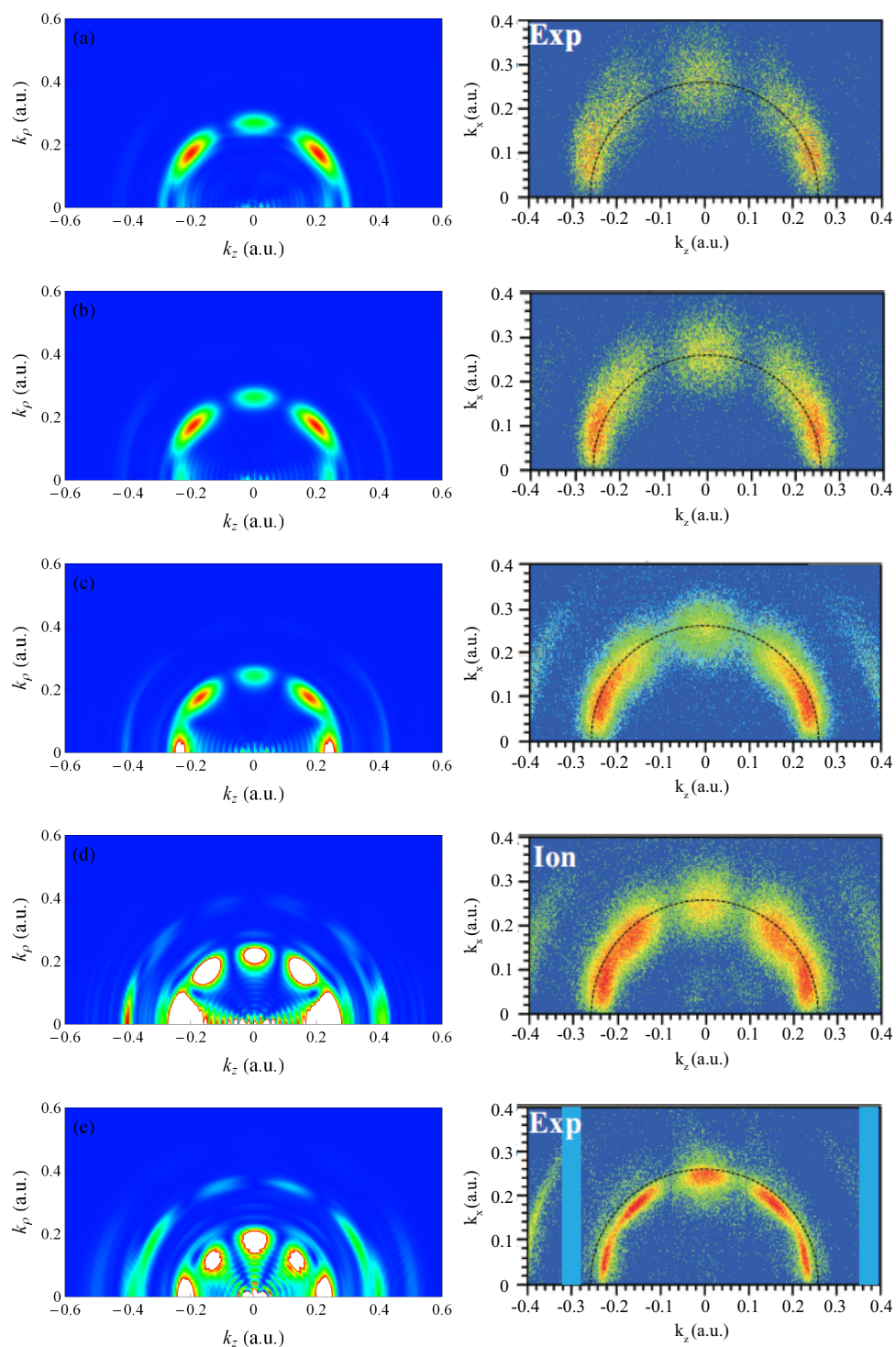


Slika 7.8: Energijska šema litijuma koja pokazuje jednostruko pobuđena stanja i moguće četvorofotonske apsorpcione putanje iz osnovnog stanja u kontinuum pri dejstvu laserskog pulsa od 785 nm. Prikazane su energije nivoa dobijene eksperimentalno (crne linije) i računski koristeći Helmanov pseudopotencijal (4.1) (sive linije). Za razliku od atoma natijuma, uočljivo je značajno odstupanje vrednosti dobijene na ova dva načina naročito za 2p nivo. Potencijal je kalibrisan tako da se dobije apsolutno slaganje sa 3s nivoom, a slaganje na višim nivooima oko kojih imamo rezonance je značajno bolje nego sa 2p nivoom.

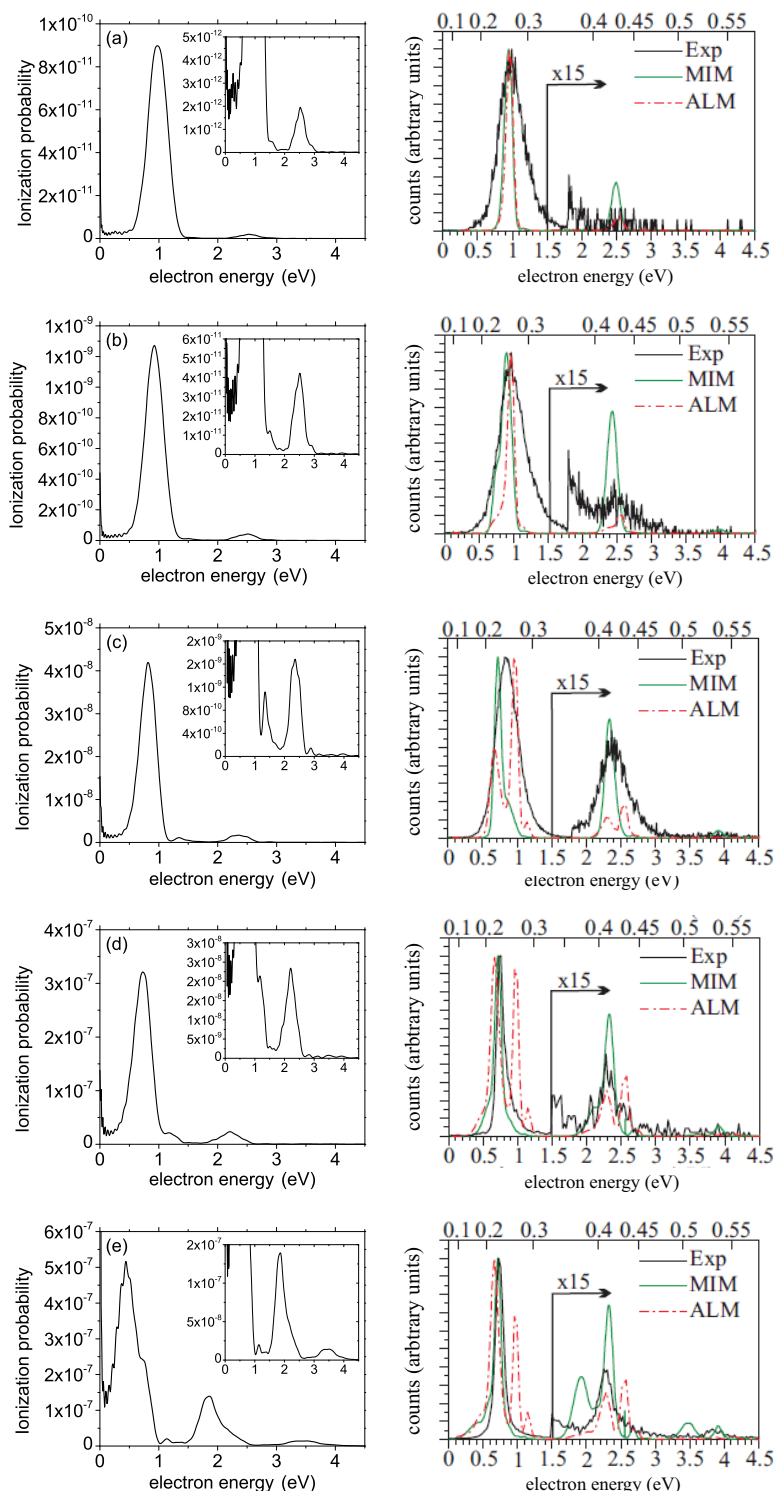
sne dužine 785 nm (energija $E_{ph} = 1.58 \text{ eV}$), potrebno bar četiri fotona da elektron pređe u kontinuum. Pri niskim intenzitetima dominantan proces je nerezonantna multifotonska jonizacija i izlazna energija fotoelektrona je očekivana da bude $E_e = 0.92 \text{ eV}$ što je u savršenom slaganju sa dobijenim teorijskim i eksperimentalnim rezultatima (slika 7.10(a)).

U impulsnim raspodelama prikazanim na slici 7.9 vidimo maksimume koji odgovaraju superpoziciji dostupnih emitovanih parcijalnih talasa. U slučaju apsorpcije četiri fotona, ovo su s , d i g parcijalni talasi. Pored nerezonantne multifotonske jonizacije, na ovim raspodelama možemo uočiti i strukture koje potiču od jonizacije preko praga (peto-fotonske apsorpcije), koje se mogu identifikovati u energijskom spektru na slici 7.10, ali su zbog razlike u intenzitetima uvećani u umetnutim slikama. Kao što je i očekivano vidi se porast u intenzitetu peto-fotonskih maksimuma pri jačim poljima. Pored toga opaža se Štarkov pomak obe linije ka nižim energijama koji se može objasniti porastom ponderomotorne energije U_p .

Rezultati prikazani u ovom odeljku još uvek nisu objavljeni, a u bliskoj budućnosti planiramo dodatnu analizu i diskusiju.



Slika 7.9: Impulsna distribucija fotoelektrona litijuma pod dejstvom laserskog pulsa, dužine trajanja 30 fs (1240 a.u.), talasne dužine 785 nm ($\omega = 0.058042$ a.u.) na pet vrednosti intenziteta polja intenziteta polja: (a) $I = 4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ($F_{peak} = 0.00337606$ a.u.), (b) $I = 8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ($F_{peak} = 0.00477447$ a.u.), (c) $I = 2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ($F_{peak} = 0.00754911$ a.u.), (d) $I = 4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ($F_{peak} = 0.010676$ a.u.) i (e) $I = 8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ($F_{peak} = 0.0150982$ a.u.). Slike sa leve strane su dobijene simulacijom koristeći puls oblika (7.6), a slike sa desne strane dobijene su eksperimentalno i preuzete su iz reference [78].



Slika 7.10: Energijski spektar fotoelektrona litijuma pod dejstvom laserskog pulsa, dužine trajanja 30 fs (1240 a.u.), talasne dužine 785 nm na pet vrednosti intenziteta polja (za isti proces prikazan na slici 7.9): (a) $I = 4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$, (b) $I = 8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$, (c) $I = 2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$, (d) $I = 4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ i (e) $I = 8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Slike sa leve strane su dobijene simulacijom koristeći puls oblika (7.6) (umetnute slike sadrže iste podatke uvećane tako da se ATI maksimum može bolje videti), a slike sa desne strane dobijene su eksperimentalno i upotrebom dva različita teorijska modela, a preuzete su iz reference [78].

Glava 8

Zaključak

Cilj ovog istraživanja bio je ispitivanje različitih procesa kod atomskih sistema (natrijuma i litijuma) u jakim laserskim poljima, kreiranje kodova za simulacije kao i ispitivanje primenljivosti metoda evolucije talasnog paketa u potencijalima koji se menjaju sa vremenom rešavanjem vremenski zavisne Šredingerove jednačine. Opseg frekvencija i intenziteta laserskog zračenja izabran je tako da pokrije režime u kojima imamo nekoliko različitih mehanizama jonizacije: tuneliranje, prekobarijernu jonizaciju (OBI), multifotonsku jonizaciju (MPI), rezonantno pojačanu multifotonsku jonizaciju (REMPI) i jonizaciju preko praga (ATI). Simulacije koje smo koristili konstruisane su tako da nam daju informacije o nekolicini relevantnih fizičkih veličina: verovatnoća jonizacije, naseljenosti pobuđenih stanja, impulsna raspodela fotoelektrona kao i njihov energetski spektar.

Kako je jedan od značajnijih rezultata istraživanja izračunavanje dinamičkog Štarkovog pomaka [29], u glavi 2 dat je pregled teorije Štarkovog pomaka. Standardni opis za statički Štarkov pomak baziran najvećim delom na knjizi Landua i Lifšica [46] daje nam analitičke izraze metodom razvoja u red, dok za nerezonantni dinamički pomak imamo nešto složeniji pristup baziran na Flokeovoj teoriji i analizi spektra kvaziharmonika [52]. Iako moćni, ovi metodi ne daju dovoljno dobre rezultate pri jakim i kratkim pulsevima, a naročito u prelaznim režimima u kojima imamo mešanje dominantnih mehanizama jonizacije.

U glavi 3 dat je kratak pregled analitičkih teorija koje se mogu koristiti za računanje stopa jonizacije u slučaju režima tunel jonizacije. Prva formula primenljiva u ovom slučaju takođe dolazi iz knjige Landua i Lifšica [46], ali je kasnije uopštena u okviru PPT [5] i ADK [6] teorija.

U našoj analizi odlučili smo se za vremenski zavisan pristup pa je u odeljku 4 dat

pregled standardnih metoda sa akcentom na metode koje su u ovom radu i korišćene. U preliminarnom istraživanju testirani su metod razdvojenog operatora baziran na algoritmu brzog Furijeovog transformacija (FFT) i metod konačnih razlika drugog reda (SOD) koji se pokazao kao efikasniji za rad sa sistemima sa cilindričnom simetrijom (kao što je atom u linearno polarisanom laserskom polju).

U glavama 5, 6 i 7 prikazana je teorija i rezultati za atomske sisteme (natrijum i litijum) izložene laserskim poljima sa promenljivim parametrima kao što su frekvencija, intenzitet i dužina pulsa.

U glavi 5 analizirana je tunel jonizacija i OBI atoma natrijuma u kvazistatičkoj aproksimaciji. Rezultati koji su dobijeni su u odličnom slaganju sa dostupnim podacima dobijenim drugim metodama, a i slažu se sa analitičkim izrazima (ADK) u domenu njihovog važenja. Takođe je ispitivan i opseg primenljivosti kvazistatičkog prilaza u odnosu na pun vremenski zavisani opis.

U glavi 6 prikazani su rezultati dobijeni analizom atoma natrijuma u laserskom polju u režimu multifotonske jonizacije metodom evolucije talasnog paketa kao i metodom vremenski zavisnih koeficijenata. Simulacija je rađena u širokom opsegu frekvencija i jačina polja, a računati su naseljenosti ekscitovanih stanja kao i verovatnoća jonizacije na kraju laserkog pulsa. Na osnovu tako dobijenih rezultata analizirali smo fotoelektronski spektar energija atoma natrijuma izloženog laserskom polju talasne dužine 800 nm i dobili rezultate koji su u odličnom slaganju sa nedavno urađenim eksperimentom [67].

Konačno, u glavi 7 prikazali smo rezultate dobijene analizom jonizacije preko praga (ATI) i rezonantno pojačane multifotonske jonizacije (REMPI) pomoću impulsne raspodele fotoelektrona i odgovarajućeg energijskog spektra. Račun i analiza urađeni su za atom natrijuma pod uticajem laserkog pulsa talasne dužine 800 nm i trajanja 57 fs kao i za atom litijuma ozračen pulsem talasne dužine 785 nm i trajanja 30 fs za koje smo imali dostupne eksperimentalne podatke za poređenje ([67] i [78] respektivno). Demonstrirano je da vremenski zavisani pristup u potpunosti može opisati sve relevantne strukture u spektrima i da daje dobro kvantitativno i kvalitativno slaganje sa eksperimentalnim podacima.

U narednom periodu istraživanja, planiramo da vremenski zavisnim metodama tretiramo druge (složenije) atomske sisteme kao i da dobijene podatke koristimo za dalju analizu složenijih procesa kao što je na primer generisanje viših harmonika (HHG) ili nesekvencijalna dvostruka jonizacija (NSDI).

Dodaci

Dodatak A

Računanje izvoda formulama višeg reda

Formula za računanje prvog izvoda koristeći četiri tačke u oba smera je

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial f}{\partial x} \right|_k &= \frac{1}{h} \left(\frac{1}{280} f_{k-4} - \frac{4}{105} f_{k-3} + \frac{1}{5} f_{k-2} - \frac{4}{5} f_{k-1} \right. \\ &\quad \left. + \frac{4}{5} f_{k+1} - \frac{1}{5} f_{k+2} + \frac{4}{105} f_{k+3} - \frac{1}{280} f_{k+4} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

dok je formula za računanje drugog izvoda na isti način

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} \right|_k &= \frac{1}{h^2} \left(-\frac{1}{560} f_{k-4} + \frac{8}{315} f_{k-3} - \frac{1}{5} f_{k-2} \right. \\ &\quad \left. + \frac{8}{5} f_{k-1} - \frac{205}{72} f_k + \frac{8}{5} f_{k+1} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{5} f_{k+2} + \frac{8}{315} f_{k+3} - \frac{1}{560} f_{k+4} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

gde su x_k i $f_k = f(x_k)$ ($k = 1, \dots, N$) vrednosti promenljive x i funkcije f na mreži sa razmakom h .

Za primenu ovih formula potrebno je znati vrednosti funkcije u većem broju tačaka oko tačke u kojoj se izvod traži te stoga nisu primenljive na granicama mreže.

Dodatak B

Računanje brzog Furijeovog transformata

U nekolicini računskih proračuna izloženih u ovoj disertaciji korišćen je FFT algoritam (Fast Fourier Transform) za računanje Furijeovog transformata talasne funkcije. Kod za Fortran 77 je u celosti preuzet iz knjige Numerical Recipes [77], a radi kompletnosti uključen je u ovom dodatku.

```
SUBROUTINE four1(data, nn, isign)
  INTEGER isign, nn
  REAL data(2*nn)
  INTEGER i, istep, j, m, mmax, n
  REAL tempi, tempr
  DOUBLE PRECISION theta, wi, wpi, wpr, wr, wtemp
  n = 2*nn
  j = 1
  do 11 i = 1, n, 2
    if (j.gt.i) then
      tempr = data(j)
      tempi = data(j+1)
      data(j) = data(i)
      data(j+1) = data(i+1)
      data(i) = tempr
      data(i+1) = tempi
    endif
    m = n/2
```

```
1      if ((m.ge.2).and.(j.gt.m)) then
        j = j-m
        m = m/2
        goto 1
      endif
      j = j+m
11     continue
      mmax = 2
2      if (n.gt.mmax) then
        istep = 2*mmax
        theta = 6.28318530717959d0/(isign*mmax)
        wpr = -2.d0*sin(0.5d0*theta)**2
        wpi = sin(theta)
        wr = 1.d0
        wi = 0.d0
        do 13 m = 1, mmax, 2
          do 12 i = m, n, istep
            j = i + mmax
            tempr = sngl(wr)*data(j)-sngl(wi)*data(j+1)
            tempi = sngl(wr)*data(j+1)+sngl(wi)*data(j)
            data(j) = data(i)-tempr
            data(j+1) = data(i+1)-tempi
            data(i) = data(i)+tempr
            data(i+1) = data(i+1)+tempi
12          continue
            wtemp = wr
            wr = wr*wpr-wi*wpi+wr
            wi = wi*wpr+wtemp*wpi+wi
13          continue
            mmax = istep
        goto 2
      endif
      return
      END
```

Dodatak C

Računanje diplonih matričnih elemenata

U nastavku dat je kod napisan u paketu Wolfram Mathematica za računanje diplonih matričnih elemenata $\langle \Psi_n | r | \Psi_m \rangle$ valentnog elektrona atoma natrijuma opisanog Helmanovim potencijalom između stanja sa spektroskopskim oznakama $3s$ (osnovno stanje), $3p$, $3d$, $4s$, $4p$, $4d$, $4f$, $5s$, $5p$, $5d$, $5f$, $6s$, $6p$ i $6d$. Datoteka koja se uvozi na početku programa sadrži podatke dobijene varijacionim računom za neperturbovane talasne funkcije svih navedenih stanja. Četiri parametra kojim je svako od ovih stanja opisano su varijaciona energija E_n , položaj prvog maksimuma funkcije r_m , visina prvog maksimuma funkcije $r_{m,int}$ i maksimalna vrednost po r do koje je funkcija računata. Brojač i_{st} služi da prebaci niz parova kvantnih brojeva (n, l) u jednodimenzioni niz kojim se lakše manipuliše računski.

```
data = ToExpression[
ReadList[
  "file location/filename.dat", {Word, Word, Word, Word}],
  InputForm];
A = 21.;
a1 = 2.5492;
V[r_] := -1/r + A Exp[-a1 r]/r;
Do[
  Clear[r, En, rm, rmint, rmax];
  If[j <= 11, ist = j + 3, ist = j + 4];
  n = IntegerPart[(Sqrt[8 ist - 7] + 1)/2];
  l = ist - n (n - 1)/2 - 1;
```

```

En = data[[j, 1]];
rm = data[[j, 2]];
rmint = data[[j, 3]];
rmax = data[[j, 4]];
solution[j] =
  NDSolve[{phi[j]''[r] +
    2 (En - V[r] - 1 (1 + 1)/(2 r^2)) phi[j][r] == 0,
    phi[j]'[rm] == 0, phi[j][rm] == rmint}, phi[j], {r, .1, rmax}];
Print[NIntegrate[
  Evaluate[phi[j][r]^2 /. solution[j]], {r, .1, rmax}]];
, {j, 1, 14}]

nst = 11;
om = Table[0, {i, 1, nst}, {j, 1, nst}];
IntMat = Table[0, {i, 1, nst}, {j, 1, nst}];
Do[
  Do[
    If[i <= 11, ist1 = i + 3, ist = i + 4];
    If[j <= 11, ist2 = j + 3, ist = j + 4];
    rmax1 = data[[i, 4]];
    rmax2 = data[[j, 4]];
    n1 = IntegerPart[(Sqrt[8 ist1 - 7] + 1)/2];
    l1 = ist1 - n1 (n1 - 1)/2 - 1;
    n2 = IntegerPart[(Sqrt[8 ist2 - 7] + 1)/2];
    l2 = ist2 - n2 (n2 - 1)/2 - 1;
    En1 = data[[i, 1]];
    En2 = data[[j, 1]];
    om[[i, j]] = En1 - En2;
    IntMat[[i, j]] =
      NIntegrate[
        Evaluate[phi[i][r] /. solution[i]]*
        Evaluate[phi[j][r] /. solution[j]]*r, {r, .1,
          Min[rmax1, rmax2]}][[1]]*
      Integrate[
        SphericalHarmonicY[l1, 0, theta, fi]*

```

```
SphericalHarmonicY[12, 0, theta, fi]*  
Cos[theta] Sin[theta], {theta, 0, Pi}, {fi, 0, 2 Pi}],  
{i, 1, nst}],  
{j, 1, nst}]
```


Dodatak D

Računanje neperturbovanih talasnih funkcija valentnog elektrona

U nastavku dat je deo programa pisanog u paketu Wolfram Mathematica za numeričko izračunavanje radijalnog dela $u(r)$ talasne funkcije

$$\Psi_{r, \theta, \phi} = \frac{u(r)}{r} Y_{l,m}(\theta, \phi), \quad (\text{D.1})$$

za $l = 1$ za valentni elektron atoma natrijuma modelovan Helmanovim potencijalom sa parametrima $A = 21$ i $\alpha = 2.5492$. Parametri E_n , r_m i $\phi(r_m)$ u kodu se dobijaju varijaciono, s tim da se E_n traži u okolini poznate vrednosti energije za traženo stanje na osnovu eksperimentalnih podataka. Nakon ovog proračuna, talasna funkcija se množi sa odgovarajućim sfernim harmonikom i njene vrednosti na $\rho - z$ mreži upisuju se u fajl koji se koristi za dalje proračune.

```
Clear[r];
l = 1;
En = -0.112417606605;
rm = 4.7157;
A = 21.;
al = 2.5492;
V = -1/r + A Exp[-al r]/r;
rmax = 60;
gpot = Plot[V, {r, 0, rmax}, PlotRange -> {-6, 6},
PlotStyle -> Hue[.6], PlotLegends -> "Expressions"];
gen = Plot[En, {r, 0, rmax}, PlotLegends -> "Expressions"];
```

```
(* Schroedinger equation: phi''[r] + 2(En-V)phi[r] = 0 *)
```

```
solution =
```

```
NDSolve[{phi''[r] + 2 (En - V - 1 (1 + 1)/(2 r^2)) phi[r] == 0,
```

```
phi'[rm] == 0, phi[rm] == .427727}, phi, {r, .1, rmax}];
```

```
gphi = Plot[Evaluate[phi[r] /. solution] + En, {r, .1, rmax},
```

```
PlotStyle -> Hue[0], PlotRange -> All];
```

```
Show[gpot, gen, gphi, PlotRange -> {- .6, .8}]
```

```
NIntegrate[Evaluate[phi[r]^2 /. solution], {r, 10^(-6), rmax}]
```


Dodatak E

SOD kod za evoluciju talasnog paketa

U nastavku dat je kompletan Fortran 77 program za računanje propagacije inicijalnog talasnog paketa $\Psi(\vec{r}, 0)$ valentnog elektrona atoma natrijuma u polju efektivnog jezgra modeliranog Helmanovim potencijalom i u spoljašnjem elektromagnetnom polju. Ovaj program korišćen je u najvećem broju proračuna u ovoj disertaciji. Kod je dat u celosti uz izostavljanje linija u zaglavlju koje otvaraju datoteke u kojima se upisuje talasna funkcija u svim vremenskim trenucima. Takođe, u izloženoj verziji koda izostavljeno je učitavanje neperturbovanih talasnih funkcija za pobuđena stanja pomoću kojih se računaju naseljeosti stanja na kraju samog pulsa. Datoteka koja se učitava na početku programa dobija se pomoću Wolfram Mathematica koda koji je opisan u dodatku D.

Potprogram *Hamfun* na kraju koda je rutina za računanje dejstva operatora kinetičke energije iz Hamiltonijana opisanog jednačinom (6.1).

```
program SODCC
c
c Second Order Difference Wave Packet Propagation
c Method in Cylindrical Coordinates (rho,z)
c
implicit double precision (a-h,o-z)
integer nn(2)
real*8 Lq,Lz,norm,vabs(1024,2048)
real*8 psir(1024,2048),Vecp,vpot(1024,2048)
COMPLEX*16 IU,psiN3L0(1024,2048),psi(1024,2048)
COMPLEX*16 psi0(1024,2048),psi1(1024,2048)
complex acf,wf(1024,2048)
```

```
common t,omf,ef/com1/qmin,zmin,dq,dz,qc
c
IU = (0,1)
pi = 3.1415926535898d0
open(2,file='out.dat',status='unknown')
OPEN(11,FILE='acf.dat',STATUS='UNKNOWN')
OPEN(12,FILE='reacf.dat',STATUS='UNKNOWN')
OPEN(13,FILE='cf2N3L0.dat',STATUS='UNKNOWN')
c
OPEN(21,FILE='N3L0NaSOD.dat',status='old')
c
write(*,*) 'F<0.0158351>:'
read(*,*) ef
write(*,*) 'om<0.0569538>:'
read(*,*) omf
write(2,*) 'F =',real(ef)
write(2,*) 'omf =',real(omf)
c
write(*,*) 'Lz<1000>, Nz<2048>:'
read(*,*) Lz,nn(2)
write(*,*) 'z_min<-500>:'
read(*,*) zmin
Lq = Lz/2
nn(1) = nn(2)/2
write(*,*) 'tp<2356.437>, tmax<3000>, dt<.002>:'
read(*,*) tp,tmax,dt
write(*,*) 'rho_c<5>, r0<450>, V0abs<.03-.1>:'
read(*,*) qc,r0,v0a
write(*,*) 'nstep<1>:'
read(*,*) nst
dq = Lq/nn(1)
dz = Lz/nn(2)
qmin = 0.d0

A = 21.d0
```

```

al = 2.54920d0

write(2,*) 'Lz =',real(Lz),' zmin =',real(zmin)
write(2,*) 'Lrho =',real(Lq),' rho_min =',real(qmin)
write(2,*) 'Nz =',nn(2)
write(2,*) 'Nrho =',nn(1)
write(2,*) 'Tmax =',real(tmax),' dt =',real(dt)
write(2,*) 'rho_c =',real(qc),' r0 =',real(r0),
*          ' V0a =',real(v0a)

C
C   Initial wave packet
C
100 Read (21,*,END=150) i,j,psir(i,j)
    Go TO 100
150 close(21)

c
c   Initial wave packet and absorbing pot.
c
DO j=1,nn(2)
  z = zmin + dz/2 + (j-1)*dz
  DO i=1,nn(1)
    q = qmin + (i-1)*dq
    r = dsqrt(q*q+z*z)
    psiN3L0(i,j) = dsqrt(q/2)*psir(i,j)
    psi(i,j) = psiN3L0(i,j)
    if (r.gt.r0) vabs(i,j) = v0a*(r-r0)**2
  enddo
enddo

c
c   *****
c   The time-propagation
c   *****
c

t = 0.d0
it = 0

```

```

icount = 501
acf = (1.d0,0.d0)
write(11,*) real(t),acf
write(12,*) real(t),real(acf)
10 CONTINUE
it = it+1
t = it*dt

c -----
c Potential
c -----

do i=1,nn(1)
  vpot(i,1) = 0.d0
  vpot(i,nn(2)) = 0.d0
enddo
do j=1,nn(2)
  vpot(1,j) = 0.d0
  vpot(nn(1),j) = 0.d0
enddo
do i=2,nn(1)-1,nst
  q = qmin + (i-1)*dq
  do j=2,nn(2)-1,nst
    z = zmin + dz/2 + (j-1)*dz
    r = dsqrt(q*q+z*z)
    Vecp = -1.d0/r + A*dexp(-al*r)/r
    if (q.le.5d-7) then
      vpot(i,j) = 0.
    else
      if (t.lt.tp) then
        vpot(i,j) = Vecp - 1.d0/(8*q*q) - z*ef
*      *(cos(pi*(t-tp/2)/tp))**2*cos(omf*(t-tp/2)+phi)
      else
        vpot(i,j) = Vecp - 1.d0/(8*q*q)
      endif
    endif
  enddo
enddo

```

```

        endif
    enddo
enddo

c -----
c SOD
c -----
call HamFun(nn,psi,psi1)
do j=1,nn(2)
    do i=1,nn(1)
        if (it.eq.1) then
            psi1(i,j) = psi(i,j) - iu*dt*psi1(i,j)
*           - iu*dt*vpot(i,j)*psi(i,j)
        else
            psi1(i,j) = psi0(i,j) - 2*iu*dt*psi1(i,j)
*           - 2*iu*dt*vpot(i,j)*psi(i,j)
        endif
        psi0(i,j) = psi(i,j)
        psi(i,j) = psi1(i,j)
c       Absorbing pot.
        psi(i,j) = (1.d0-vabs(i,j)*dt)*psi(i,j)
    enddo
enddo

c
c Auto-correlation function
c

acf = 0.d0
do j=1,nn(2)
    z = zmin + dz/2 + (j-1)*dz
    do i=1,nn(1)
        q = qmin + (i-1)*dq
        r = dsqrt(q*q+z*z)
        acf = acf + psiN3L0(i,j)*psi(i,j)
    enddo
enddo

```

```

acf = acf*dq*dz*4*pi
c
if (dfloat(it)/10-it/10.eq.0.d0) then
  write(*,200) t,real(acf)
200  format(' t =',g10.4,' Re(acf) =',g10.4)
  write(11,*) real(t),acf
  write(12,*) real(t),real(acf)
  write(13,*) real(t),abs(acf)**2
endif
c
c Wave Function Frames
c
If (icount.le.530) then
  If (float(it)/50000-it/50000.eq.0.) then
    do j=1,nn(2)
      do i=1,nn(1)
        if (i.gt.1) then
          q = qmin + (i-1)*dq
          wf(i,j) = psi(i,j)/dsqrt(2*pi*q)
        endif
      enddo
    enddo
  enddo
  estimation:
  do j=1,nn(2)
    wf(1,j) = (4*wf(2,j)-wf(3,j))/3
  enddo
c
  do i=1,nn(1)
    do j=1,nn(2)
      write(icount+30,*) cabs(wf(i,j))**2
      write(icount,*) i,j,wf(i,j)
    enddo
  enddo
  icount = icount + 1
endif

```

```

endif
c
  if (t.lt.tmax) go to 10
c
c *****
c
c Norm
c
  spsi2 = 0.d0
  do j=1,nn(2)
    do i=1,nn(1)
      spsi2 = spsi2 + cdabs(psi(i,j))**2
    enddo
  enddo
  psinorm = dsqrt(spsi2*dq*dz*4*pi)
  write(*,*) 't=',real(t), ' |Psi|=',real(psinorm)
  write(*,*) 'F=',ef, ' Om=',omf
  write(2,*) 't=',real(t), ' |Psi|=',real(psinorm)
c
  stop
  end

SUBROUTINE HamFun(nn,f,hf)
c
c Calculates the operation T*f(q,z),
c T=.5*d^2/dt^2.
c
  implicit double precision (a-h,o-z)
  integer nn(2)
  complex*16 IU,f(1024,2048),Tf(1024,2048),Hf(1024,2048)
  complex*16 u(1024,2048),uq,uqq,fqq,fzz
  common /com1/qmin,zmin,dq,dz,qc
  IU = (0,1)
c
c The kinetic energy part

```

```

c
c   regularized function  $u(q,z) = f(q,z)/\sqrt{q}$ 
c
do j=1,nn(2)
  z = zmin + dz/2 + (j-1)*dz
  do i=2,nn(1)
    q = qmin + (i-1)*dq
    u(i,j) = f(i,j)/dsqrt(q)
  enddo
enddo
c   estimation:
do j=1,nn(2)
  u(1,j) = (4*u(2,j)-u(3,j))/3
enddo
c
c   derivatives
c
do j=2,nn(2)-1
  z = zmin + dz/2 + (j-1)*dz
  do i=2,nn(1)-1
    q = qmin + (i-1)*dq
    if (q.le.5d-7) then
      fqq = 0.d0
      fzz = 0.d0
    else
      if (q.le.qc) then
c   ---   calc. fqq in terms of derivatives of u
        if ((i.eq.2).or.(i.eq.nn(1)-1)) then
          uq = (u(i+1,j)-u(i-1,j))/(2*dq)
          uqq = (u(i+1,j)-2*u(i,j)+u(i-1,j))/(dq*dq)
        endif
        if ((i.eq.3).or.(i.eq.nn(1)-2)) then
          uq = (u(i-2,j)-8*u(i-1,j)+8*u(i+1,j)-u(i+2,j))/(12*dq)
          uqq = (-u(i-2,j)+16*u(i-1,j)-30*u(i,j)+
*           16*u(i+1,j)-u(i+2,j))/(12*dq*dq)

```



```

endif
if ((i.ge.4).and.(i.le.nn(1)-3)) then
  uq = (-u(i-3,j)+9*u(i-2,j)-45*u(i-1,j)+
*      45*u(i+1,j)-9*u(i+2,j)+u(i+3,j))/(60*dq)
  uqq = (2*u(i-3,j)-27*u(i-2,j)+270*u(i-1,j)-490*u(i,j)+
*      270*u(i+1,j)-27*u(i+2,j)+2*u(i+3,j))/(180*dq*dq)
endif
if ((i.ge.5).and.(i.le.nn(1)-4)) then
  uq = (u(i-4,j)/280-4*u(i-3,j)/105+u(i-2,j)/5-
*      4*u(i-1,j)/5+4*u(i+1,j)/5-u(i+2,j)/5+
*      4*u(i+3,j)/105-u(i+4,j)/280)/dq
  uqq = (-u(i-4,j)/560+8*u(i-3,j)/315-u(i-2,j)/5+
*      8*u(i-1,j)/5-205*u(i,j)/72+8*u(i+1,j)/5-
*      u(i+2,j)/5+8*u(i+3,j)/315-u(i+4,j)/560)/(dq*dq)
endif
sqrq = dsqrt(q)
fqq = -u(i,j)/(4*sqrq**3) + uq/sqrq + sqrq*uqq
c ---
else
c --- calc. fqq directly
if ((i.eq.2).or.(i.eq.nn(1)-1)) then
  fqq = (f(i+1,j)-2*f(i,j)+f(i-1,j))/(dq*dq)
endif
if ((i.eq.3).or.(i.eq.nn(1)-2)) then
  fqq = (-f(i-2,j)+16*f(i-1,j)-30*f(i,j)+
*      16*f(i+1,j)-f(i+2,j))/(12*dq*dq)
endif
if ((i.eq.4).or.(i.eq.nn(1)-3)) then
  fqq = (2*f(i-3,j)-27*f(i-2,j)+270*f(i-1,j)-490*f(i,j)+
*      270*f(i+1,j)-27*f(i+2,j)+2*f(i+3,j))/(180*dq*dq)
endif
if ((i.ge.5).and.(i.le.nn(1)-4)) then
  fqq = (-f(i-4,j)/560+8*f(i-3,j)/315-f(i-2,j)/5+
*      8*f(i-1,j)/5-205*f(i,j)/72+8*f(i+1,j)/5-
*      f(i+2,j)/5+8*f(i+3,j)/315-f(i+4,j)/560)/(dq*dq)

```

```

        endif
c    ---
        endif
c    ---  calc. fzz
        if ((j.eq.2).or.(j.eq.nn(2)-1)) then
            fzz = (f(i,j+1)-2*f(i,j)+f(i,j-1))/(dz*dz)
        endif
        if ((j.eq.3).or.(j.eq.nn(2)-2)) then
            fzz = (-f(i,j-2)+16*f(i,j-1)-30*f(i,j)+
*             16*f(i,j+1)-f(i,j+2))/(12*dz*dz)
        endif
        if ((j.eq.4).or.(j.eq.nn(2)-3)) then
            fzz = (2*f(i,j-3)-27*f(i,j-2)+270*f(i,j-1)-490*f(i,j)+
*             270*f(i,j+1)-27*f(i,j+2)+2*f(i,j+3))/(180*dz*dz)
        endif
        if ((j.ge.5).and.(j.le.nn(2)-4)) then
            fzz = (-f(i,j-4)/560+8*f(i,j-3)/315-f(i,j-2)/5+
*             8*f(i,j-1)/5-205*f(i,j)/72+8*f(i,j+1)/5-
*             f(i,j+2)/5+8*f(i,j+3)/315-f(i,j+4)/560)/(dz*dz)
        endif
c    ---
        endif
        Tf(i,j) = -(fqq + fzz)/2
        enddo
    enddo
c
    do i=1,nn(1)
        Hf(i,1) = 0.d0
        Hf(i,nn(2)) = 0.d0
    enddo
    do j=1,nn(2)
        Hf(1,j) = 0.d0
        Hf(nn(1),j) = 0.d0
    enddo
    do j=2,nn(2)-1

```

```
z = zmin + dz/2 + (j-1)*dz
do i=2,nn(1)-1
  q = qmin + (i-1)*dq
  if (q.le.5d-7) then
    Hf(i,j) = 0.
  else
    Hf(i,j) = Tf(i,j)
  endif
enddo
enddo
RETURN
END
```


Glava 9

Bibliografija

- [1] V.S. Keldysh, Ionization in the field of a strong electromagnetic wave, *Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **20**, 1307-1314 (1965).
- [2] F. H. Faisal, Multiple absorption of laser photons by atoms, *Journal of Physics B*, **6**, L89-L92 (1973).
- [3] H. R. Reiss, Effect of an intense electromagnetic-field on a weakly bound system, *Physical Review A*, **22**, 786-1813 (1980).
- [4] H. R. Reiss, Theoretical methods in quantum optics – S-matrix and Keldysh techniques for strong-field processes, *Progress in Quantum Electronics*, **16**, 1-71 (1992).
- [5] A. M. Perelomov, V. S. Popov and M. V. Terenteev, Ionization of atoms in an alternating field, *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **23**, 924-934 (1966).
- [6] M. V. Amosov, N. B. Delone and V. P. Krainov, Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field, *Soviet Physics \ddot{U} Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **64**, 1191-1194 (1986).
- [7] H. R. Reiss, Limits on tunneling theories of strong-field ionization, *Physical Review Letters*, **101**, 043002 (2008).
- [8] S. L. Chin, F. Yergeau and P. Lavigne, Tunnel ionisation of Xe in an ultra-intense CO₂ laser field (10^{14} W cm⁻²) with multiple charge creation, *Journal of Physics B*, **18**, L213-L215 (1985).

- [9] P. B. Corkum, N. H. Burnett and F. Brunel, Above-threshold ionization in the long-wavelength limit, *Physical Review Letters*, **62**, 1259-1262 (1989).
- [10] T. Brabec and F. Krausz, Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics, *Reviews of Modern Physics*, **72**, 545-591 (2000).
- [11] R. Moshhammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schrter, J. Ullrich, et al. Momentum distributions of Ne^{n+} ions created by an intense ultra short laser pulse, *Physical Review Letters*, **84**, 447-450 (2000).
- [12] A. Apolonski, A. Poppe, G. Tempea, Ch. Spielmann, Th. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hensch and F. Krausz, Controlling the phase evolution of few-cycle light pulses, *Physical Review Letters*, **85**, 740-743 (2000).
- [13] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther , P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, et al. Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses, *Nature*, **414**, 182-184 (2001).
- [14] P. Salières, B. Carre, L. Le Déeroff , F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, et al., Feynman's path-integral approach for intense-laser/atom interactions, *Science*, **292**, 402-405 (2001).
- [15] C. P. Hauri, R. B. Lopez-Martens, C. I. Blaga, K. D. Schultz, J. Cryan, R. Chirla, et al. Intense self-compressed, self-phase-stabilized few-cycle pulses at 2 μm from an optical filament, *Optics Letters*, **32**, 868-870 (2007).
- [16] K. D. Schultz, C. I. Blaga, R. Chirla, P. Colosimo, J. Cryan, A. M. March, et al. Strong-field physics with mid-infrared lasers, *Journal of Modern Optics*, **54**, 1075-1085 (2007).
- [17] B. Sheehy, J. D. D. Martin, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. Schafer, M. Gaarde, and K. C. Kulander, High harmonic generation at long wavelengths, *Physical Review Letters*, **83**, 5270-5273 (1999).
- [18] D. Bauer, D. B. Milošević and W. Becker, Strong-field approximation for intense-laser atom processes: The choice of gauge, *Physical Review A*, **72**, 023415 (2005).
- [19] P. Colosimo, G. Doumy, C. I. Blaga, J. Wheeler, C. Hauri, F. Catoire, et al. Scaling strong-field interactions towards the classical limit, *Nature Physics*, **4**, 386-389 (2008).

- [20] J. Tate, T. Auguste, H. G. Muller, P. Salieres, P. Agostini, and L. F. DiMauro, The scaling of wave packet dynamics in an intense mid-infrared field, *Physical Review Letters*, **98**, 013901 (2007).
- [21] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Audebert, Ph. Balcou, et al., Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation, *Science*, **292**, 1689-1692 (2001).
- [22] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, and P. Breger, et al., Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays, *Science*, **302**, 1540-1543 (2003).
- [23] J. Ullrich, R. Moshammer, A. Dorn, R. Dorner, L. Ph. H. Schmidt and H. Schmidt-Bocking, Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: Reaction-microscopes, *Reports on Progress in Physics*, **66**, 1463-1545 (2003).
- [24] C. I. Blaga, F. Catoire, P. Colosimo, G. G. Paulus, H. G. Muller, P. Agostini, et al., Strong-field photoionization revisited, *Nature Physics*, **5**, 335-338 (2009).
- [25] J. Caillat, A. Maquet, S. Haessler, B. Fabre, T. Ruchon, P. Salieres, Attosecond resolved electron release in two-color near-threshold photoionization of N₂, *Physical Review Letters*, **106**, 093002 (2011).
- [26] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Ppin, J. C. Kieffer, et al., Tomographic imaging of molecular orbitals, *Nature*, **432**, 867-870 (2004).
- [27] M. Meyer, J. T. Costello, S. Dusterer, W. B. Li, P. Radcliffe, and other references in the 2010 Topical Special Issue. Intense X-ray science: The first 5 years of FLASH, *Journal of Physics B*, **43** (19), 194006 (2010).
- [28] M. Schultze, M. Fiess, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman, M. Hofstetter, et al. Delay in photoemission, *Science*, **328**, 1658-1662 (2010).
- [29] A. Bunjac, D. B. Popović, N. S. Simonović, Resonant dynamic Stark Shift as a tool in strong-field quantum control: Calculation and application for selective multiphoton ionization of sodium, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19**, 19829 (2017).
- [30] A. Bunjac, D. B. Popović, N. S. Simonović, Wave-packet analysis of strong-field ionization of sodium in the quasistatic regime, *European Physics Journal D*, **70**, 116 (2016).

- [31] A. Bunjac, D. B. Popović, N. S. Simonović, Calculations of photoelectron momentum distributions and energy spectra at strong-field multiphoton ionization of sodium, *European Physics Journal D*, **71**, 208 (2017).
- [32] A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović, Calculation of the dynamic Stark shift for sodium and the application to resonantly enhanced multiphoton ionization, 7th Conference on Elementary Processes in Atomic Systems (CEPAS), 3rd Ÿ 6th September 2017 Pruhonice, Czech Republic, Programme and Book of Abstracts ISBN 978-80-87351-46-8, Eds. M. Tarana, R. Čurik, p. 13
- [33] A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović, Strong-field ionization of sodium in the quasistatic regime, Proc. 28th Summer School and International Symposium on the Physics of Ionized Gases (SPIG), Book of Contributed Papers, eds. D. Marić, A. R. Milosavljević, B. Obradović, and G. Poparić (Faculty of Physics and SASA, Belgrade, 2016), p. 20-23.
- [34] A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović, Photoionization of sodium by a few femtosecond laser pulse Ÿ time-dependent analysis, Proc. 28th Summer School and International Symposium on the Physics of Ionized Gases (SPIG), Book of Contributed Papers, eds. D. Marić, A. R. Milosavljević, B. Obradović, and G. Poparić (Faculty of Physics and SASA, Belgrade, 2016), p. 16-19.
- [35] A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović, Calculation of probabilities and photoelectron angular distribution for strong field ionization of sodium, 3rd General Meeting of XLIC (XUV/X-ray light and fast ions for ultrafast chemistry) COST Action CM1204, 2-4 November 2015 Debrecen, Hungary, Programme and Book of Abstracts, Ed. P. Badanko, p. 29
- [36] A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović, Calculations of ionization probabilities for sodium in strong laser fields, Proc. WG2 Expert Meeting on Biomolecules, COST Action CM1204, XLIC (XUV/X-ray Light and fast Ions for ultrafast Chemistry), 27-30 April, 2015, Fruška Gora, Book of Abstracts, eds. P. Bolognesi and A. Milosavljević, p. 59
- [37] A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović, Calculation of populations of energy levels of sodium interacting with an intense laser pulse and estimation of the resonant dynamic Stark shift, The Sixth International School and Conference

on Photonics (Photonica 2017), 28 August -1 September 2017 Belgrade, Book of abstracts, eds. M. Lekić and A. Krmpot (Institute of Physics, Belgrade, 2017) p. 178

- [38] J.Stark, *Sitzungsber K. Preuss. Akad. Wiss.*, 932 (1913).
- [39] Antonino Lo Surdo, *Rend. Reale Accad. Lincei* **22** (2), 664 (1913).
- [40] Antonio Garbasso, *Rend. Reale Accad. Lincei* **22** (2), 635 (1913).
- [41] Paul S. Epstein, *Ann. Phys.* **50**, 489 (1916).
- [42] K. Schwarzschild, *Sitzungsber K. Preuss. Akad. Wiss.*, 548 (1916).
- [43] E. Schrodenger, *Ann. Phys.*, **80**, 437 (1926).
- [44] Paul S. Epstein, *Phys. Rev.*, **28**, 695 (1926).
- [45] Ivar Waller, *Z. Phys.*, **38**, 635 (1926).
- [46] L.D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics* (Pergamon Press, Oxford, 1991), p.117,129,296
- [47] A. J. Thakkar and C. Lupinetti, *Atoms, Molecules and Clusters and Electric Fields: Theoretical Approaches to the Calculation of Electric Polarizability*, eds. George Maroulis (Imperial College Press, London, 2006), p.505.
- [48] Kamke E, *Differentialgleichungen: Losungsmethoden und Losungen*, Band. 1 *Gewohnliche Differentialgleichungen*, (Leipzig, 1959).
- [49] Nikishov A. I.,Ritus V.I. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **46**, 776 (1964) [*Sov. Phys. JETP* **19** 529 (1964)].
- [50] N B Delone, V P Krainov, AC Stark shift of atomic energy levels, *Physics - Uspekhi*, **42** (7) 669 - 687 (1999).
- [51] A.A. Radzig, B.M. Smirnov, Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions, *Springer Ser. Chern. Phys.*, Vol. 31, (Springer, Berlin-Heidelberg 1986).
- [52] N B Delone, V P Krainov, Atoms in Strong Light Fields, *Springer Series in Chemical Physics*, Vol. 28, (Berlin: Springer-Verlag, 1985).

- [53] M. Protopapas, C. H. Keitel and P. L. Knight, *Rep. Prog. Phys*, **60** 389 (1997).
- [54] B. M. Smirnov and M. I. Chibisov, *Sov. Phys. JETP*, **22** 585 (1966).
- [55] H. Hellmann, A New Approximation Method in the Problem of Many Electrons, *Journal of Chemical Physics*, **3**, 61 (1935).
- [56] G. A. Hart and P. L. Goodfriend, *J. Chem. Phys.*, **53**, 448 (1970).
- [57] W. H. E. Schwarz, *J. Chem. Phys*, **54**, 1842 (1971).
- [58] M. J. Seaton, *Mon. Not. R. Astron. Soc.*, **118**, 504 (1958).
- [59] A. Askar and A. S. Cakmak, Explicit integration method for the time-dependent Schrodinger equation for collision problems, *Journal of Chemical Physics*, **68**, 2794 (1978).
- [60] D. E. Potter, *Computational Physics*, (Wiley-Interscience, New York, 1973).
- [61] M. D. Feit and J. A. Fleck, Jr., Solution of the Schrödinger equation by a spectral method II: Vibrational energy levels of triatomic molecules, *Journal of Chemical Physics*, **78**, 301 (1983).
- [62] M. Z. Milošević and N. S. Simonović, Solution of the Calculations of rates for strong-field ionization of alkali-metal atoms in the quasistatic regime, *Phys. Rev. A*, **91**, 023424 (2015).
- [63] J. E. Sansonetti, Wavelengths, Transition Probabilities, and Energy Levels for the Spectra of Sodium (NaI–NaXI), *Journal of Physical and Chemical Reference Data*,
- [64] F. Grossmann, *Theoretical Femtosecond Physics*, (Springer, Berlin, 2008).
- [65] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1092 (1987).
- [66] J. Mitroy, M. S. Safronova, and C.W. Clark, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **43**, 202001 (2010).
- [67] N. A. Hart, J. Strohaber, A. A. Kolomenskii, G. G. Paulus, D. Bauer, and H. A. Schuessler, *Phys. Rev. A*, **93**, 063426 (2016).

- [68] N. A. Hart, J. Strohaber, G. Kaya, N. Kaya, A. A. Kolomenskii, and H. A. Schuessler, *Phys. Rev. A*, **89**, 053414 (2014).
- [69] M. Krug, T. Bayer, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S. S. Ivanov, and N. V. Vitanov, *New Journal of Physics*, **11**, 105051 (2009).
- [70] S. Lee, J. Lim, C. Y. Park, and J. Ahn, *Opt. Express*, **19**, 2266 (2011).
- [71] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, N. K. Rahman, Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms, *Phys. Rev. Lett.*, **42**, (17) 1127 - 1130 (1979).
- [72] Y. Gontier, M. Poirier, M. Trahin, Multiphoton absorptions above the ionisation threshold, *J. Phys. B: At. Mol. Phys*, **13**, 1381 - 1387 (1980).
- [73] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini, M. Clement, Multiphoton above -threshold ionisation of xenon at 0.53 and 1.06 μm , *J. Phys B: At. Mol. Phys.*, **15**, 1353 - 1369 (1982).
- [74] P. Kruit, J. Kimman, H. G. Muller, M. J. van der Wiel, Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532, and 355 nm, *Phys. Rev. A*, **28**, (1) 248 - 255 (1983).
- [75] H. G. Muller, A. Tip, M. J. van der Wiel, Ponderomotive force and AC Stark shift in multiphoton ionisation, *J. Phys. B: At. Mol. Phys*, **16**, L679 - L685 (1983).
- [76] Milton Abramowitz and Irene A. Stegun, Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs and Mathematical Tables *Dover Publications, Incorporated*, (1974).
- [77] William H. Press, Saul A. Teukolsky, William T. Vetterling and Brian P. Flannery, Numerical Recipes 3rd Edition: The Art of Scientific Computing 3 *Cambridge University Press New York, NY, USA*, (2007).
- [78] M. Schuricke, G. Zhu, J. Steinmann, K. Simeonidis, I. Ivanov, A. Kheifets, A. N. Grum-Grzhimailo, K. Bartschat, A. Dorn and J. Ullrich, Strong-field ionization of lithium, *Physical Review A*, **83**, 023413 (2011).

Glava 10

Biografija autora

Andrej Bunjac rođen je 03.12.1988. u Beogradu gde je završio osnovnu školu i XIII beogradsku gimnaziju. Upisao je osnovne studije školske 2007/2008 godine na Fizičkom fakultetu Univerziteta u Beogradu, na smeru "primenjena i kompjuterska fizika", a školske 2008/2009 promenio smer na "teorijska i eksperimentalna fizika". Osnovne studije završio je školske 2010/2011 godine sa prosečnom ocenom 9.43. Upisao je master studije 2011/2012 godine i završio ih sa prosekom 10.0. Master rad pod naslovom "Moderna teorija polarizacije dielektrika" odbranio je sa ocenom 10 pod mentorstvom dr Tatjane Vuković. Doktorske studije na Fizičkom fakultetu Univerziteta u Beogradu upisao je školske 2012/2013 godine na smeru "kvantna, matematička i nanofizika", pod mentorstvom dr Tatjane Vuković, a 2014/2015 promenio smer na "fizika atoma i molekula" pod mentorstvom dr Nenada Simonovića.

Od novembra 2014. godine zaposlen je u Laboratoriji za atomske sudarne procese Instituta za fiziku u Beogradu, a iste godine počeo je da predaje kao nastavnik matematike u internacionalnim obrazovnim sistemima.

Živi i radi u Beogradu.

Прилог 1.

Изјава о ауторству

Потписани-а ANDREJ BUNJAC

број уписа D5/2012

Изјављујем

да је докторска дисертација под насловом

IZRAČUNAVANJE NASELJENOSTI ATOMSKIH STANJA, VAŽNE RASPODELE I ENERGIJSKOG SPECTRA
FOTOLEKTRONA OD ATOMSKIH SISTEMA U JAKIM LASERSKIM REGIMIMA PRINENOM
VREMENSKI ZAVISNIM METODA

- резултат сопственог истраживачког рада,
- да предложена дисертација у целини ни у деловима није била предложена за добијање било које дипломе према студијским програмима других високошколских установа,
- да су резултати коректно наведени и
- да нисам кршио/ла ауторска права и користио интелектуалну својину других лица.

Потпис докторанда

У Београду, 12. 06. 2018.

Bunjac Andrey

Прилог 2.

**Изјава о истоветности штампане и електронске
верзије докторског рада**

Име и презиме аутора Andrej Vučajac

Број уписа DS/2012

Студијски програм FIZIKA ATOMA I MOLEKULA

Наслов рада IZRAČUNAVANJE NASIĆENOSTI ATOMSKIH STANJA, UČAONE RASPODELE I ENERGIJSKOG SPECTRA FOTOELEKTROMA KOD ATOMSKIH SISTEMA U JAKIM LASERSKIM POJIMAJ PRIMENOM VREMENSKI ZAVISNIH METODA.

Ментор DR NENAD SIMONOVIC

Потписани Andrej Vučajac

изјављујем да је штампана верзија мог докторског рада истоветна електронској верзији коју сам предао/ла за објављивање на порталу **Дигиталног репозиторијума Универзитета у Београду**.

Дозвољавам да се објаве моји лични подаци везани за добијање академског звања доктора наука, као што су име и презиме, година и место рођења и датум одбране рада.

Ови лични подаци могу се објавити на мрежним страницама дигиталне библиотеке, у електронском каталогу и у публикацијама Универзитета у Београду.

Потпис докторанда

у Београду, 12.06.2018.

Vučajac Andrej

Прилог 3.

Изјава о коришћењу

Овлашћујем Универзитетску библиотеку „Светозар Марковић“ да у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду унесе моју докторску дисертацију под насловом:

PRACUNAVANJE NASELJENOSTI ATOMSKIH STANJA, UČAONOG RASPODELE I ENERGIJSKOG SPEKTRA FOTOELEKTRONA KOD ATOMSKIH SISTEMA U JAKIM LASERSKIM POLJIMA PRIMENOM VREMENSKI ZAVISNIH METODA

која је моје ауторско дело.

Дисертацију са свим прилозима предао/ла сам у електронском формату погодном за трајно архивирање.

Моју докторску дисертацију похрањену у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду могу да користе сви који поштују одредбе садржане у одабраном типу лиценце Креативне заједнице (Creative Commons) за коју сам се одлучио/ла.

1. Ауторство
2. Ауторство - некомерцијално
3. Ауторство – некомерцијално – без прераде
4. Ауторство – некомерцијално – делити под истим условима
5. Ауторство – без прераде
6. Ауторство – делити под истим условима

(Молимо да заокружите само једну од шест понуђених лиценци, кратак опис лиценци дат је на полеђини листа).

У Београду, 12. 06. 2018.

Потпис докторанда

Ђуџе Андрић