

Научном већу Института за физику у Београду

Предлог и образложење за Студентску награду Института за физику у Београду

Кандидат: др Андреј Буњац

За Студентску награду Института за најбољу докторску дисертацију урађену у Институту и одбраћену током претходне 2018. године предлажемо др Андреја Буњаца.

Образложење

Др Андреј Буњац је завршио основне академске студије на Физичком факултету Универзитета у Београду 2011. године а мастер студије 2012, на смеру Теоријска и експериментална физика са просецима 9,43 и 9,67. Докторске студије је уписао 2012. године на Физичком факултету Универзитета у Београду – смер Физика атома и молекула и завршио са средњом оценом 10,00. Докторску дисертацију под насловом *„Израчунавање насељености атомских стања, угаоне расподеле и енергијског спектра фотоелектрона код атомских система у јаким ласерским пољима применом временски зависних метода”* одбранио је на истом факултету дана 22. јуна 2018 под менторством др Ненада Симоновића. Андреј Буњац је био у радном односу на Физичком факултету Универзитета у Београду од новембра 2012. до новембра 2014. године, а од новембра 2014. године је запослен у Институту за физику у Београду, Универзитет у Београду, у Лабораторији за физику атомских сударних процеса и ангажован је на пројекту основних истраживања ОИ 171020 *„Физика судара и фотопроцеса у атомским, (био)молекулским и нанодимензионим системима“*.

Др Андреј Буњац је радио своју докторску дисертацију у области атомске, молекулске и оптичке физике, бавећи се теоријским истраживањима процеса при интеракцији јаког ласерског зрачења са атомским системима. Главни метод који је у тим истраживањима коришћен је нумеричко решавање временски зависне Шредингерове једначине за атом у електромагнетном пољу за које је развијен оригинални компјутерски код. Др Буњац је успешно извршио паралелизацију кода чинећи га на тај начин значајно ефикаснијим. Фокус истраживања је била фотојонизација атома алкалних метала кратким (фемтосекундним) ласерским импулсима великог интензитета у оквиру два основна режима – мултифотонском режиму и у режиму тунелирања. Најзначајнији резултати су вредности за Штарков помак и стопу јонизације атома натријума у квазистатичком пољу, вредности за резонантни динамички Штарков помак побуђених стања овог атома у јаком ласерском пољу у функцији јачине поља те енергијски спектри и угаоне расподеле фотоелектрона при фотојонизацији атома литијума и натријума у јаким ласерским пољима таласних дужина 785 nm и 760 nm, респективно.

Др Андреј Буњац је до сада објавио 3 рада у међународним часописима, више саопштења на међународним и националним конференцијама, укључујући и предавања по позиву на међународним скуповима. Радови су објављени у следећим часописима:

- 1 рад у *Physical Chemistry Chemical Physics* (импакт фактор = 4.493, 2017 снип = 1.089)
- 2 рада у *Eur. Phys. J. D* (2016, 2017) (импакт фактор = 1.228, 2016 снип = 0.784, 2017 снип = 0.716)

Укупан снип за све радове је 2.589, а подељен са бројем аутора по раду је 0.863. Укупан број цитата без аутоцитата је 2 према Web of Knowledge [приступљено 14.03.2019] са h-index=1, а према бази SCOPUS укупан број цитата без аутоцитата је 1 [приступљено 14.03.2019].

Посебно вредан резултат представља позив и одржано предавање на престижној међународној конференцији из области атомских сударних процеса 7 CEPAS 2017 Conference on Elementary Processes in Atomic Systems, 3rd – 6th September 2017, Průhonice, Czech Republic. Ту је одржао предавање под насловом *Calculation of the dynamic Stark shift for sodium and the application to resonantly enhanced multiphoton ionization*. Др Буњац је такође добио позив да и на предстојећој међународној конференцији *Photonica 2019* одржи предавање на основу резултата из докторске дисертације.

Др Андреј Буњац је започео своју широку међународну сарадњу кроз COST акције, прво у оквиру акције CM1204 “XUV/X-ray light and fast ions for ultrafast chemistry (XLIC)” од 2013 до 2017, где је био члан организационог комитета Експертског скупа радне групе 2 ове акције, који је одржан 2015. године на Фрушкој Гори. Тренутно учествује у акцији CA17126 “Towards understanding and modelling intense electronic excitation”, где је номинован за заменика члана у Управном одбору акције (Management Committee substitute). Такође је учествовао на билатералним пројектима Србија – Република Српска (2015), Србија-Немачка (2015) и Србија-Аустрија (2016-2017). Недавно је укључен и у пројекат међународне сарадње између Института за нуклеарна истраживања у Дубни (JINR, Русија) и Србије.

Закључак

На основу свих досадашњих постигнутих резултата кандидата, залагању и ефикасности при изради докторске дисертације, обима и квалитета резултата докторске дисертације, као и на основу чињенице да је кандидат одржао (и позван да одржи) предавања на националним и међународним конференцијама, велико нам је задовољство да **предложимо Комисији за доделу награда да овогодишњу Студентску награду Института за физику у Београду додели др Андреју Буњцу.**

У Дубни и Београду,
14. март 2019.

Др Ненад Симоновић
Научни саветник

Др Братислав Маринковић
Научни саветник

Андреј Буњац - Стручна биографија

Др Андреј Буњац рођен је у Београду, општина Савски Венац, Република Србија, 03. децембра 1988. године. Основну школу и гимназију завршио је у Београду. Основне студије уписао је 2007. године на Физичком факултету, Универзитет у Београду, на смеру за Применјену и компјутерску физику, а 2009 године смер је променио на Теоријску и експерименталну физику. Основне студије завршио је 2011. године, а 2012. године и мастер студије са дипломским радом под називом "Модерна теорија поларизације диелектрика", ментор Др Татјана Вуковић. Докторске студије уписао је на Физичком факултету, Универзитет у Београду, школске 2012 / 13. године, ужа научна област: Квантна и нанофизика, а 2014 смер је променио на Физика атома и молекула'. На Институту за физику у Београду запослен је од новембра 2014 године на пројекту ОИ171020 "Физика судара и фотопроцеса у атомским (био)молекулским и нанодимензионим системима". Буњац Андреј је дисертацију под називом "Израчунавање насељености атомских стања, угоане распоеделе и енергијског спектра фотоелектрона код атомских система у јаким ласерским пољима применом временски зависних метода" одбранио у Јуну 2018. године на Физичком факултету Универзитета у Београду. Ментор дисертације је Др Ненад Симоновић.

Др Андреј Буњац се бави теоријским истраживањем интеракције атомских система са јаким ласерским пољима применом теоријских модела и нумеричких симулација као и развојем нумеричких модела за примену на анализу ексцитационих и јонизационих процеса.

До сада има објављена 3 рада у међународним часописима, 1 категорије M21 и 2 категорије M23 као и шест учешћа на конференцијама. Према сервису Google Scholar Др Андреј Буњац има 2 цитата без аутоцитата. (фебруар 2019). За време и након докторских студија Андреј Буњац је учествовао у две COST акције. Прва акција је COST CM1204 XLIC која се бави ултрабрзим хемијским процесима, а друга је COST CA17126 TUMIEE која се бави моделирањем интензивних електронских ексцитација. У оквиру XLIC акције, учествовао је у локалном организацијом комитету приликом организације састанака радне групе 2015. године на Фрушкој гори, а поред тога је имао саопштења на неколицини конференција организованих током ове акције. За акцију TUMIEE, Андреј је заменик у менаџмент комитету и учествовао је на kick-off састанку у Бриселу. Поред акција Андреј је учествовао на билатералним пројектима са Аустријом, Немачком и Републиком Српском. Током студија, Андреј је водио пројекте ученика из Центра за таленте и остварио сарадњу са Центром за промоцију науке на научно-културно-уметничким пројектима.

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 zavisani 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 $\xi = const$ i $\eta = const$ 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 parabolčkim 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 parabolčkim 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 paraboličkim 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 paraboličkim 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 Lifshitzta [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, izdvojicemo 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 ponderomotornog 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 operatorom.

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

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

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

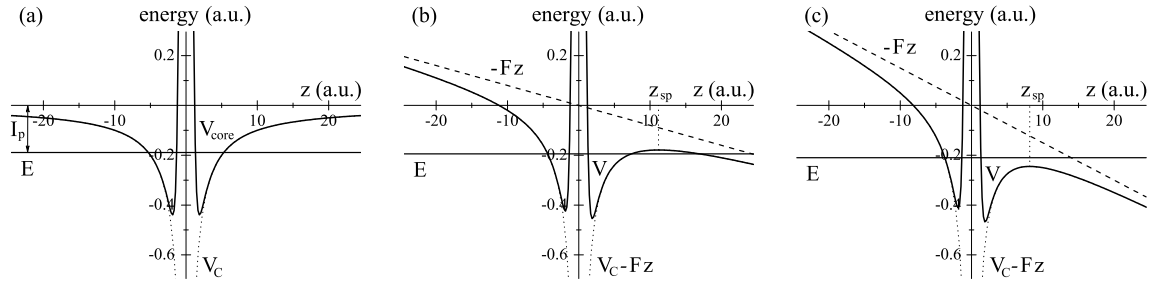
Kao što je rečeno u prethodnom odeljku, interakciju laserskog zračenja energija u blizini vidljivog spektra sa atomima alkalnih metala možemo dobro opisati kroz dinamiku valentnog elektrona posmatrajući te atome kao jednoelektronske sisteme. Dobro slaganje energijskog spektra sa dostupnim eksperimentalnim 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 grafcima.

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.

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

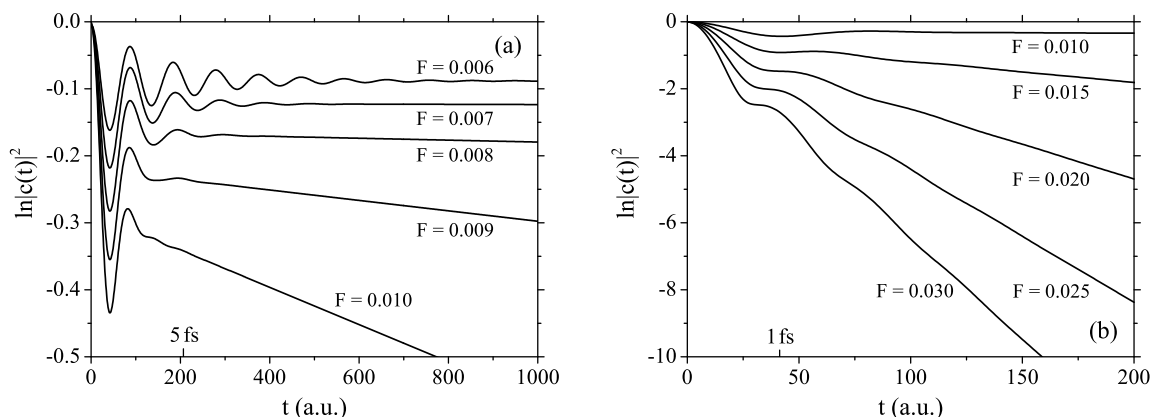
Kako ovaj transform može biti i kompleksan, položaje svojstvenih energija dobijamo računanjem njegovog kvadrata $|FT[c(t)]|^2$ ("power spectrum"). Rezonance se pojavljuju kao (približni) Lorencijanski profili centrirani oko rezonantnih energija E sa širinama Γ . Ako u spektru postoji samo jedna rezonanca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



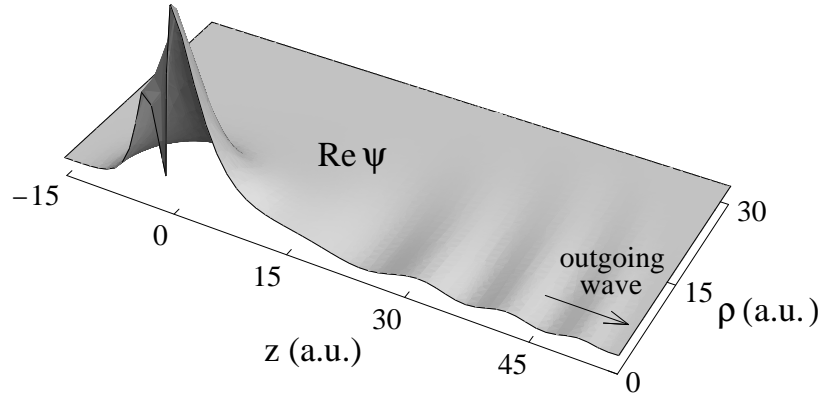
Slika 5.2: Funkcije $\ln|c(t)|^2$ računane za atom natrijuma na različitim jačinama spoljašnjeg statičkog električnog polja F , koje odgovaraju: (a) tunel-režimu i (b) preko-barijernom režimu. Inicijalno stanje $\psi(0)$ korišćeno u računanju autokorelacione funkcije $c(t) = \langle \psi(0) | \psi(t)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

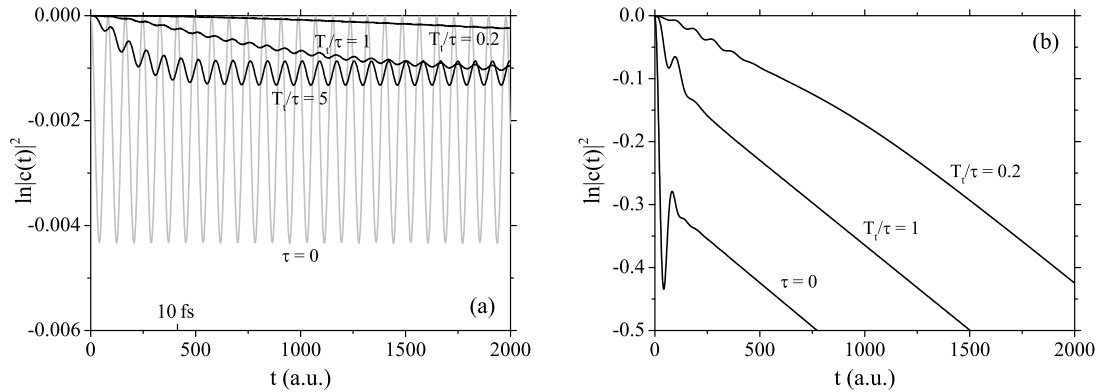
$$F(t) = F_{stat}(1 - \exp[-t/\tau]), \quad (5.13)$$

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).

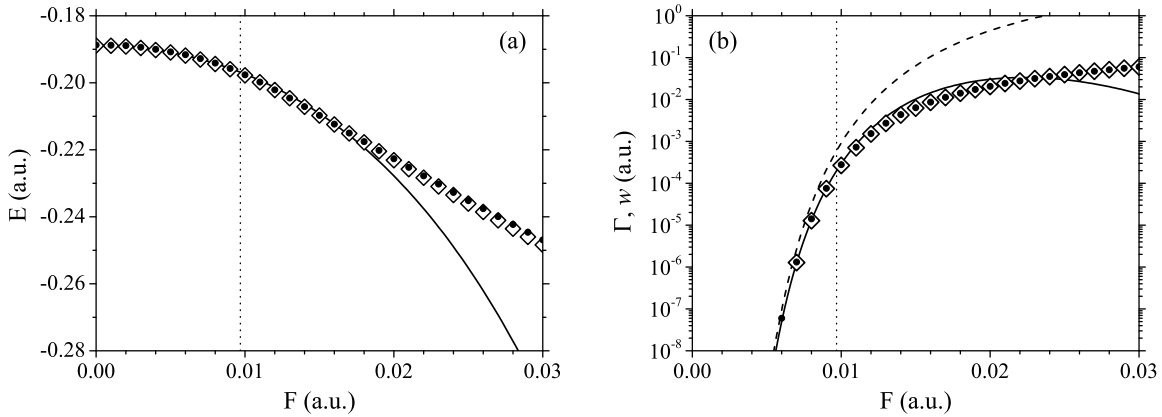


Slika 5.4: Funkcije $\ln|c(t)|^2$ za natrijum u postepeno uključenom električnom polju: (a) $F_{\text{stat}} = 0.001$ a.u. ($= 5.14$ MV/cm, $T_t = 614.6$ a.u.) i (b) $F_{\text{stat}} = 0.01$ a.u. ($= 51.4$ MV/cm, $T_t = 61.46$ a.u.) za različite vrednosti vremenske konstante τ .

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 ($T_p = 4T_c$).

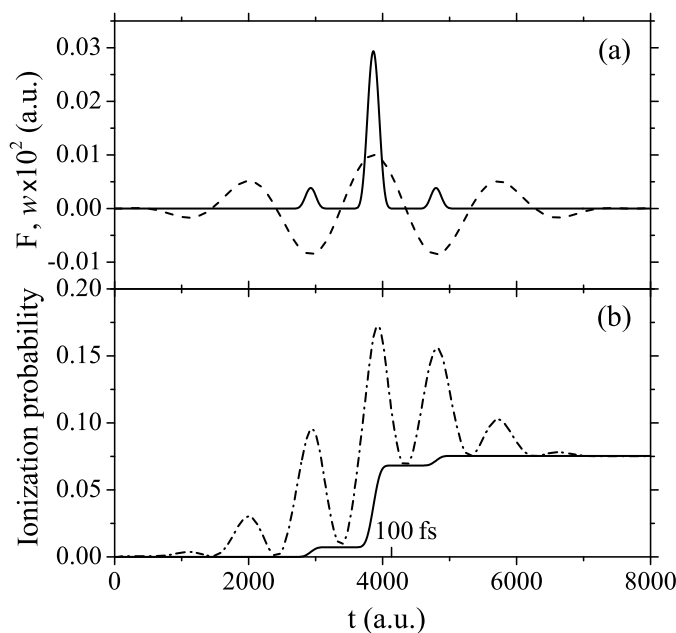
Kvazistatičke stope jonizacije $w(F(t))$ za puls (5.14) dobijamo korigovanom ADK formulom koja se dobija zamenom $I_p \rightarrow I_p - \Delta E(F)$ (gde se $\Delta E(F)$ dobija iz razvoja (5.6)) u ADK formulu (3.17). Nakon toga, odgovorajuću kvazistatičku verovatnoću jonizacije dobijamo zamenom u izraz

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

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.

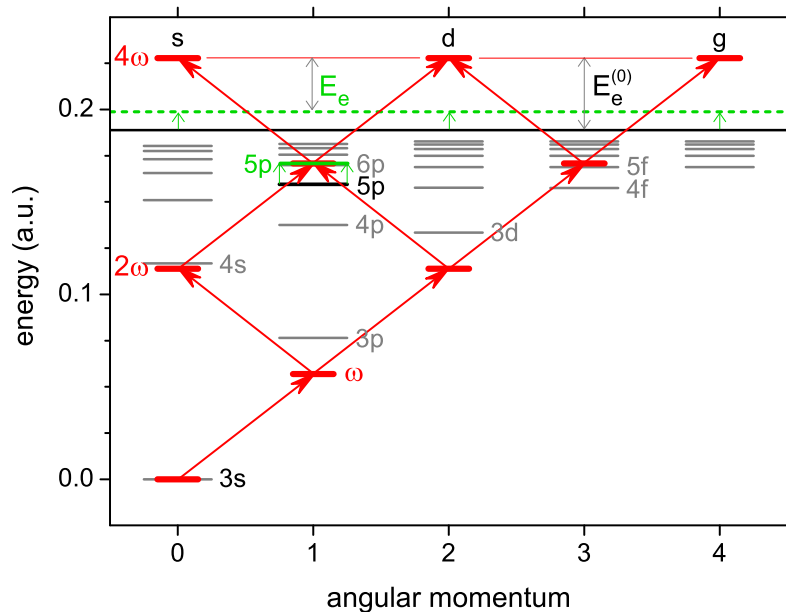
6.2 Verovatnoće ekscitacije i jonizacije

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 strikno 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

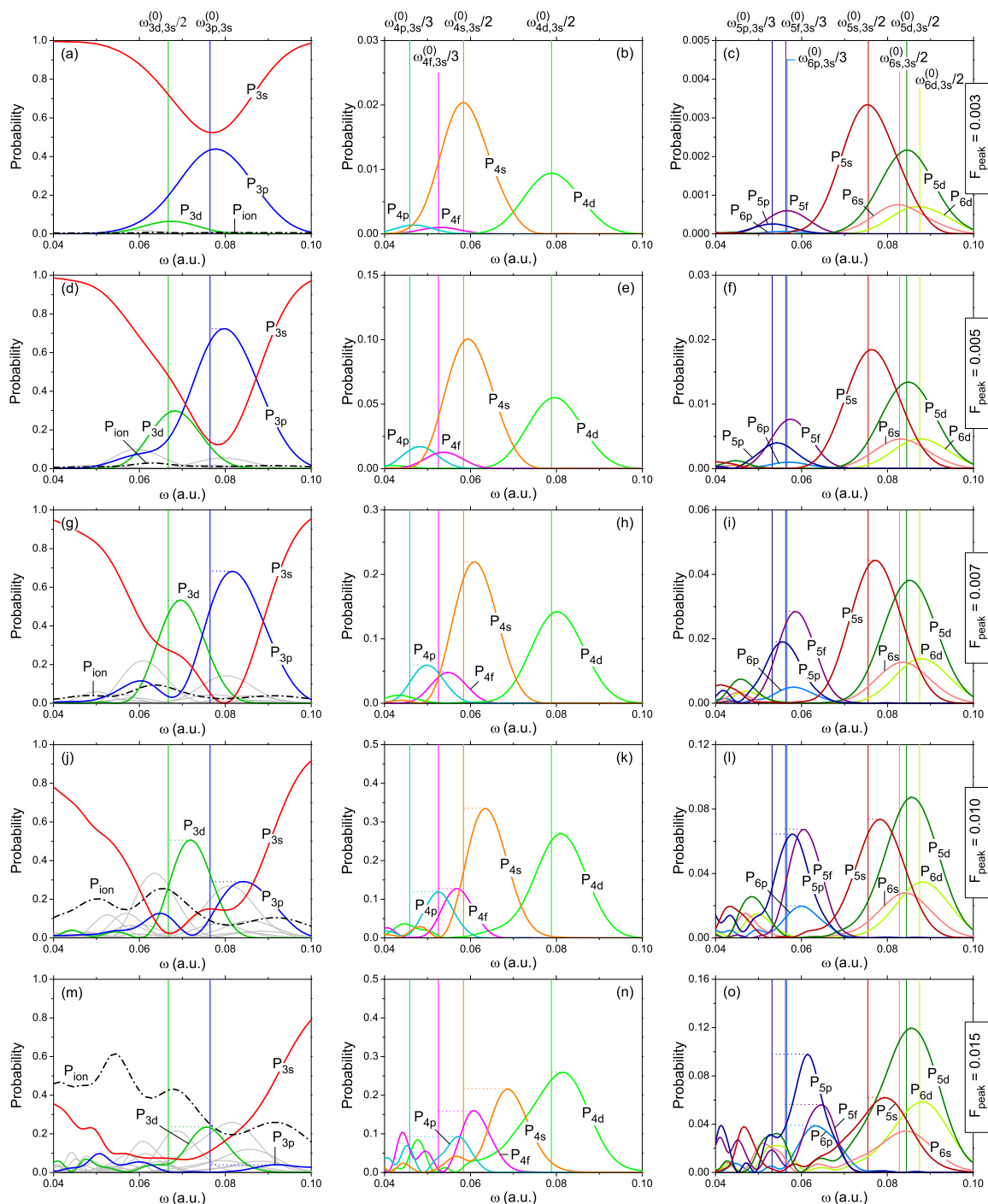
6.5.1 Verovatnoće prelaza i rezonantni dinamički Štarkov pomak za stanja sa $n \leq 6$ - metod propagacije talasnog paketa

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.)

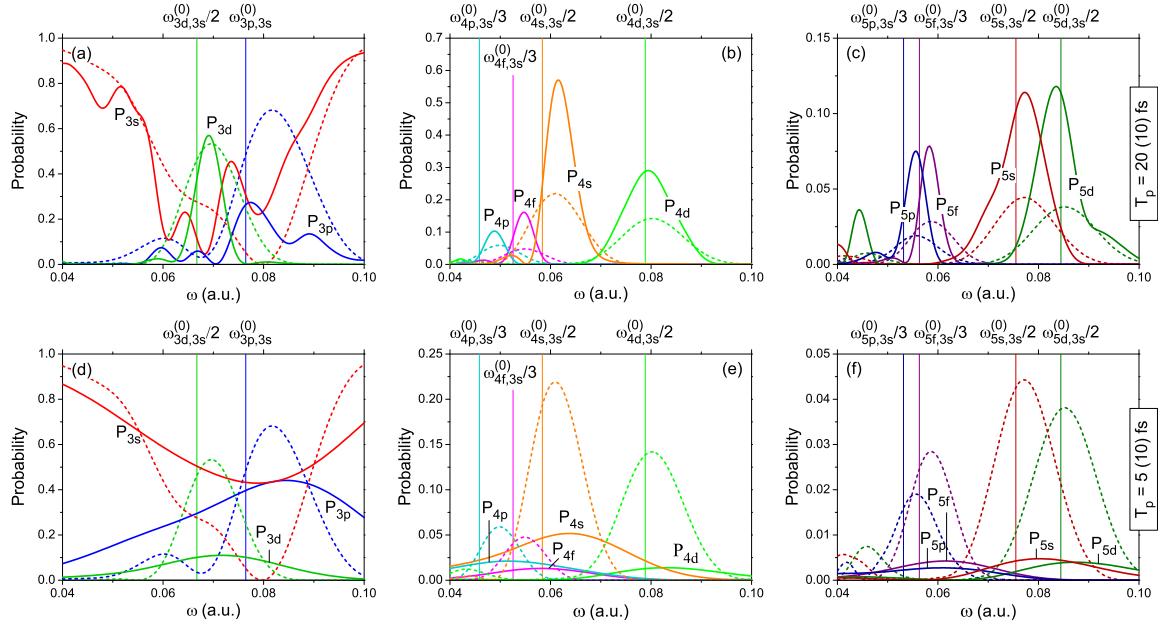
Na slici 6.2 su predstavljene verovatnoće P_{nl} prelaza iz osnovnog u pobuđena stanja sa kvantnim brojevima $n = 3$ ($3s, 3p$ i $3d$), $n = 4$ ($4s, 4p, 4d$ i $4f$), $n = 5$ ($5s, 5p, 5d$ i $5f$) i $n = 6$ ($6s, 6p$ i $6d$) za vrednosti parametara lasera $T_p = 10$ fs, $F_{peak} = 0.003, 0.005, 0.007, 0.010$ 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} .

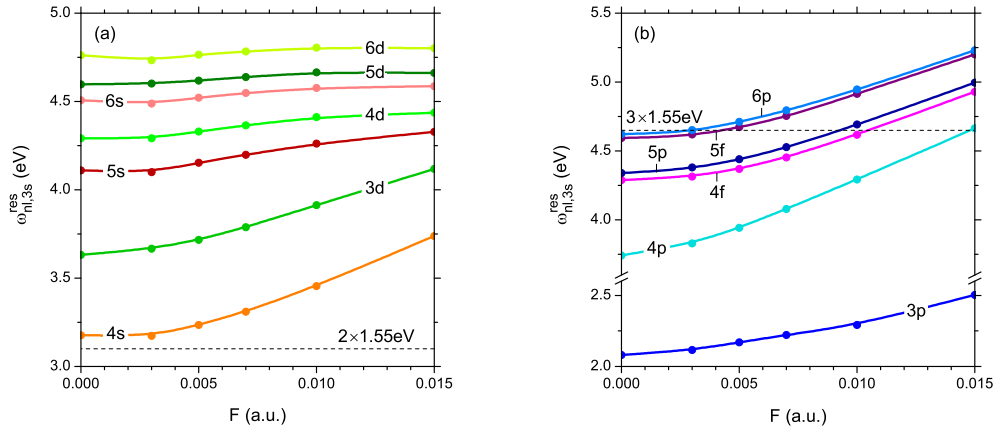
Najveći broj proračuna urađen je za pulseve dužine 10 fs što je procenjeno kao optimalna dužina zbog balansa između dobijene širine gausijanskih profila u raspodeli i numeričke efikasnosti. Rezultati (energijski razmaci $\omega_{nl,3s}^{res}(F)$ za $n \leq 6$ računati za 6 vrednosti jačine polja) su 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

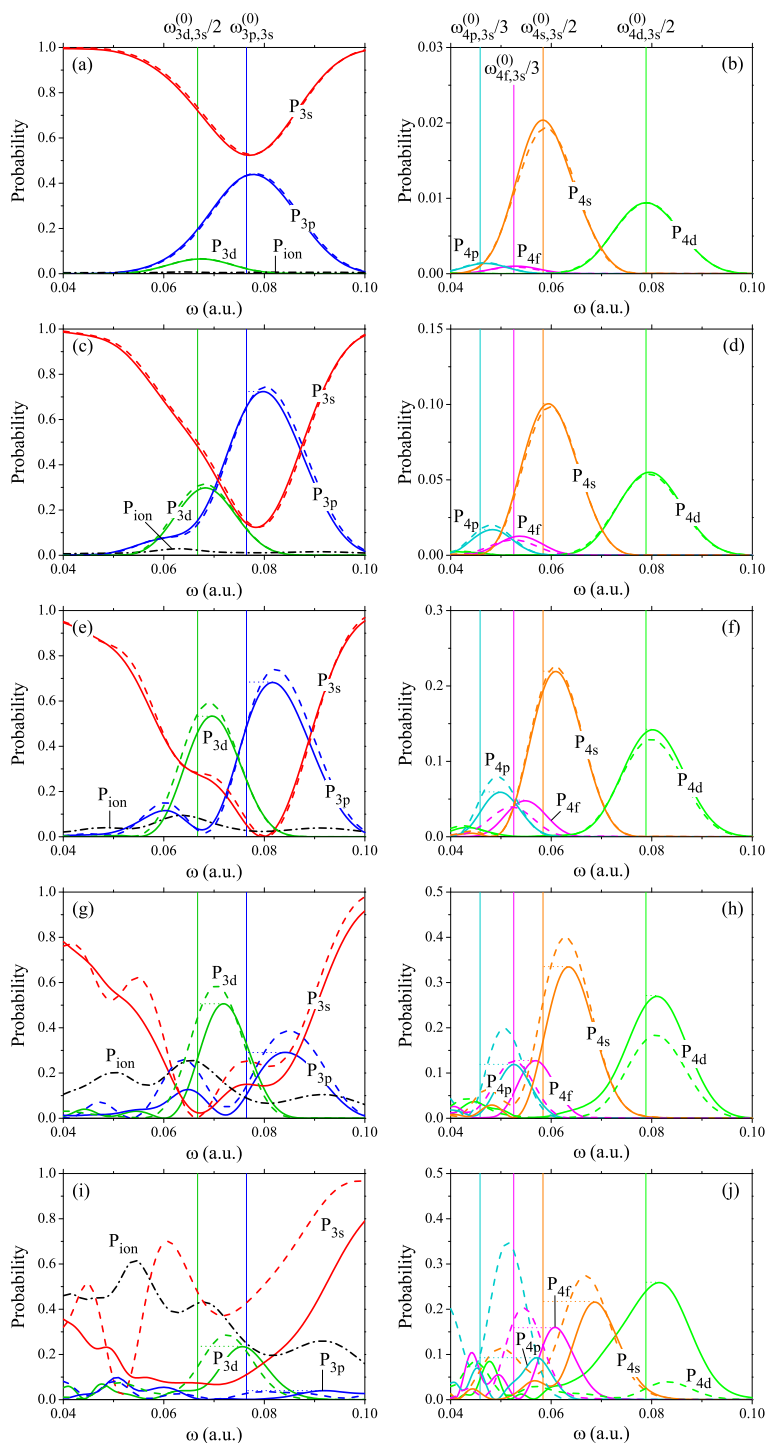
$$c_{nl}(0) = \delta_{n,3} \delta_{l,0}, \quad (6.23)$$

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

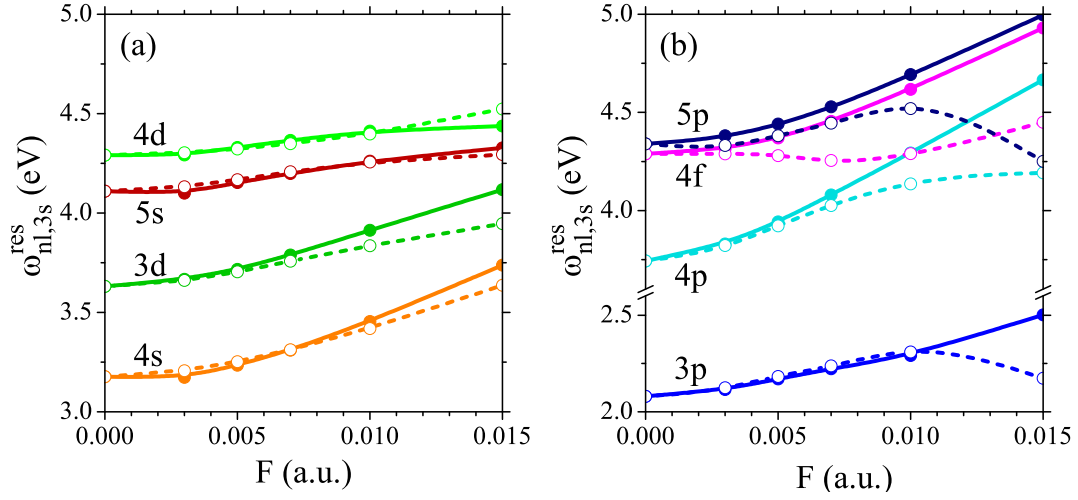
Za rešavanje ovog problema neophodno je prvo izračunati diplone matrične elemente $\langle \varphi_{nl} | z | \varphi_{n'l'} \rangle$. Ovo radimo numerički koristeći se numerički izračunatim svojstvenim stanjima neperturbovanog atoma (kod za računanje je dat u dodatku C).

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 bazu 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. ($I_{peak} = 3.16 \times 10^{11}$ W/cm²), $F_{peak} = 0.005$ a.u. ($I_{peak} = 8.77 \times 10^{11}$ W/cm²), $F_{peak} = 0.007$ a.u. ($I_{peak} = 1.72 \times 10^{12}$ W/cm²) 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

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

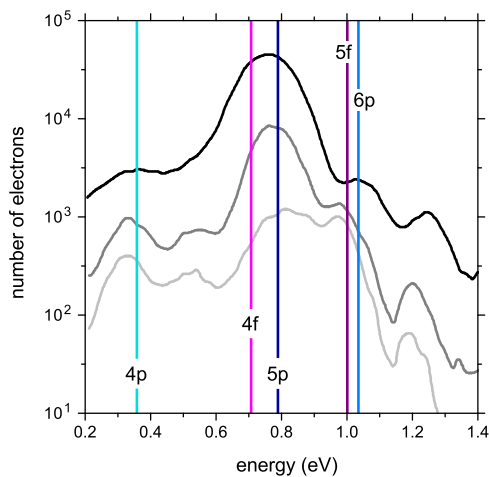
Koristeći se interpolacionim krivama objašnjenim na kraju prethodnog odeljka i jednačinom (6.25) analizirani su podaci dobijeni u nedavno objavljenom merenju prinosa fotoelektrona za natrijum pri polju od 800 nm [67] (aparatura ovog eksperimenta detaljno je opisana u referenci [68]). Na slici 6.4 možemo 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. Ovaj 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

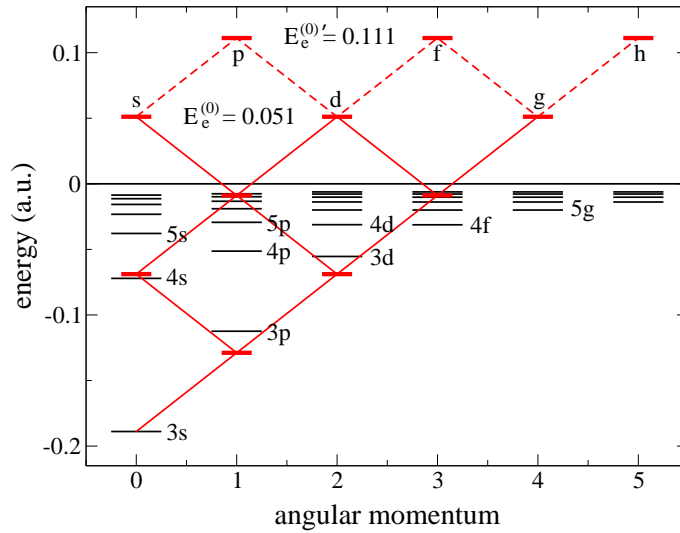
jonizacije (REMPI - resonantly enhanced multiphoton ionization). Naime, ako se m -fotonska rezonanca između osnovnog stanja $|\phi_0\rangle$ i stanja $|\phi_i\rangle$ realizuje pri intenzitetu polja F_i koja je nakon toga ispraćena sa $(s + 1)$ -fotonskom jonizacijom u kontinuum (gde je s broj fotona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

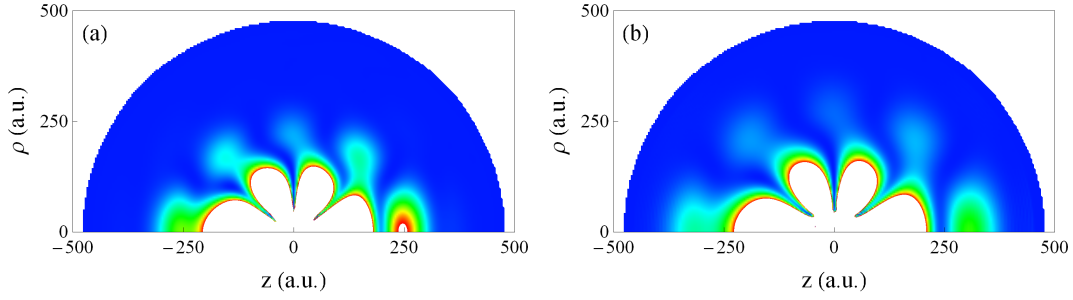
Za poređenje sa eksperimentalnim rezultatima, često je potrebno dati zavisnost prinosa elektrona (koji je proporcionalan sa verovatnoćom nalaženja u stanjima kontinuuma) od energije. Da bismo od ovde izračunali impulsne raspodele to i dobili, potrebno je da se u koracima od δk (koji predstavljaju rezoluciju 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

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



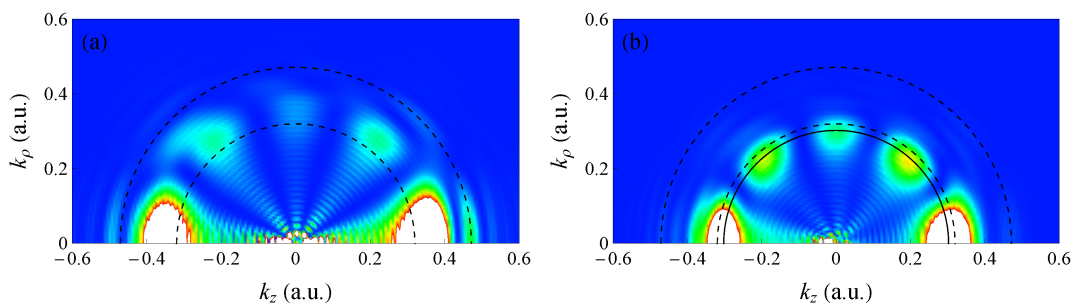
Slika 7.2: Raspodela verovatnoće $|\psi(\vec{r}, t)|^2$ aktivnog elektrona natrijuma ozračenog sa laserskim pulsem trajanja 10 fs, oblika (7.13) sa $\omega = 0.06$ a.u. i $F = 0.007$ a.u. u trenutku kada je (a) $t = 1000$ a.u. i (b) $t = 1200$ a.u. Izlazni talas (sa pet maksimuma) određuje angularnu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

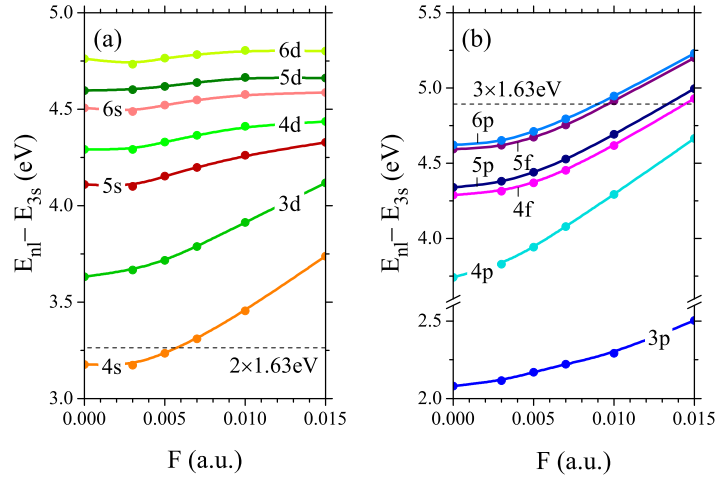
7.4.2 REMPI kod natrijuma pri pulsu od 760 nm

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.

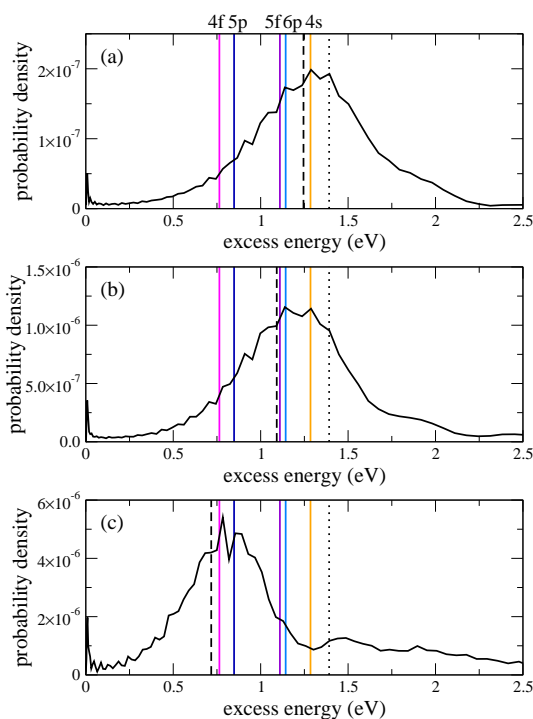


Slika 7.4: Zavisnost relativnih energija pobuđenih stanja E_{nl} u odnosu na energiju osnovnog stanja E_{3s} od jačine polja atoma natrijuma u lasersom polju frekvencije $\omega(F)$ pod K -fotonskim uslovom rezonance [$E_{nl}(\omega, F) - E_{3s}(\omega, F) = K\omega$]: (a) $K = 2$, (b) $K = 1$ (za $nl = 3p$) 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.

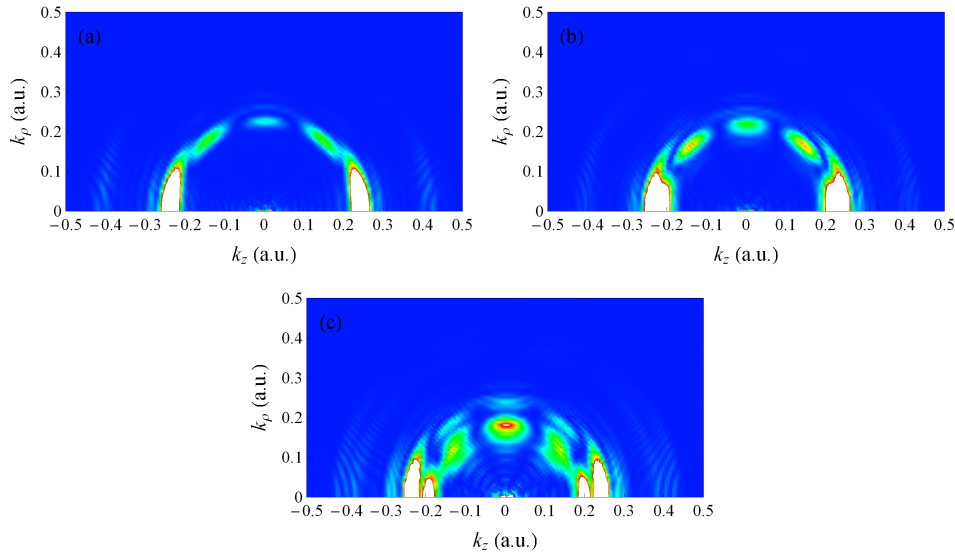


Slika 7.5: Izračunat fotoelektronski spektar (verovatnoća u zavisnosti od energije na $t = 1000$ a.u. – crna linija) atoma natrijuma koji interaguje sa laserskim pulsem trajanja 10fs (7.13) sa $\omega = 0.06$ a.u. (760nm talasne dužine) pri tri vrednosti maksimalne jačine polja: (a) $F_{peak} = 0.007$ 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

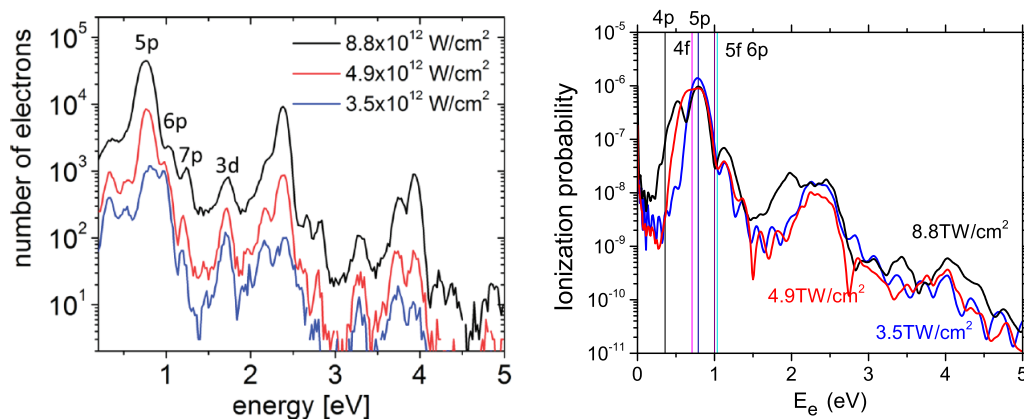
Koristeći metodologiju opisanu u ovom odeljku, vratili smo se na analizu procesa opisanog u odeljku 6.5.3 kako bismo ovaj metod uporedili sa dostupnim eksperimentalnim rezultatima [67] i sa druge strane kako bismo potvrdili svoje rezultate drugačijim metodom.

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 pulse 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.

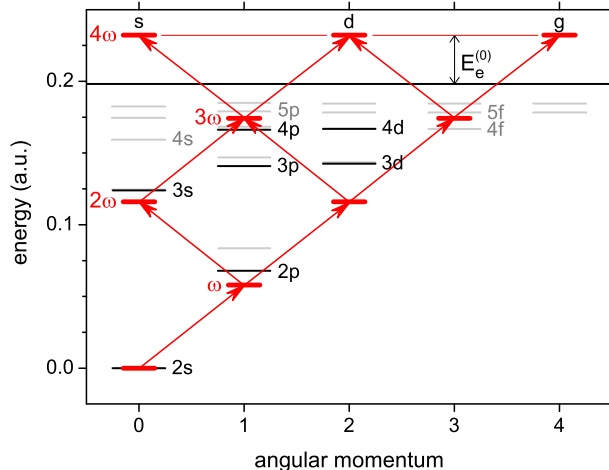
Pomenuti autori su merili impulsne raspodele i energijski spektar fotoelektrona atoma litijuma pod dejstvom laserskog pulsa talasne dužine 785 nm (što odgovara frekvenciji od $\omega = 0.058042$ a.u.) i trajanja 30 fs u opsegu intenziteta lasera od $I = 4 \times 10^{11} \text{W/cm}^2$ (što odgovara maksimalnoj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

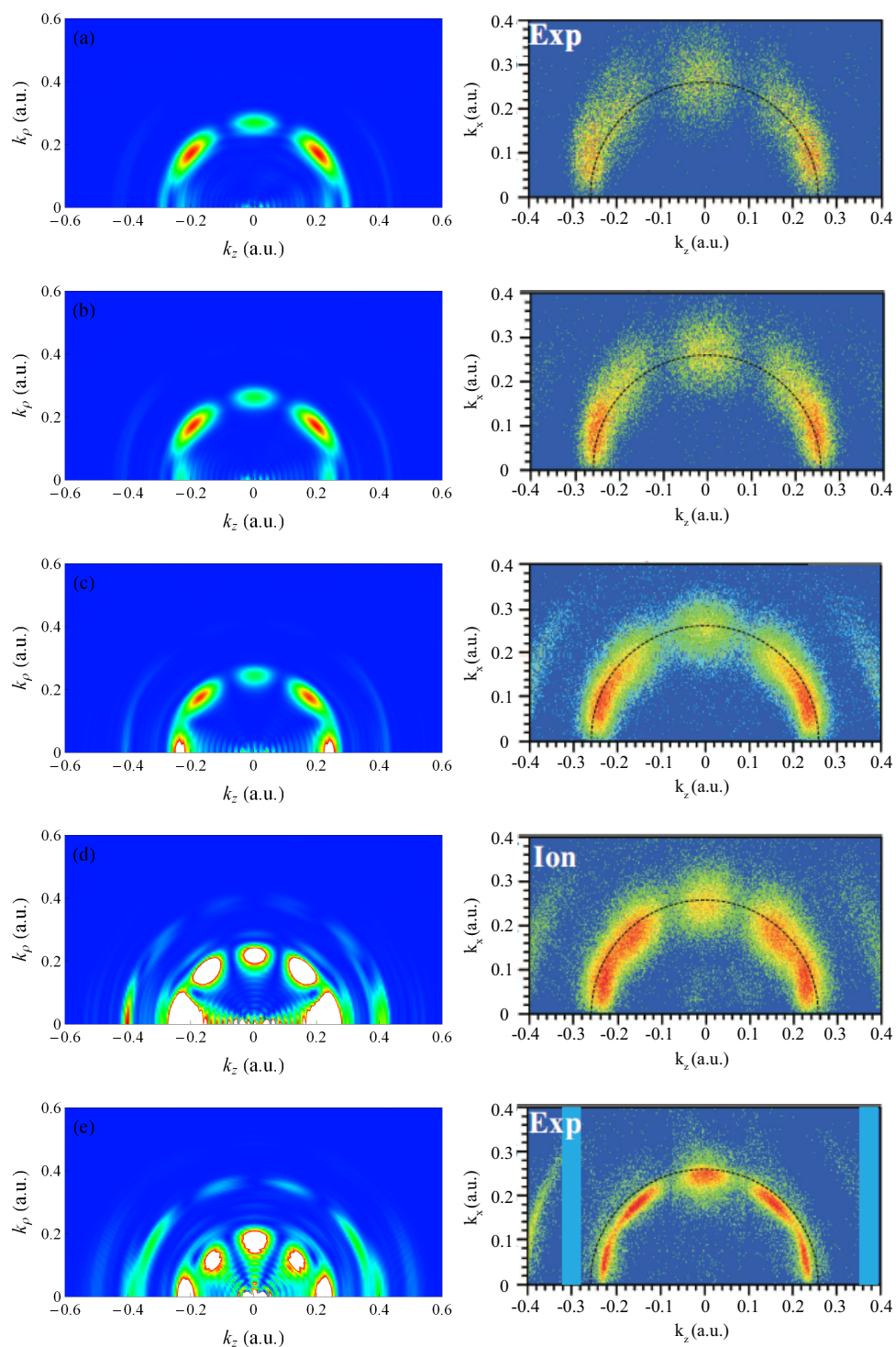


Slika 7.8: Energijska šema litijuma koja pokazuje jednostruko pobuđena stanja i moguće četvorofotonske apsorpcione putanje iz osnovnog stanja u kontinuum pri dejstvu laserskog pulsa od 785 nm. Prikazane su energije nivoa dobijene eksperimentalno (crne linije) i računski koristeći Helmanov pseudopotencijal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

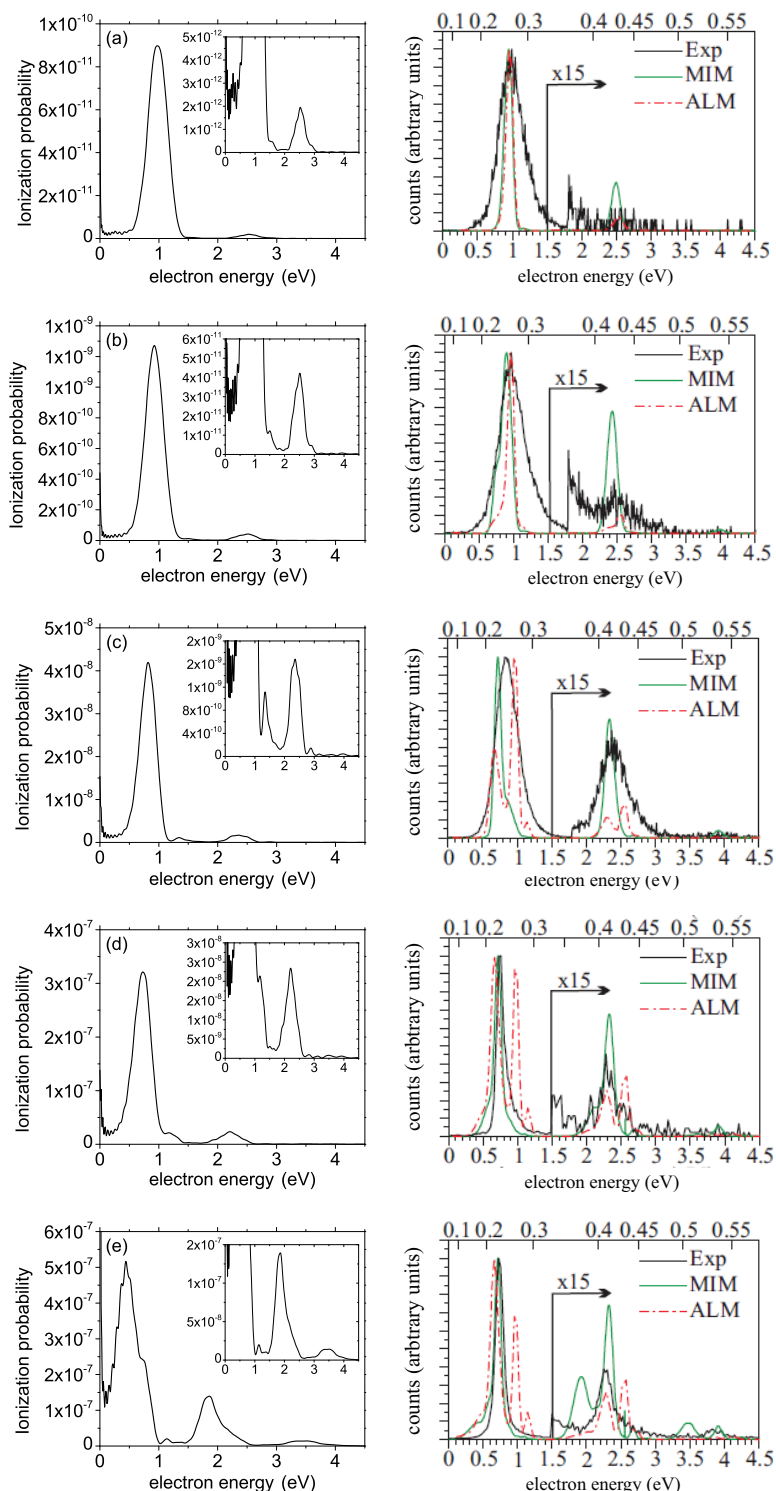
sne dužine 785 nm (energija $E_{ph} = 1.58 \text{ eV}$), potrebno bar četiri fotona da elektron pređe u kontinuum. Pri niskim intenzitetima dominantan proces je nerezonantna multifotonska jonizacija i izlazna energija fotoelektrona je očekivana da bude $E_e = 0.92 \text{ eV}$ što je u savršenom slaganju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

Буњац Б. Андреј – Списак радова

Радови објављени у научним часописима од међународног значаја, научна критика; уређивање часописа (M20):

(Рад у врхунском међународном часопису - M21):

A. Bunjac, D. B. Popović and 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**, 19829-19836 (2017). [on-line 07.07.2017]

<https://doi.org/10.1039/C7CP02146A>

From themed collection XUV/X-ray light and fast ions for ultrafast chemistry

ISSN: 1463-9076

(Рад у међународном часопису - M23):

A. Bunjac, D. B. Popović, and N. S. Simonović,

“Wave-packet analysis of strong-feld ionization of sodium in the quasistatic regime”,

Eur. Phys. J. D: At. Mol. Clusters & Opt. Phys. **70**(5), 116 (2016). [6 pp]

Topical Issue: Advances in Positron and Electron Scattering, P. Limao -Vieira, G. Garcia,

E. Krishnakumar, J. Sullivan, H. Tanuma and Z. Petrović (Guest editors) [DOI:](#)

[10.1140/epjd/e2016-60738-0](https://doi.org/10.1140/epjd/e2016-60738-0)

<http://link.springer.com/article/10.1140%2Fepjd%2Fe2016-60738-0>

ISSN: 1434-6060

A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović,

“Calculations of photoelectron momentum distributions and energy spectra at strong-field multiphoton ionization of sodium”,

Eur. Phys. J D **71**(8), 208 (2017). [6pp, online 8 Aug.2017] [doi:](#)

[10.1140/epjd/e2017-80276-5](https://doi.org/10.1140/epjd/e2017-80276-5)

Contribution to the Topical Issue: “Physics of Ionized Gases (SPIG 2016)”, Edited by G. Poparić, B. Obradović, D. Maric and A. Milosavljević.

ISSN: 1434-6060

Зборници са међународних научних скупова (M30):

(Предавање по позиву са међународног скупа штампано у изводу - M32):

A. Bunjac, D. B. Popović, N. S. Simonović,

"Calculation of the dynamic Stark shift for sodium and the application to resonantly enhanced multiphoton ionization",

Proc. 7th Conference on Elementary Processes in Atomic Systems (CEPAS 2017), 3rd – 6th September 2017, Průhonice, Czech Republic, Editors: M. Tarana, R. Čurík (J. Heyrovský Institute of Physical Chemistry, Prague, 2017), Abstracts of Oral Contributions, p.13.
ISBN: 978-80-87351-46-8 <https://www.jh-inst.cas.cz/cepas2017/>

(Саопштење са међународног скупа штампано у целини - M33):

A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović,

“Strong-Field Ionization of Sodium in the Quasistatic Regime”,

Proc. 28th Summer School and Int. Symp. on Physics of Ionized Gases – SPIG 2016, August 29th –Sept. 2nd 2016, Belgrade, Serbia, Contributed Papers & Abstracts of Invited Lectures, Topical Invited Lectures, Progress Reports and Workshop Lectures,

Editors: Dragana Marić, Aleksandar R. Milosavljević, Bratislav Obradović, and Goran Poparić, (Univ. of Belgrade, Faculty of Physics and SASA, Belgrade, Serbia), Poster P.1.3, pp.20-23. ISBN: 978-86-8453914-6.

<http://www.spig2016.ipb.ac.rs/spig2016-book-online.pdf>

A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović,

“Photoionization of Sodium by a Few Femtosecond Laser Pulse - Time-Dependent Analysis”,

Proc. 28th Summer School and Int. Symp. on Physics of Ionized Gases – SPIG 2016, August 29th –Sept. 2nd 2016, Belgrade, Serbia, Contributed Papers & Abstracts of Invited Lectures, Topical Invited Lectures, Progress Reports and Workshop Lectures,

Editors: Dragana Marić, Aleksandar R. Milosavljević, Bratislav Obradović, and Goran Poparić, (Univ. of Belgrade, Faculty of Physics and SASA, Belgrade, Serbia), Poster P.1.2, pp.16-19. ISBN: 978-86-8453914-6.

<http://www.spig2016.ipb.ac.rs/spig2016-book-online.pdf>

CI04. A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović,

“Strong Field Multiphoton Ionization of Lithium”,

Proc. 29th Summer School and Int. Symp. on the Physics of Ionized Gases (SPIG2018), Contributed Papers & Abstracts of Invited Lectures, Topical Invited Lectures, Progress Reports and Workshop Lectures

Editors: Goran Poparić, Bratislav Obradović, Duško Borka and Milan Rajković (Vinča Institute of Nuclear Sciences and Serbian Academy of Sciences and Arts, Belgrade, 2018). Contributed Paper, pp.15-18.

ISBN 978-86-7306-146-7

<http://www.spig2018.ipb.ac.rs/SPIG2018-book-online.pdf>

(Саопштење са међународног скупа штампано у изводу - M34):

A. Bunjac D. B. Popović and N. Simonović,

“Calculation of probabilities and photoelectron angular distributions 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, Editor: P. Badankó, Poster presentation, p.29.

<http://xlic.unideb.hu/>

ISBN: 978-963-832-51-0 (Károly Tőkési,, Atomki, Hungary)

A. Bunjac, D. B. Popović, N. 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, April 27-30, 2015, Book of Abstracts, Eds. Paola Bolognesi and Aleksandar Milosavljević, 27-30 April 2015, Poster presentation P02, p.59. <http://www.xlic-wg2-2015.ipb.ac.rs/>
ISBN: / (The Institute of Physics, Belgrade, Serbia)

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”,

Proc. The Sixth International School and Conference on Photonics & COST actions: MP1406 and MP1402 & H2020-MSCA-RISE-2015 CARDIALLY workshop (PHOTONICA 2017), 28 August – 1 September 2017 Belgrade, Serbia, Book of abstracts, Abstracts of Tutorial, Keynote, Invited Lectures, Progress Reports and Contributed Papers, Eds. Marina Lekić and Aleksandar Krmpot (Institute of Physics Belgrade, Belgrade, 2017), Section: 9. Laser - material interaction, Contributed Paper L.M.I.10, p.178.

ISBN 978-86-82441-46-5

<http://www.photonica.ac.rs/>

Одбрањена докторска дисертација (M70):

Одбрањена докторска дисертација под називом *Израчунавање насељености атомских стања, угаоне расподеле и енергијског спектра фотоелектрона код атомских система у јаким ласерским пољима* под менторством Др Ненада Симоновића.

Web of Science



Citation report for 3 results from Web of Science Core Collection between 1996 and 2019 Go

You searched for: AU=(bunjac *) ...More

This report reflects citations to source items indexed within Web of Science Core Collection. Perform a Cited Reference Search to include citations to items not indexed within Web of Science Core Collection.

Export Data: Save to Excel File

Total Publications

3 [Analyze](#)

1998 2017

h-index

1

Average citations per item

0.67

Sum of Times Cited

2

Without self citations

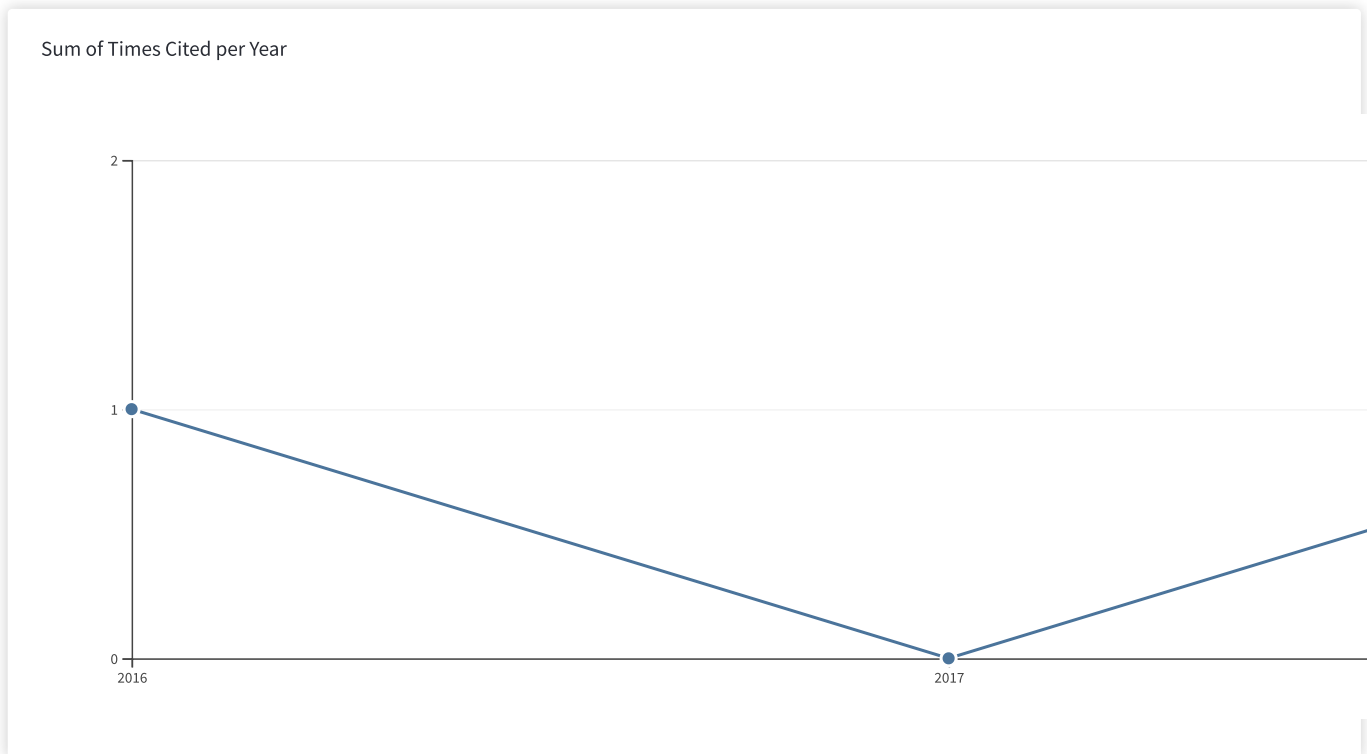
2

Citing articles

2 [Analyze](#)

Without self citations

2 [Analyze](#)



Sort by: Times Cited Date More

1 of 1

2015	2016	2017	2018	2019	Total	Average Citations per Year

Use the checkboxes to remove individual items from this Citation Report

0 1 0 1 0 2 0.50

or restrict to items published between and

- | | | | | | | | | | |
|--------------------------|----|---|---|---|---|---|---|---|------|
| <input type="checkbox"/> | 1. | Resonant dynamic Stark shift as a tool in strong-field quantum control: calculation and application for selective multiphoton ionization of sodium | 0 | 0 | 0 | 1 | 0 | 1 | 0.33 |
| | | By: Bunjac, A.; Popovic, D. B.; Simonovic, N. S. | | | | | | | |
| | | PHYSICAL CHEMISTRY CHEMICAL PHYSICS Volume: 19 Issue: 30 Pages: 19829-19836 Published: AUG 14 2017 | | | | | | | |
| <hr/> | | | | | | | | | |
| <input type="checkbox"/> | 2. | Wave-packet analysis of strong-field ionization of sodium in the quasistatic regime | 0 | 1 | 0 | 0 | 0 | 1 | 0.25 |
| | | By: Bunjac, Andrej; Popovic, Duska B.; Simonovic, Nenad S. | | | | | | | |
| | | EUROPEAN PHYSICAL JOURNAL D Volume: 70 Issue: 5 Article Number: 116 Published: MAY 24 2016 | | | | | | | |
| <input type="checkbox"/> | 3. | Calculations of photoelectron momentum distributions and energy spectra at strong-field multiphoton ionization of sodium | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0.00 |
| | | By: Bunjac, Andrej; Popovic, Duska B.; Simonovic, Nenad S. | | | | | | | |
| | | EUROPEAN PHYSICAL JOURNAL D Volume: 71 Issue: 8 Article Number: 208 Published: AUG 2017 | | | | | | | |

 Select Page

Sort by: Times Cited Date More

◀ 1 of 1 ▶

3 records matched your query of the 43,702,138 in the data limits you selected.

Clarivate

Accelerating innovation

© 2019 Clarivate

[Copyright notice](#)[Terms of use](#)[Privacy statement](#)[Cookie policy](#)[Sign up for the Web of Science newsletter](#)

Follow us





Cite this: *Phys. Chem. Chem. Phys.*,
2017, 19, 19829

Resonant dynamic Stark shift as a tool in strong-field quantum control: calculation and application for selective multiphoton ionization of sodium

A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović *

A method for determining the resonant dynamic Stark shift (RDSS), based on wave-packet calculations of the populations of quantum states, is presented. It is almost insensitive to variations of the laser pulse profile, and this feature ensures generality in applications. This method is used to determine an RDSS data set for $3s \rightarrow nl$ ($n \leq 6$) transitions in sodium induced by laser pulses with peak intensities up to $7.9 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$ and wavelengths in the range from 455.6 to 1139 nm. The data are applied to analyze the photoelectron spectra (electron yield *versus* excess energy) of the sodium atom interacting with 800 nm laser radiation. Substructures observed in the experimentally measured spectra are successfully reproduced and related to the resonantly enhanced multiphoton ionization *via* specific (P and F) intermediate states.

Received 3rd April 2017,
Accepted 7th July 2017

DOI: 10.1039/c7cp02146a

rsc.li/pccp

1 Introduction

Up to the middle of the 20th century, research on the disturbance (shift and splitting) of atomic levels by an external electric field, known as the Stark effect, was limited to the case of a static electric field (the so-called dc Stark effect). The discovery and development of lasers during the 1960s stimulated the research on similar phenomena induced by alternating electromagnetic fields. The first observation of this, the so-called dynamic (or ac) Stark effect, initiated by a laser radiation field, was carried out at the end of the same decade.¹ Half a century later, a huge experience and knowledge accumulated through numerous experimental and theoretical studies gives us a detailed description of the dynamic Stark effect generated by laser radiation.

Although a number of reviews and monographs on this topic have been published,^{2–6} accurate data related to the dynamic Stark shift in a wide range of parameters are not available for most of the systems studied. This is understandable in that the dynamic Stark shift, apart from the intensity of the alternating field, depends on the frequency as well. The situation becomes more complicated when short laser pulses (ordinary or with a chirp) are used, because in that case the intensity, or both the intensity and frequency, of the radiation are fast varying parameters. The problem may be less demanding for the dynamic Stark shift which occurs under a resonance condition, the so-called resonant dynamic Stark shift (RDSS), since here the

field strength and frequency are not independent parameters. In that case, however, a perturbative treatment fails even at low intensities and, in order to obtain accurate data, more sophisticated methods must be applied.

Dynamic Stark shift, including the RDSS, today is considered as an important mechanism in the strong-field coherent (quantum) control of various atomic and molecular processes.^{7,8} The latter can be implemented through modifications of the atomic states or molecular potential surfaces such that new pathways or reaction channels, which are inaccessible in weak fields, become available.^{9,10} Determination of RDSS is, for example, essential for understanding and controlling the process of resonantly enhanced multiphoton ionization (REMPI). The dynamic shift of an atomic energy level into resonance, known as “Freeman resonance”,^{11,12} is an important phenomenon which enables strong-field coherent control over these processes. The non-static character of intermediate resonances,^{13,14} however, makes the experimental realization of REMPI more complicated. A particular challenge here is how to implement the selective ionization of an atom through a single energy level and simultaneously produce a high ion yield. By increasing the laser intensity, one increases the yield, but also spreads the electron population over multiple energy levels¹² and, in turn, reduces the selectivity.

Krug *et al.*¹⁵ recently showed, by considering the multiphoton ionization of sodium, that chirped pulses can be an efficient tool in strong-field coherent control of multiple states. In a very recent paper, Hart and coworkers¹⁶ described how improved selectivity and yield (again for sodium) can be achieved by controlling the RDSS *via* intensity (up to $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$)

Institute of Physics, University of Belgrade, P.O. Box 57, 11001 Belgrade, Serbia.
E-mail: simonovic@ipb.ac.rs

of the laser pulse of an appropriate wavelength (800 nm). Details of the experimental equipment have been reported elsewhere.¹⁷

In this paper we present the results of the calculations of the RDSS for the sodium atom in strong laser fields performed by numerically solving the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) within the single-electron approximation. Recently obtained experimental results^{15,16} and a lack of numerical data for sodium (beyond the perturbative approach and finite-state models) in the corresponding range of laser field parameters inspired our calculations and the analysis of the strong field quantum control of considered ionization processes.

In the next section we describe a single-electron model for alkali-metal atoms (valence electron plus atomic core), a method for numerically solving the TDSE and a way how to calculate the RDSS. In Section 3 we present the results and demonstrate how they can be used to study the REMPI. A summary and conclusions are given in Section 4.

2 Theory

2.1 The model

Singly-excited states and the single ionization of alkali-metal atoms can be described with sufficient accuracy using one-electron models. This follows from the structure of these atoms, which is that of a single valence electron moving in an orbital outside a core that consists of closed shells. In that case the valence electron is weakly bound and can be considered as moving in an effective core potential $V_{\text{core}}(r)$, which at large distances r approaches the Coulomb potential $-1/r$.

One of the simplest models for the effective core potential, applicable for alkali-metal atoms, is the Hellmann pseudopotential:¹⁸

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

For the sodium atom the parameters $A = 21$ and $a = 2.54920$ ¹⁹ provide the correct value of the ionization potential $I_p = 5.1391$ eV = 0.18886 a.u. (i.e. the ground state energy $E_{\text{gr}} = -I_p$) and reproduce approximately the energies of singly-excited states²⁰ (deviations are less than 1%). The applicability of pseudopotentials is based on the assumption following from the quantum defect theory²¹ that one obtains accurate approximations of the valence wave functions $\psi_{nlm}(\mathbf{r})$ outside the core if the effective potential leads to correct energies for all the states of each Rydberg series. These wave functions, both for the ground state (for sodium $\psi_{\text{gr}}(\mathbf{r}) = \psi_{300}(\mathbf{r})$) and excited states, have the standard form $\psi_{nlm}(\mathbf{r}) = R_{nl}(r)Y_{lm}(\Omega)$, where radial functions $R_{nl}(r)$ are determined numerically by solving the one-electron radial equation with pseudopotential (1).

Here we use the one-electron approach to study the single-electron excitations and the single ionization of the sodium atom in strong laser fields. Assuming that the field effects on the core electrons can be neglected (the so-called frozen-core approximation¹⁹), the Hamiltonian describing the dynamics of the valence (active) electron of the sodium (or another

alkali-metal) atom in an alternating electric field $F(t)$ reads (in atomic units)

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

We consider the linearly polarized laser pulse of the form

$$F(t) = F_{\text{peak}} \sin^2\left(\frac{\pi t}{T_p}\right) \cos\left[\omega\left(t - \frac{T_p}{2}\right) + \varphi\right], \quad (3)$$

$$0 < t < T_p$$

(otherwise $F(t) = 0$). Here ω , F_{peak} , T_p and φ are, respectively, the frequency of the laser field, the peak value of its electric component, the pulse duration and the carrier envelope phase which we set to zero. Due to the axial symmetry of the system the magnetic quantum number m of the valence electron is a good quantum number for any field strength. Since in the sodium ground state (when $F = 0$) the orbital and magnetic quantum numbers are equal to zero, in all calculations we set $m = 0$.

2.2 Energy scheme

Fig. 1 shows the excitation and ionization scheme of sodium based on energy levels corresponding to singly-excited states. Depending on the laser wavelength, different multi-photon pathways are accessible during the interaction of sodium atoms with the laser radiation. In the case of 800 nm radiation there are two dominant REMPI pathways: (i) $2 + 1 + 1$ (or $3 + 1$) ionization *via* nearly resonant two-photon transition $3s \rightarrow 4s^{22}$ and subsequent (or direct) excitation of $5p$, $6p$ and $7p$ states, giving rise to photoelectrons with s- and d-symmetry,¹⁵ and (ii) $3 + 1$ ionization *via* three-photon excitation of $4f$, $5f$ and $6f$ states,²³ giving rise to photoelectrons with d- and g-symmetry.

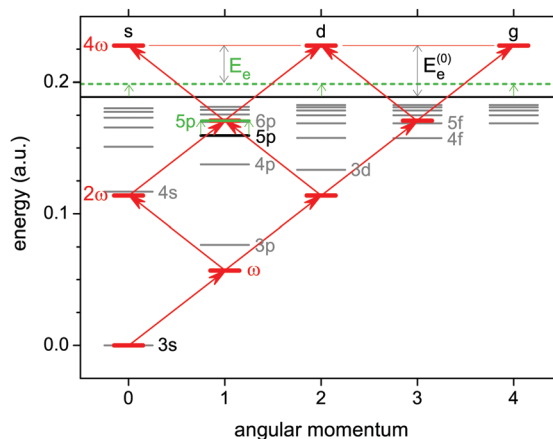


Fig. 1 Energy scheme showing the (unperturbed) lowest levels of sodium (grey lines) and possible four-photon absorption pathways from the ground state to continuum (red arrows), which arise during the interaction with 800 nm ($\omega = 0.05695$ a.u.) laser radiation. The shift of the continuum boundary (full black \rightarrow dashed green line) that corresponds to the strength of the laser field when the $5p$ level (highlighted) shifts into three-photon resonance is shown.

2.3 Numerical method

The photoexcitation and photoionization processes are simulated by calculating the evolution of the initial wave function $\psi(\mathbf{r},0) = \psi_{\text{gr}}(\mathbf{r})$, which is the lowest eigenstate of Hamiltonian (2) for $F = 0$, from $t = 0$ until a time $T_{\text{max}} > T_p$. This can be done by taking an adequate representation of the evolution operator $U(t,t + \Delta t)$ and integrating numerically the relation $\psi(\mathbf{r},t + \Delta t) = U(t,t + \Delta t)\psi(\mathbf{r},t)$ with a sufficiently small time step Δt . Here we use the second-order-difference (SOD) scheme:²⁴

$$\psi(\mathbf{r},t + \Delta t) = \psi(\mathbf{r},t - \Delta t) - 2i\Delta t H\psi(\mathbf{r},t). \quad (4)$$

Since the system described by Hamiltonian (2) is axially symmetric it is convenient to express the electron's wave function in cylindrical coordinates (ρ, φ, z) . If we write

$$\psi(\mathbf{r},t) = \Phi(\rho, z, t) \frac{e^{im\varphi}}{\sqrt{2\pi\rho}}, \quad (5)$$

where m is the magnetic quantum number, eqn (4) reduces to

$$\Phi(\rho, z, t + \Delta t) = \Phi(\rho, z, t - \Delta t) - 2i\Delta t \mathcal{H} \Phi(\rho, z, t), \quad (6)$$

where

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V_{\text{eff}}(\rho, z) \quad (7)$$

and

$$V_{\text{eff}} = \frac{m^2 - 1/4}{2\rho^2} + V_{\text{core}}(r) - F(t)z \quad (8)$$

with $r = (\rho^2 + z^2)^{1/2}$.

The derivatives $\partial^2 \Phi / \partial \rho^2$ and $\partial^2 \Phi / \partial z^2$ which appear in the $\mathcal{H} \Phi$ term in eqn (6) are calculated using the finite-difference method (see Appendix A). This method, however, fails at ρ values close to zero. The effective potential (8) with $m = 0$ in the limit $\rho \rightarrow 0$ behaves as $-1/8\rho^2$ where the solutions of the Schrödinger equation are $\Phi \sim \sqrt{\rho}$ and their second derivative $\partial^2 \Phi / \partial \rho^2 \sim -\rho^{-3/2} \rightarrow -\infty$. Direct application of a finite-difference formula for the determination of this derivative for small ρ then leads to a large numerical error.

The problem can be regularized by introducing the function

$$u(\rho, z) = \Phi(\rho, z) / \sqrt{\rho} \quad (9)$$

which slowly varies for ρ values close to zero. As a consequence, the ρ -derivatives of u take small (finite) values and can be determined accurately using finite-difference formulae (Appendix A). The corresponding values of $\partial^2 \Phi / \partial \rho^2$ are then obtained from the relation

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial \rho^2} = -\frac{u(\rho, z)}{4\rho^{3/2}} + \frac{1}{\rho^{1/2}} \frac{\partial u}{\partial \rho} + \rho^{1/2} \frac{\partial^2 u}{\partial \rho^2}. \quad (10)$$

This approach gives the best results if we use function (9) when $\rho \leq \rho_c$, where ρ_c is a distance of the order of Bohr radius, and calculate derivatives of Φ directly for $\rho > \rho_c$.

2.4 Calculation of populations of atomic states and determination of RDSS

If the valence electron is initially in the ground state (3s), the probability of finding it in a bound state nl after the end of the laser pulse (the transition probability for this state or, equivalently, the population of the state) is

$$P_{nl} = |\langle nl | U(0, T_p) | 3s \rangle|^2 = |\langle nl | \psi(T_p) \rangle|^2. \quad (11)$$

Then the sum

$$P_{\text{ion}} = 1 - \sum_{nl} P_{nl} \quad (12)$$

determines the probability of finding the electron in a continuum (unbound) state, *i.e.* it represents the ionization probability.

The probabilities P_{nl} (populations) strongly depend on the parameters of the laser pulse (ω , T_p , F_{peak}). In particular, P_{nl} changes rapidly by varying the laser frequency ω . The maxima of functions $P_{nl}(\omega)$ occur at frequencies for which an integer (K) multiple of the photon energy ($=\omega$) coincides with the separation between the lowest (3s) and a given (nl) level of the sodium atom in the field (multi-photon resonance condition), *i.e.* when

$$K\omega = \omega_{nl,3s}, \quad (13)$$

where $\omega_{nl,3s} = E_{nl} - E_{3s}$. The additional condition (following from the selection rules for the dipole approximation) is that $K + l$ must be an even integer.

The positions of the resonant peaks in $P_{nl}(\omega)$ depend on the field strength and this dependence is a manifestation of the dynamic Stark shift. Generally, the dynamic Stark shift of atomic levels depends both on the strength and on the frequency of the field. If F is the amplitude of the alternating field, then the shift of energy level E_{nl} is

$$\delta E_{nl}(F, \omega) = E_{nl}(F, \omega) - E_{nl}^{(0)}, \quad (14)$$

where $E_{nl}^{(0)} \equiv E_{nl}(0, \omega)$ is the energy of state nl when the field is absent ($F = 0$). In the weak field limit one has $\delta E_{nl} = -\alpha_{nl}(\omega) F^2/4$, where $\alpha_{nl}(\omega)$ is known as the dynamic polarizability of the given state.² In particular, in the weak-field/high-frequency limit (*e.g.* for highly excited states nl) the polarizability $\alpha_{nl}(\omega)$ tends to the asymptotic value $-1/\omega^2$, giving $\delta E_{nl} \rightarrow F^2/4\omega^2$. This value corresponds to the vibrational energy of a free electron in the linearly polarized electromagnetic field, known as the ponderomotive potential U_p . In contrast, the shift of the ground state, for which this radiation is low-frequency, is similar to the static polarization of the atom – it is negative. Thus, the ionization potential of the atom in the laser field is higher than that of an unperturbed atom² (see Fig. 11 in the cited reference).

Since all the experiments measure not the Stark shift of a given level but the variation of the energy (frequency) of the transition from one (initial) state to another state, and since in our calculations the maxima of P_{nl} give us the separations of levels ($\omega_{nl,3s}$), we shall consider the dynamic Stark shift of the sodium atom energy levels relative to its ground state value, *i.e.*

$$\delta \omega_{nl,3s}(F, \omega) = \delta E_{nl}(F, \omega) - \delta E_{3s}(F, \omega) = \omega_{nl,3s}(F, \omega) - \omega_{nl,3s}^{(0)}, \quad (15)$$

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

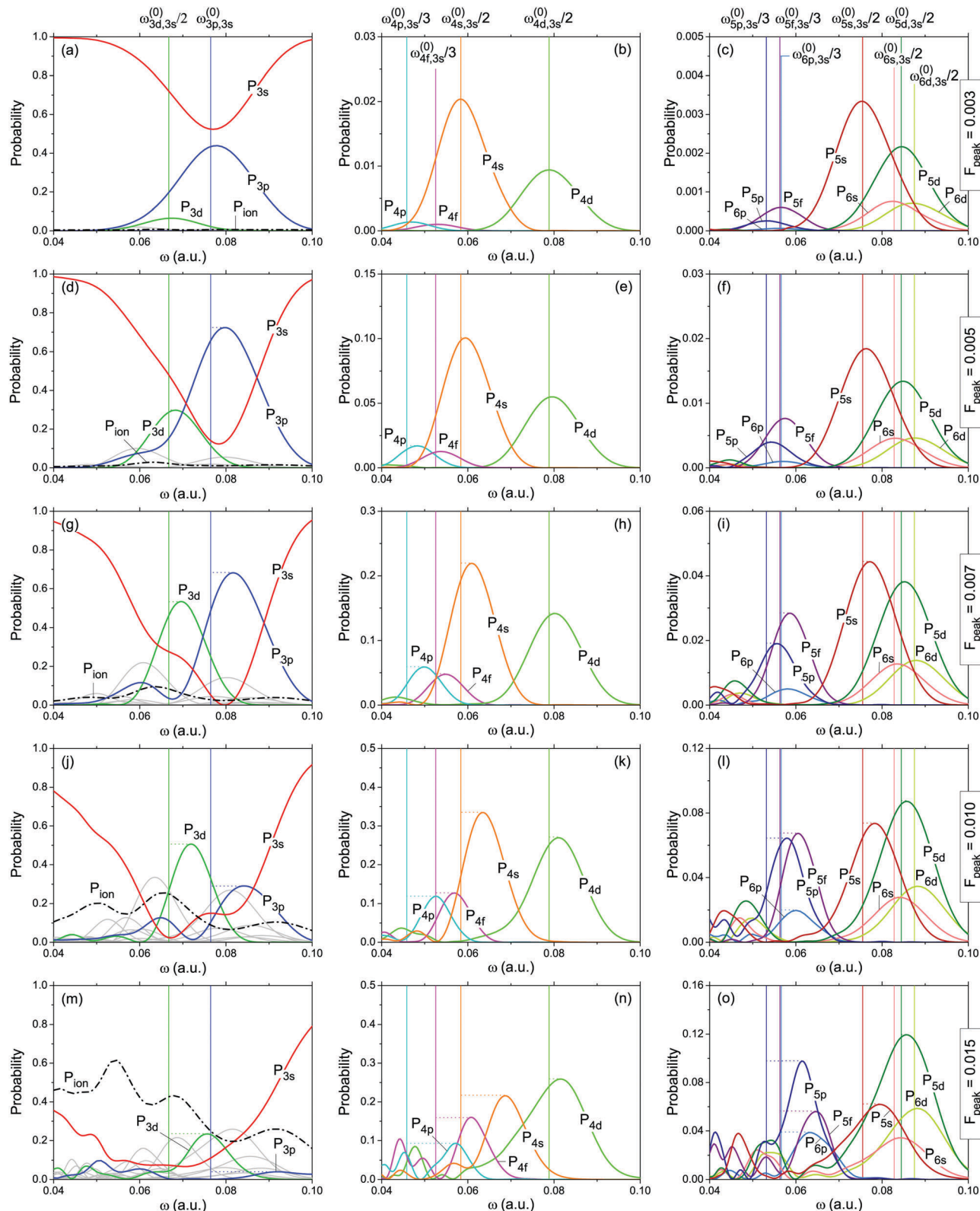


Fig. 2 Transition probabilities P_{nl} (populations) of sodium states with $n = 3, 4, 5,$ and 6 calculated for 10 fs laser pulses (3) with $F_{peak} = 0.003$ a.u. (a–c), $F_{peak} = 0.005$ a.u. (d–f), $F_{peak} = 0.007$ a.u. (g–i), $F_{peak} = 0.010$ a.u. (j–l) and $F_{peak} = 0.015$ a.u. (m–o) as functions of the laser frequency ω (full lines of different colors). Vertical lines denote the energy (frequency) of transitions from the ground state ($3s$) to other states (nl) divided by the number of absorbed photons K when $F_{peak} \rightarrow 0$. The ionization probabilities $P_{ion}(\omega)$ (dashed-dotted lines) for the five field strengths are shown in parts a, d, g, j and m.

Further, if we consider this shift strictly under the resonance condition (13), the parameters F and ω are not independent and we can write

$$\delta\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F) = \omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F) - \omega_{nl,3s}^{(0)}, \quad (16)$$

where

$$\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F) = \omega_{nl,3s}(F, \omega_{\text{res}}) \quad (17)$$

is the separation of levels under the multiphoton resonance condition, *i.e.* at the resonant frequency

$$\omega_{\text{res}} = \omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F)/K. \quad (18)$$

Formally, $\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F)$ is a solution of systems (17) and (18). However, since functions $\omega_{nl,3s}(F, \omega)$ are in principle not known, in practice we obtain $\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F)$ from ω_{res} values which are determined as the positions of the resonant peaks of $P_{nl}(\omega)$ at different values of F and relation (18) (which is equivalent to resonance condition (13)).

3 Results

3.1 Populations and RDSS of sodium states $n \leq 6$

In order to create an RDSS data set for sodium which might be used in the study of various strong field phenomena, we calculated the probabilities for populating the atomic levels with $n \leq 6$ under the influence of a laser pulse of the form (3) with $F_{\text{peak}} \leq 0.015$ a.u. (*i.e.* for peak intensities up to 7.90×10^{12} W cm $^{-2}$), in the range of laser frequencies ω between 0.04 and 0.1 a.u. (the corresponding wavelengths are from

1139 to 455.6 nm), and for three values of the pulse duration: $T_p = 5, 10$ and 20 fs (1 fs = 41.34 a.u.).

Fig. 2 shows the populations of the states with $n = 3$ (3s, 3p and 3d), $n = 4$ (4s, 4p, 4d and 4f), $n = 5$ (5s, 5p, 5d and 5f) and $n = 6$ (6s, 6p and 6d) calculated for the laser pulse parameters: $T_p = 10$ fs; $F_{\text{peak}} = 0.003, 0.005, 0.007, 0.010, 0.015$ a.u. and $\omega \in (0.04, 0.10)$ a.u. As explained in Section 2.4, the positions of maxima of $P_{nl}(\omega)$ can be related to resonant frequencies ω_{res} for $3s \rightarrow nl$ transitions, which determine the transition energies $\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F_{\text{peak}})$ at given field strengths (see eqn (18)). Once we have these energies, the RDSS values can be obtained using eqn (16).

An important feature of this method is that the peak positions of $P_{nl}(\omega)$ remain approximately the same if we vary the pulse length. For longer pulses, however, the peaks are more narrow and the resonant maxima are expected to be localized more precisely. This is demonstrated in Fig. 3 where the populations calculated for $F_{\text{peak}} = 0.007$ a.u. and three different pulse lengths ($T_p = 5, 10, 20$ fs) are compared. The above mentioned properties can be explained by the fact that the resonant frequency for a given transition essentially varies during the laser pulse due to variation of the field strength, but the ω_{res} value corresponding to a probability maximum is always related to the peak value F_{peak} .

In our calculations we favored pulses of 10 fs duration, which is for the considered problem estimated as an optimal length. Longer pulses, despite the fact that computations become more time consuming, give more complex probability distributions where the peaks related to transitions between different excited states become more pronounced. The results (energy separations $\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F)$) for $n \leq 6$ and six values of the

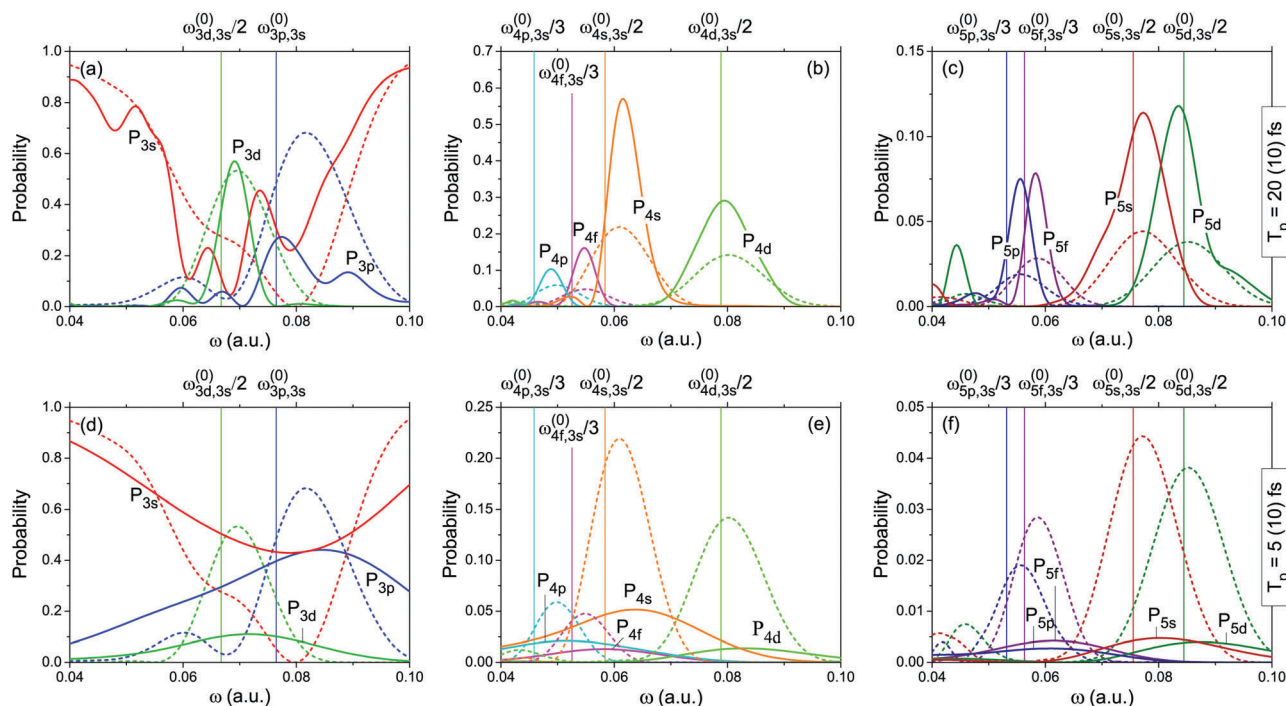


Fig. 3 Transition probabilities P_{nl} (populations) of sodium states with $n = 3, 4$, and 5 calculated for laser pulses (3) of 20 fs (a–c) and 5 fs (d–f) duration with $F_{\text{peak}} = 0.007$ a.u. as functions of the laser frequency ω (full lines of different colors). For comparison, the populations of the same states in the case of 10 fs laser pulses are shown (dotted lines).

Table 1 Energies of excited states (nl) of sodium relative to its ground state ($3s$) which are in K -photon resonance with the applied laser field of strengths $F = 0, \dots, 0.015$ a.u. These energies ($\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F)$) are related (by condition (18)) to the resonant laser frequencies which are obtained from the positions of maxima of the populations $P_{nl}(\omega)$. The calculations for $F > 0$ are performed using the laser pulse length $T_p = 10$ fs (see Fig. 2), except for $4f$, $5p$, $5f$ and $6p$ states where $T_p = 20$ fs. The energies for $F = 0$ are obtained by diagonalizing the one-electron Hamiltonian with pseudopotential (1) and agree well with experimental values²⁰

nl :	3p	3d	4s	4p	4d	4f	5s	5p	5d	5f	6s	6p	6d
K :	1	2	2	3	2	3	2	3	2	3	2	3	2
F (a.u.)	$\omega_{nl,3s}^{\text{res}}$ (eV)												
0	2.0800	3.6316	3.1772	3.7429	4.2912	4.2891	4.1095	4.3397	4.5966	4.5952	4.5061	4.6213	4.7620
0.003	2.1154	3.6663	3.1733	3.8297	4.2919	4.3145	4.0995	4.3813	4.6018	4.6206	4.4876	4.6532	4.7334
0.005	2.1707	3.7170	3.2346	3.9429	4.3299	4.3695	4.1535	4.4412	4.6183	4.6733	4.5219	4.7121	4.7643
0.007	2.2226	3.7889	3.3103	4.0803	4.3657	4.4540	4.1990	4.5288	4.6380	4.7545	4.5481	4.7948	4.7841
0.010	2.2912	3.9128	3.4546	4.2938	4.4123	4.6174	4.2609	4.6934	4.6643	4.9142	4.5772	4.9467	4.8053
0.015	2.5025	4.1176	3.7382	4.6655	4.4375	4.9304	4.3278	4.9962	4.6610	5.2001	4.5869	5.2287	4.8012

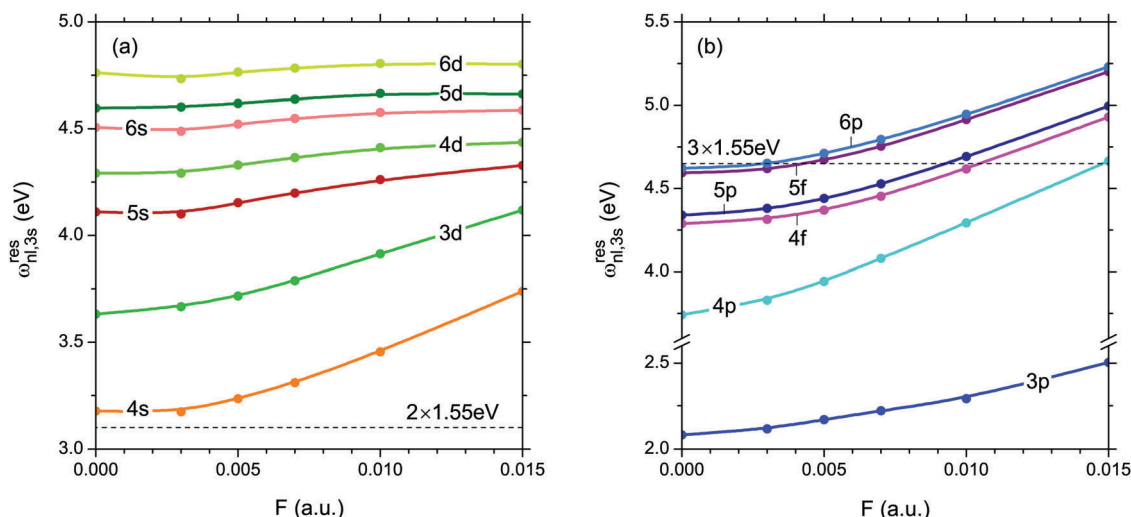


Fig. 4 The field-strength dependence of excited state energies relative to the ground state energy for the sodium atom in the laser field which is in K -photon resonance with $3s \rightarrow nl$ transitions: (a) $K = 2$, and (b) $K = 1$ (for $3s \rightarrow 3p$) and $K = 3$. Horizontal dashed lines in parts (a) and (b) mark the two- and three-photon energies, respectively, for a laser field of 800 nm wavelength.

field strength are given in Table 1 and shown (after interpolation) in Fig. 4. Although dynamic polarizabilities are in principle complex functions of the laser field parameters,^{2–6} our calculations indicate that the energy separations in the resonant case are rather smooth functions of the field strength. It is found that they increase under stronger fields, but in the perturbative regime the dynamic shift may be negative as in the static field case, particularly for the states with lower values of the polarizability (s -states, see Fig. 4a). We point out, however, that in the $F < 0.003$ a.u. range this shift is small and thus comparable to the error of locating the resonant peaks. Below we demonstrate how these results can be used to explain the structure of the photoelectron spectrum of sodium.

3.2 Analysis of the photoelectron spectrum of sodium interacting with a 800 nm laser pulse

Freeman *et al.*¹¹ have shown that when atomic states during the laser pulse transiently shift into resonance, they can be energetically resolved in the photoelectron spectrum (electron yield *versus* excess energy). Theoretically, if the multiphoton ionization occurs by absorbing N photons, the photoelectron excess energy in the weak field limit is $E_c = N\omega - I_p$. Under

stronger fields, however, the dynamic Stark shift of the ground state and that of the continuum boundary (see eqn (14) and the text below) change effectively the ionization potential I_p to $I_p - \delta E_{\text{gr}}(F, \omega) + U_p(F, \omega)$ and E_c becomes dependent on the field strength (see Fig. 1). If an intermediate state at a field strength F shifts into resonance, the photoelectron yield increases and one observes a peak at the corresponding value of E_c . Thus, the peaks in the photoelectron spectra can be related to the REMPI occurring *via* different intermediate states. If we apply the expression $\delta E_{\text{gr}} = -\alpha_{\text{gr}}(\omega)F^2/4$ and approximate the dynamic polarizability of the ground state by its static value (for sodium $\alpha_{\text{gr}}^{\text{stat}} = 162.7^{25}$), the photoelectron excess energy is determined by the formula¹⁴

$$E_c = N\omega - \left[I_p + \frac{1}{4} (\alpha_{\text{gr}}^{\text{stat}} + \omega^{-2}) F^2 \right]. \quad (19)$$

Using the data given above and eqn (19), in the following we analyze the results of recent measurements of the photoelectron yield for sodium interacting with a 800 nm laser field.¹⁶ Fig. 4(b) shows that at this wavelength (the corresponding frequency/photon energy is $\omega = 0.05695$ a.u. ≈ 1.55 eV) functions $\omega_{nl,3s}^{\text{res}}(F)$ for $4p$, $4f$, $5p$, $5f$ and $6p$ states cross the triple photon-energy ($\approx 3 \times 1.55$ eV), *i.e.* shift into resonance with the

Table 2 The values for laser field strength (electric component), laser intensity and photoelectron excess energy which characterize resonant three-photon excitation of sodium states 4p, 4f, 5p, 5f and 6p by an 800 nm laser field ($\omega \approx 1.55$ eV)

State	F (a.u.)	Intensity (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

laser frequency, at different values of F . These field strengths, the corresponding laser intensities and the related photoelectron excess energies are given in Table 2. Comparison with the experimental results shown in Fig. 5 confirms that the most prominent peak in the photoelectron yield ($E_e \approx 0.76$ eV) is related to the REMPI *via* 4f and 5p states, whereas the local peaks at $E_e \approx 0.35$ eV and 1 eV are related to the 4p state and 5f and 6p states, respectively. (Referring to Hart *et al.*'s work¹⁶ the local peak around 1.2 eV is attributed to ionization *via* the 7p state, which is out of the set of states we considered here.) Note that for these field parameters one- or two-photon resonant transitions are not possible.

Finally, we discuss the excitation of the 4s state. One can see from Fig. 4(a) that the two-photon excitation of this state by an 800 nm laser is near resonant in the weak field limit. At higher intensities, however, detuning of the laser frequency from the resonant value increases and the transition probability for the 4s state decreases. Thus, we speculate that the 4s state does not favor significantly the excitation of P states (5p, 6p, 7p) over F states (4f, 5f, 6f), as has been expected.^{15,26} Accordingly, Fig. 2 shows that the populations of nf states are of the same order or larger than those for $(n + 1)p$ states.

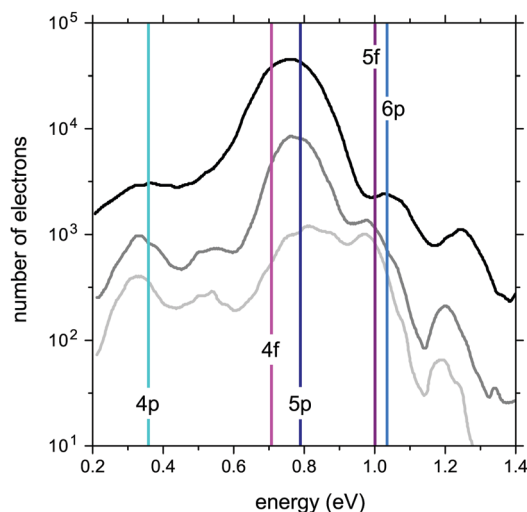


Fig. 5 Calculated values for photoelectron excess energies (vertical lines) which characterize four-photon REMPI of sodium *via* 4p, 4f, 5p, 5f and 6p states by an 800 nm laser field (from Table 2), shown together with experimentally measured electron yields *versus* photoelectron excess energies obtained for 57 fs laser pulses with peak intensities 3.5×10^{12} W cm^{-2} (white gray, lower curve), 4.9×10^{12} W cm^{-2} (gray, middle curve), and 8.8×10^{12} W cm^{-2} (black, upper curve).¹⁶

4 Summary and conclusions

We presented a method for calculating the resonant dynamic Stark shift based on a wave-packet propagation technique. We used a variant of the second-order-difference scheme that was adapted to cylindrical coordinates and applied to calculate the populations of the sodium ground and singly excited states. For this purpose, a single-electron model of the atom in a strong laser field is used. The calculations are performed for sodium levels with $n \leq 6$ and for the peak intensities of the laser pulse up to 7.90×10^{12} W cm^{-2} and wavelengths in the range from 455.6 to 1139 nm. These results are in the next step used to estimate the resonant dynamic Stark shift for $3s \rightarrow nl$ transitions. The latter results are almost insensitive to variations of the laser pulse parameters including the pulse length, envelope profile and initial phase, and this fact ensures generality in applications.

We further demonstrated how the RDSS data can be used to predict the REMPI peaks in the photoelectron spectra. We performed an analysis of the strong-field ionization of sodium interacting with an 800 nm laser pulse. The calculated positions of the peaks (photoelectron excess energies) related to the REMPI processes *via* excited P and F states (two main REMPI pathways) agree very well with recent experimental findings.¹⁶ Our calculations, however, indicate that the REMPI pathway *via* F states is not significantly suppressed, as has been expected. This conclusion is based on two findings: (i) two-photon excitation of the intermediate 4s state by an 800 nm laser at higher intensities shifts out of resonance and (ii) the populations of F states at this wavelength are of the same order or larger than those for P states. To shed light on this question, additional research, *e.g.* an accurate calculation of the photoelectron angular distribution, is recommended.

Finally, the results presented here demonstrate the ability of the proposed method to explain physical mechanisms that play an important role in the processes related to the interaction of quantum systems with strong fields and predict their behaviour under these conditions. This analysis highlights the importance of studying simpler systems for better understanding mechanisms of the strong-field coherent control of more complex systems and processes.

This work was supported by COST Action No. CM1204 (XLIC). We acknowledge support from the Ministry of Education, Science and Technological Development of Republic of Serbia under Project No. 171020.

Appendix A. Finite-difference scheme for derivatives

The first- and the second-order derivative of function $f(x)$ can be determined using finite-difference schemes:

$$\left. \frac{\partial f}{\partial x} \right|_k = \frac{1}{h} \left(\frac{1}{280} f_{k-4} - \frac{4}{105} f_{k-3} + \frac{1}{5} f_{k-2} - \frac{4}{5} f_{k-1} + \frac{4}{5} f_{k+1} - \frac{1}{5} f_{k+2} + \frac{4}{105} f_{k+3} - \frac{1}{280} f_{k+4} \right), \quad (20)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial x^2} \Big|_k = \frac{1}{h^2} \left(-\frac{1}{560} f_{k-4} + \frac{8}{315} f_{k-3} - \frac{1}{5} f_{k-2} + \frac{8}{5} f_{k-1} - \frac{205}{72} f_k + \frac{8}{5} f_{k+1} - \frac{1}{5} f_{k+2} + \frac{8}{315} f_{k+3} - \frac{1}{560} f_{k+4} \right), \quad (21)$$

where x_k and $f_k = f(x_k)$ ($k = 1, \dots, N$) are the values of variables x and f on a grid with spacing h .

References

- 1 A. M. Bonch-Bruевич and V. A. Khodovoi, *Usp. Fiz. Nauk*, 1967, **93**, 71.
- 2 N. B. Delone and V. P. Krainov, *Phys.-Usp.*, 1999, **42**, 669.
- 3 M. H. Mittleman, *Introduction to the Theory of Laser-Atom Interactions*, Plenum Press, New York, 1982.
- 4 N. B. Delone and V. P. Krainov, *Atoms in Strong Light Fields*, Springer Series in Chemical Physics, Springer-Verlag, Berlin, 1985, vol. 28.
- 5 N. B. Delone and V. P. Krainov, *Multiphoton Processes in Atoms*, Springer, Heidelberg, vol. 13, 2000.
- 6 M. Fox, *Quantum Optics: An Introduction*, Oxford University Press, New York, 2006, p. 167.
- 7 H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus and K. Kompa, *Science*, 2000, **288**, 824.
- 8 M. Shapiro and P. Brumer, *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes*, Wiley, New York, 2003.
- 9 B. J. Sussman, D. Townsend, M. Yu. Ivanov and A. Stolow, *Science*, 2006, **314**, 278.
- 10 J. González-Vázquez, I. R. Sola, J. Santamaria and V. S. Malinovsky, *Chem. Phys. Lett.*, 2006, **431**, 231.
- 11 R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher and M. E. Geusic, *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **59**, 1092.
- 12 G. N. Gibson, R. R. Freeman and T. J. McIlrath, *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69**, 1904.
- 13 K. J. LaGattuta, *Phys. Rev. A: At., Mol., Opt. Phys.*, 1993, **47**, 1560.
- 14 W. Nicklich, H. Kumpfüller, H. Walther, X. Tang, H. Xu and P. Lambropoulos, *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69**, 3455.
- 15 M. Krug, T. Bayer, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S. S. Ivanov and N. V. Vitanov, *New J. Phys.*, 2009, **11**, 105051.
- 16 N. A. Hart, J. Strohaber, A. A. Kolomenskii, G. G. Paulus, D. Bauer and H. A. Schuessler, *Phys. Rev. A*, 2016, **93**, 063426.
- 17 N. A. Hart, J. Strohaber, G. Kaya, N. Kaya, A. A. Kolomenskii and H. A. Schuessler, *Phys. Rev. A: At., Mol., Opt. Phys.*, 2014, **89**, 053414.
- 18 H. Hellmann, *J. Chem. Phys.*, 1935, **3**, 61.
- 19 M. Z. Milošević and N. S. Simonović, *Phys. Rev. A: At., Mol., Opt. Phys.*, 2015, **91**, 023424.
- 20 J. E. Sansonetti, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 2008, **37**, 1659.
- 21 M. J. Seaton, *Mon. Not. R. Astron. Soc.*, 1958, **118**, 504.
- 22 A. Präkelt, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran and T. Baumert, *Phys. Rev. A: At., Mol., Opt. Phys.*, 2004, **70**, 0634707.
- 23 A. Assion, T. Baumert, J. Helbing, V. Seyfried and G. Gerber, *Chem. Phys. Lett.*, 1996, **259**, 488.
- 24 A. Askar and A. S. Cakmak, *J. Chem. Phys.*, 1978, **68**, 2794.
- 25 J. Mitroy, M. S. Safronova and C. W. Clark, *J. Phys. B: At., Mol. Opt. Phys.*, 2010, **43**, 202001.
- 26 S. Lee, J. Lim, C. Y. Park and J. Ahn, *Opt. Express*, 2011, **19**, 2266.

Wave-packet analysis of strong-field ionization of sodium in the quasistatic regime[★]

Andrej Bunjac, Duška B. Popović, and Nenad S. Simonović^a

Institute of Physics, University of Belgrade, P.O. Box 57, 11001 Belgrade, Serbia

Received 30 December 2015

Published online 24 May 2016 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2016

Abstract. Strong field ionization of the sodium atom in the tunnelling and over-the-barrier regimes is studied by examining the valence electron wave-packet dynamics in the static electric field. The lowest state energy and the ionization rate determined by this method for different strengths of the applied field agree well with the results obtained using other methods. The initial period of the nonstationary decay after switching the field on is analyzed and discussed. It is demonstrated that, if the Keldysh parameter is significantly lower than one (quasistatic regime), the probability of ionization by a laser pulse can be obtained from the static rates.

1 Introduction

Interaction of atoms with strong laser fields results in a number of interesting phenomena like the above threshold ionization, high harmonic generation, atomic stabilization, non-sequential double ionization, etc. (for a review see e.g. Ref. [1] and references therein) that are unexpected from the point of view of a standard perturbative treatment. Such a treatment is in principle applicable in the case of single photon processes when the ionization rate is large even at low field intensities. It can be used partially to study multiphoton processes, but it is not applicable at sufficiently large intensities. Particularly, a more accurate approach is necessary in the case when it comes to tunnel ionization as the field becomes comparable to the atomic potential. Then the field distorts the atomic potential forming a potential barrier through which the electron can tunnel. The limiting case of this process, when the barrier is suppressed below the energy of the atomic state, is usually referred to as over-the-barrier ionization (OBI). The transition between multiphoton and tunnelling regimes is governed by the Keldysh parameter $\gamma = \omega/\omega_t$ [2], where $\omega_t^{-1} \equiv T_t = (2I_p)^{1/2}/F$ is the so-called tunnelling time and ω , F and I_p are the frequency of electromagnetic field, the peak value of electric component of the field and the ionization potential of the atom, respectively (for the sake of simplicity here and thereafter we use the atomic system of units: $e = m_e = \hbar = 4\pi\epsilon_0 = 1$). This parameter characterizes the degree of adiabaticity of the motion

through (over) the barrier: if $\gamma \gg 1$ (low-intensity/short-wavelength limit) the multiphoton ionization dominates, whereas for $\gamma \ll 1$ (high-intensity/long-wavelength limit) the tunnel ionization or OBI does. An overview of different strong-field ionization regimes can be found e.g. in reference [3].

Tunnel ionization is successfully described by the semiclassical theory due to Ammosov, Delone and Krainov (ADK) [4]. It is based on two approximations: (i) the single-electron description of tunnelling; and (ii) the quasistatic approximation. The first approximation uses the fact that most many-electron atoms can be treated as nearly hydrogenic when one of their electrons finds itself away from the core. In this single-electron picture, quantum numbers will become nonintegers. Replacing the integer quantum numbers in the rate formula for one-electron (hydrogenic) atoms [5] by these effective values one obtains the ionization rate for a given atom. The quasistatic approximation assumes that for $\gamma \ll 1$ the electric field changes slowly enough that the static tunnelling rate can be calculated for each instantaneous value of the field. Then the tunnelling rate for the alternating field can be obtained by averaging the static rates over the field period. The ADK theory accurately predicts tunnelling rates in experiments with atomic ionization in strong fields [6,7]. It also shows excellent agreement with numerical calculations in the low field limit of the tunnelling regime, i.e. for the field strengths much below the OBI domain (for hydrogen and helium see Refs. [8,9]).

Even for atoms with low ionization potentials like alkali metals, for which the tunnelling regime is reduced to a narrow interval of relatively weak fields, the ADK tunnelling rates with a correction which accounts for the Stark shift of the ground state energy agree well with numerical results obtained by the so-called complex-rotation

[★] Contribution to the Topical Issue “Advances in Positron and Electron Scattering”, edited by Paulo Lima-Vieira, Gustavo Garcia, E. Krishnakumar, James Sullivan, Hajime Tanuma and Zoran Petrovic.

^a e-mail: simonovic@ipb.ac.rs

method [10]. In the OBI domain, however, these results differ significantly and, in the absence of adequate experimental data, a check of their accuracy is welcome. In this paper we calculate the lowest state energy and ionization rate of the sodium atom in a quasistatic field as functions of the field strength by applying a wavepacket propagation technique. In addition, contrary to the complex-rotation method used in reference [10], wavepacket methods provide information about the wave function behaviour for the entire duration of the ionization process, particularly in the initial period when the decay is still nonstationary.

The paper is organized in the following way. In the next section we introduce a single electron model for the sodium atom (valence electron + atomic core) and study the strong field ionization regimes (tunnelling and OBI) in the quasistatic approximation. A time-dependent method is briefly described in Section 3. In Section 4 the results for the lowest state energies and ionization rates for sodium obtained by this method are compared with the results provided by other methods. In the same section the initial period of the nonstationary decay is analysed and discussed. Finally, it is demonstrated how the ionization probability for a given laser pulse can be obtained from the static rates.

2 The model

Chemical and optical properties of atoms depend mainly on the dynamics of the valence electrons. Particularly, in the case of alkali-metal atoms a single valence electron moves in an orbital outside a core which consists of closed shells with the total orbital momentum and spin equal to zero. Compared to the core electrons, the valence electron is weakly bound and can be considered as moving in an effective core potential (ECP) $V_{\text{core}}(r)$, which at large distances r approaches the Coulomb potential $V_C = -1/r$ (the total charge of the core for alkali is 1). The ECP is usually calibrated to produce the value $E_{\text{gr}} = -I_p$ for the ground-state energy (for sodium $I_p = 5.1391 \text{ eV} = 0.18886 \text{ a.u.}$ [11]). The energies of single-electron excitations can be represented by the Rydberg-like formula $E_{nl} = -1/2n^{*2}$, where $n^* = n - \mu_{nl}$ is the effective principal quantum number and μ_{nl} are the corresponding quantum defects. Here $n \geq n_0$, where n_0 is the lowest value of the principal quantum number n of the valence electron. The effective principal quantum number that corresponds to the ground state is therefore $n^* = (2I_p)^{-1/2}$ (for sodium $n_0 = 3$ and $n^* = 1.6271$).

One of the simplest ECP models applicable for alkali metal atoms is the Hellmann's pseudopotential [12] (see Fig. 1a)

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

The parameters A and a for a given atom are not uniquely determined and one can find various values proposed by different authors in reference [13,14]. For sodium, we shall use the values $A = 21$ and $a = 2.54920$ from reference [10]

with which the potential (1) reproduces exactly its ionization potential and, as close as possible, the eigenenergies of the lowest two excited states.

Using this single-electron model we study the sodium atom under the influence of a quasistatic electric field. Here we assume that the field effects to core electrons can be neglected. This so-called frozen core approximation, is good if the field is not extremely strong. Then, the dynamics of the valence electron of sodium atom in a (quasi)static electric field F is described by Hamiltonian

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2} + V(\mathbf{r}), \quad (2)$$

where

$$V(\mathbf{r}) = V_{\text{core}}(r) - Fz \quad (3)$$

denotes the total potential energy. Due to the axial symmetry of the problem the z -projection of the orbital momentum l_z is an integral of motion (i.e. m is a good quantum number) and it is convenient to express all dynamical quantities in cylindrical coordinates.

The core potential and the external electric field in the total potential (3) form a potential barrier with the saddle point at the z -axis. Both the position of this point $z = z_{\text{sp}}$ (given the rule $(\partial V/\partial z)_{x=y=0} = 0$) and its height $V_{\text{sp}} = V(\mathbf{r}_{\text{sp}})$ depend on the field strength (see Figs. 1b and 1c). Since the electron can tunnel through or escape over the barrier, the atom has a nonzero probability of ionizing, even when the saddle point is well above the bound state. Thus, all states of the system described by Hamiltonian (2) have a resonant character. We shall consider here the resonance with the lowest energy. As the valence electron of an alkali-metal atom in the ground state (when $F = 0$) has its orbital and magnetic quantum numbers $l = m = 0$, the lowest resonance will be characterized by $m = 0$.

If the field is not too strong, the energy of the lowest state $E(F)$ lies below the saddle point of the barrier (see Fig. 1b) and the electron can ionize by tunnelling through the barrier. By increasing the field strength the saddle point shifts down and for strengths larger than a specific value F_s it is suppressed below the energy $E(F)$ (see Fig. 1c). Then OBI occurs. From the quantum mechanical point of view, however, there is not an essential difference between these two kinds of ionization processes.

The value of the field strength $F = F_s$ which separates the tunnelling and OBI regimes is defined by the condition $E(F) = V_{\text{sp}}(F)$. This value for sodium (but also for other alkali) is small enough that the core potentials at distances $r = |z_{\text{sp}}(F_s)|$ can be well approximated by the pure Coulomb potential [10]. Then $z_{\text{sp}} = 1/\sqrt{F}$, $V_{\text{sp}} = -2\sqrt{F}$ and the separating value F_s is the solution of equation $E(F) = -2\sqrt{F}$. By taking $E(F) \approx E(0) = -I_p$ one obtains $F_s \approx I_p^2/4 = 0.00892$.

A more accurate value for F_s can be obtained by taking into account the Stark shift of the lowest energy level. For $F \ll 1$ the Stark shift can be expanded in a Maclaurin series $\Delta E = -\alpha F^2/2! - \gamma F^4/4! - \dots$, where the first two coefficients, α and γ , are known as the dipole polarizability and the second dipole hyperpolarizability, respectively.

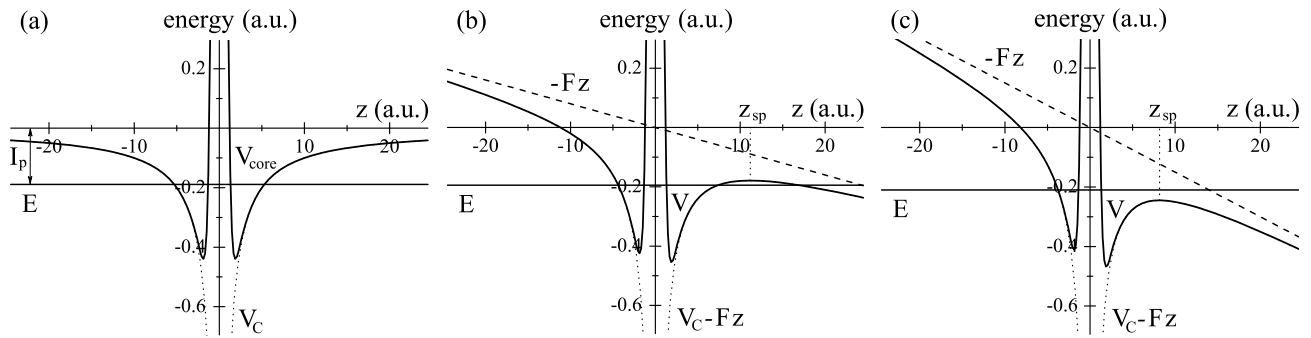


Fig. 1. Potential energy $V = V_{\text{core}}(r) - Fz$ (i.e. its $x = y = 0$ cut – full lines) and the lowest energy level E (horizontal full lines) of the valence electron of sodium atom for three different strengths of applied electric field: (a) $F = 0$, (b) $F = 0.008$ a.u. and (c) $F = 0.015$ a.u. The effective core potential $V_{\text{core}}(r)$ is represented by the Hellmann's pseudopotential (1). The cases (b) and (c) correspond to the tunnelling and OBI regimes, respectively. For comparison, the sums (dotted lines) of the Coulomb potential $V_C = -1/r$ and the corresponding field contributions $-Fz$ (dashed lines) are shown in the same graphs.

Thus

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

For sodium $\alpha = 162.7 \pm 0.8$ [15] and $\gamma = (9.56 \pm 0.48) \times 10^5$ [16]. The solution of equation $E(F) = -2\sqrt{F}$ with expansion (4) is $F_s = 0.00969$. The laser peak intensity that corresponds to this field strength is about 3.3×10^{12} W/cm².

Note that, since the core potential $V_{\text{core}}(r)$ approaches $V_C(r)$ in the domain $r > |z_{\text{sp}}(F_s)|$, the value F_s essentially does not depend on the ECP model. For the same reason the shape of the potential barrier and the ionization rate at weak fields (tunnelling regime) are almost independent on the form of the core potential. Thus, although there are more accurate ECP models for alkali-metal atoms, in the present analysis we are limited to the Hellmann pseudopotential as one of the simplest.

Recall that the ADK theory, which is also based on a single-electron approach, assumes the above mentioned insensitivity to the core potential. In this theory the ionization rate is given in terms of the ionization potential, quantum numbers of the atomic state and the field strength [4]. For alkali-metal atoms in the ground state the valence electron is characterized by $l = m = 0$ and the ADK formula (the variant for static fields) reduces to

$$w = |C_{n^*0}|^2 I_p \left(\frac{2F_0}{F} \right)^{2n^*-1} e^{-\frac{2F_0}{3F}}, \quad (5)$$

where $n^* = (2I_p)^{-1/2}$, $F_0 = (2I_p)^{3/2}$, and $|C_{n^*0}|^2 = 2^{2n^*} / [n^* \Gamma(n^* + 1) \Gamma(n^*)]$. Since for alkali metals the energy of the lowest state changes rapidly with F , the ADK rates can be significantly improved by applying the correction $I_p \rightarrow -E(F) = I_p - \Delta E(F)$ in (5), which accounts for the Stark shift [10].

3 The method

Resonant states can be studied efficiently using a time-dependent approach. For a known initial state wave function $\psi(\mathbf{r}, 0)$ one can obtain the wave function $\psi(\mathbf{r}, t)$

at an arbitrary time t by solving the time-dependent Schrödinger equation (TDSE). In practice this is done by taking an adequate representation of the evolution operator $U(t, t + \Delta t)$ and integrating numerically the relation $\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = U(t, t + \Delta t)\psi(\mathbf{r}, t)$ with a sufficiently small time step Δt .

To study the evolution of the ground state of sodium atom after the field is switched on, we chose for the initial function $\psi(\mathbf{r}, 0)$ the lowest eigenstate of Hamiltonian (2) when $F = 0$ (i.e. the unperturbed ground state wave function of sodium within the single-electron model) and calculate its evolution at a given field strength $F > 0$ by the use of the second-order-difference (SOD) scheme [17]

$$\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = \psi(\mathbf{r}, t - \Delta t) - 2i\Delta t H\psi(\mathbf{r}, t) \quad (6)$$

that is for this purpose adapted for cylindrical coordinates. Due to the axial symmetry of the system described by the Hamiltonian (2) this observable as well as the electron's wave function do not depend on the azimuthal angle and the dynamics reduces to two degrees of freedom (ρ and z).

The energy spectrum for a given system can be obtained from the autocorrelation function

$$c(t) = \langle \psi(0) | \psi(t) \rangle \quad (7)$$

by calculating its power spectrum (i.e. $|\text{FT}[c(t)]|^2$, where $\text{FT}[c(t)]$ is the Fourier transform of $c(t)$). In this spectrum resonances appear as (approximate) Lorentzian profiles containing the information about their positions (E) and widths (Γ). If the power spectrum contains only one resonance (depending on the choice of the initial state) one has $|c(t)|^2 = e^{-wt}$, where $w = \Gamma/\hbar$ is the corresponding decay rate (hereafter we put $\hbar = 1$). Then Γ (or w) can be determined more precisely by calculating the gradient of $\ln(|c(t)|^2)$. This method will be used here to obtain the widths of the lowest state of sodium at different field strengths.

4 Results and discussion

The function $\ln(|c(t)|^2)$ for the sodium atom at different values of the applied electric field, calculated using the

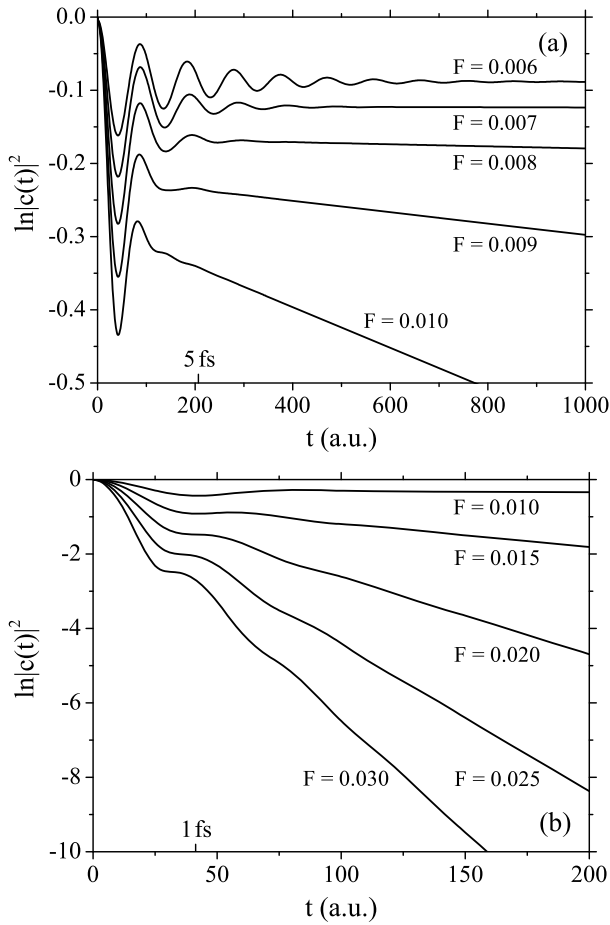


Fig. 2. Functions $\ln |c(t)|^2$ calculated for the sodium atom at different strength of the static electric field F , corresponding to: (a) the tunnelling and (b) OBI regime. The initial state $\psi(0)$ used in the autocorrelation function $c(t) = \langle \psi(0) | \psi(t) \rangle$ is the unperturbed ground state of the free atom.

model and the method described in Sections 2 and 3, respectively, is shown in Figure 2. During an initial period of the nonstationary decay the function shows damping oscillations whose relaxation time decreases by increasing the field strength. This behaviour is a consequence of the fact that the chosen initial wave function – the ground state of the unperturbed atom – is not a stationary state when the field is switched on (since in that case $V \neq V_{\text{core}}$) and behaves in the total potential as a wave packet. It can be treated as a superposition of eigenstates of Hamiltonian (2) at a given field strength F . The higher the energy of a composite eigenstate, the faster its decay through or over the potential barrier. Thus, at each reflection from the potential barrier a part of the wave packet transmits in the outer region and after some time it reduces to the lowest stationary state with a well-defined outgoing wave – the resonance wave function (see Fig. 3). This process is much faster in OBI (Fig. 2b) than in the tunnelling regime (Fig. 2a). At $F = F_s$ the duration of the nonstationary period is a few femtoseconds (1 fs = 41.34 a.u.).

Although the initial phase of the ionization process in a static field is not relevant for calculating the corre-

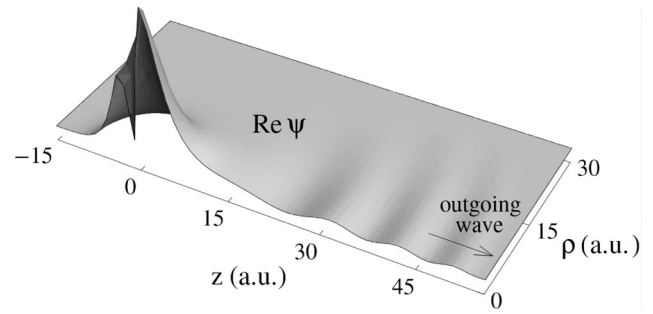


Fig. 3. The real part of the wave function $\psi(\mathbf{r})$ representing the lowest stationary state of sodium atom (the single-electron model) in the electric field of strength $F = 0.01$ a.u. This resonant state is determined by the time-propagation of the field-free sodium ground state in the total potential (3) until the state becomes stationary in the later ($t \approx 400$ a.u.).

sponding rate (we get it from $|c(t)|^2$ in the asymptotic domain), note that instant switching the field on at $t = 0$ is not a realistic situation either in the case of a static field or for laser beams. For this reason we examine the behaviour of function $|c(t)|^2$ when the field is switched on gradually. We consider the saturation function of the form $F(t) = F_{\text{stat}}[1 - \exp(-t/\tau)]$, which describes the process of establishing the electric field between two parallel conducting plates (which act as a capacitor) when connected to a dc voltage source. The time constant τ is determined by the circuit parameters. For example, if the total resistance and capacity are $R = 0.1 \Omega$ and $C = 1$ pF, respectively, then $\tau = RC = 100$ fs. The adiabaticity of switching the field in comparison with the tunnelling process can be expressed by the ratio T_t/τ (in analogy with the Keldysh parameter for ac fields). It is found that for $T_t/\tau \ll 1$ the oscillations are almost suppressed and the function $|c(t)|^2$ takes the exponentially decreasing form after the period of a few τ (see Fig. 4).

The lowest state energy and width (ionization rate) for the sodium atom in the static electric field, calculated by the wave-packet method, are shown in Table 1 for different field strengths, together with the values obtained recently by the complex-rotation method [10]. The results are in a good agreement in the field domain considered $F \in (0, 0.03)$. The numerical values from Table 1 are shown in Figure 5 together with the analytical estimations for energies and rates based on the Stark shift expansion and the ADK theory, respectively. The lowest state energy formula (4), which accounts for the Stark shift expansion up to the fourth order, agrees with numerical results approximately for $F < 1.75F_s$ (see Fig. 5a). The ionization rate obtained using the corrected ADK formula (see the last paragraph in Sect. 2) is in a very good agreement with numerical values in the tunnelling domain ($F < F_s$, see Fig. 5b).

Finally, we demonstrate that in the quasistatic regime ($\gamma \ll 1$) the ionization probability for the atom irradiated by a laser pulse can be accurately determined from the static rates. At the field strength $F = F_s$ the condition $\gamma \ll 1$ is fulfilled for sodium at wavelengths $\lambda \gg 3 \mu\text{m}$,

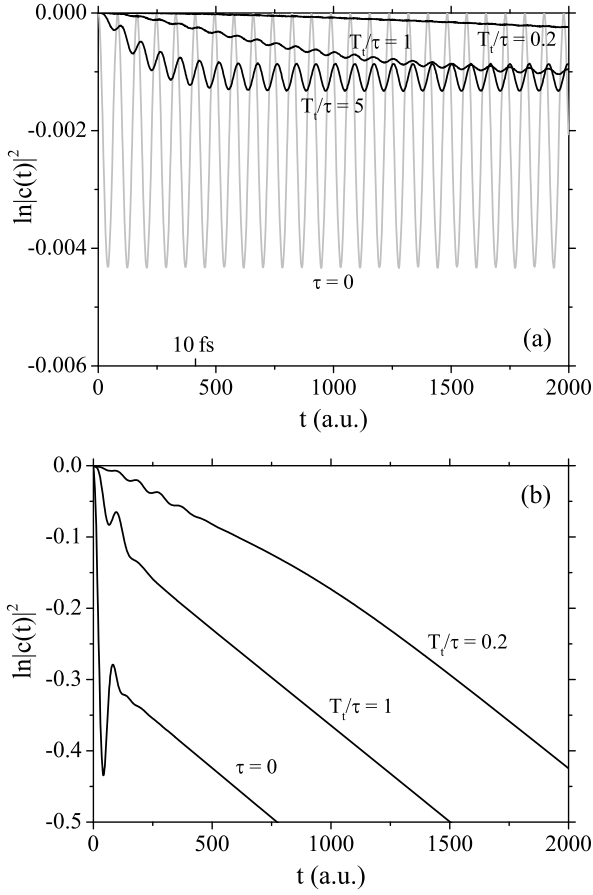


Fig. 4. Functions $\ln|c(t)|^2$ for the sodium atom in the gradually switched electric field on (see the text) of the strength: (a) $F_{\text{stat}} = 0.001$ a.u. ($=5.14$ MV/cm, $T_i = 614.6$ a.u.) and (b) $F_{\text{stat}} = 0.01$ a.u. ($=51.4$ MV/cm, $T_i = 61.46$ a.u.) for different values of the time constant τ .

whereas in the tunnelling domain λ must be even longer. We consider the linearly polarized laser pulse of the form

$$F(t) = \begin{cases} F_{\text{peak}} \sin^2(\pi t/T_p) \cos(2\pi t/T_c), & 0 < t < T_p \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (8)$$

and take the peak value of field strength $F_{\text{peak}} = 0.01$ a.u. (i.e. the laser peak intensity $\approx 3.5 \times 10^{12}$ W/cm²) that is close to the F_s value. We choose the optical cycle period $T_c = 1931$ a.u. (≈ 46.7 fs, $\lambda = 14$ μ m) that provides $\gamma = 0.2$ and the total pulse duration of four optical cycles ($T_p = 4T_c$). The quasistatic rate $w(F(t))$ for this pulse, obtained using the corrected ADK formula (see Eq. (5) and the text below), is shown in Figure 6a. In part (b) of the same figure the corresponding ionization probability $P_{\text{ion}}^{(\text{qs})} = \int_0^t w(F(t)) dt$ (quasistatic approximation) is compared to formula $P_{\text{ion}} = 1 - |c(t)|^2$, where $c(t)$ is the autocorrelation function obtained by solving the TDSE for the total potential (3) with the alternating field $F(t)$ of the form equation (8) (the expression for P_{ion} is the special case of general formula (see e.g. Eq. (4.28) in Ref. [18]) when the occupation probabilities for excited

Table 1. The comparison between the lowest state energies E and widths Γ of sodium obtained by the wave packet (WP) and the complex rotation (CR) method within the single-electron picture for different strengths of applied electric field F .

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

atomic states are almost zero, which is the case in this example). Functions $P_{\text{ion}}^{(\text{qs})}(t)$ and $P_{\text{ion}}(t)$ are significantly different during the laser pulse because the former represents the probability of transition from the initial atomic state to the asymptotic continuum state (outgoing wave), whereas the latter is the probability of transition from the initial state to any unbound state, including those when the electron is temporary ejected and recaptured in the next half-cycle of the field. These two functions, however, approach each other whenever the field becomes zero and this fact allows us to determine the total ionization probability (when the pulse is over) from the static rates. The difference between $P_{\text{ion}}(T_p)$ and $P_{\text{ion}}^{(\text{qs})}(T_p)$ in this example

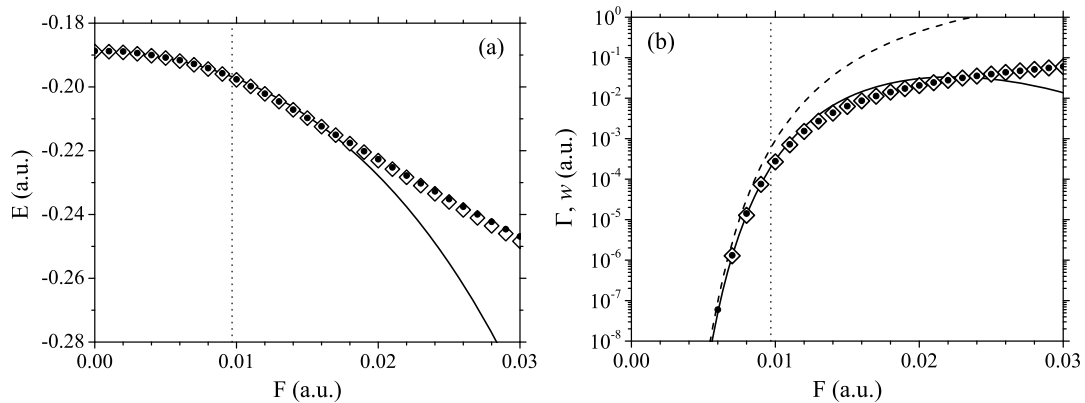


Fig. 5. The energies (a) and widths (b) of the lowest state of the sodium atom at different strengths of applied electric field. The results obtained by the wave-packet propagation method (present work) are marked by full circles. For comparison, the corresponding results obtained by the complex-rotation method [10] are shown (open ‘diamonds’). In addition, the lowest state energy as a function of the field strength determined by the 4th order expansion formula (4) (full line) is shown in part (a), and the ionization rates determined by the original ADK formula (5) (dashed line) as well as by the ADK formula with the Stark shift correction (4) (full line) are shown in part (b). Vertical dotted lines mark the field strengths F_s dividing the tunnelling and OBI areas.

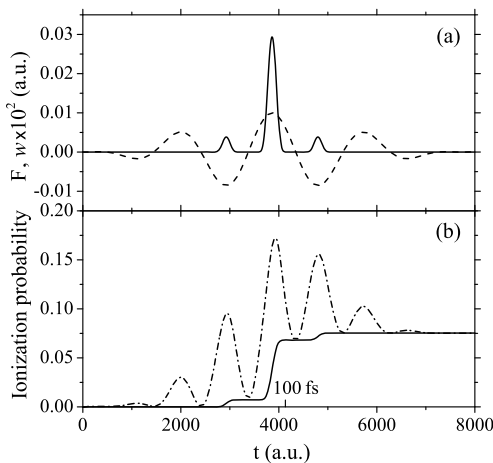


Fig. 6. (a) The laser pulse of the form (8) with $F_{\text{peak}} = 0.01$ a.u., $T_c = 1931$ a.u., $T_p = 4T_c$ (dashed line) and the corresponding quasistatic ionization rate $w(F(t))$ for sodium (full line). (b) The ionization probability determined by integrating the quasistatic rate (full line) and by solving the TDSE with the alternating field (8) exactly (dash-dot line).

($\gamma = 0.2$) is less than one percent, but it increases significantly for larger values of the Keldysh parameter.

We dedicate this paper to the occasion of Professor Michael Allan’s retirement, in recognition of his scientific contributions to the field of electron scattering. One of us (DBP) would also like to express her deep gratitude to Professor Michael Allan, her post-doc research supervisor, for his patient guidance, enthusiastic encouragement and useful critiques during her years working with him. This work was supported by the COST Action No. CM1204 (XLIC). We acknowledge support from the Ministry of Education, Science and Technological Development of Republic of Serbia under Project No. 171020.

References

1. P. Agostini, L.F. DiMauro, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **61**, 117 (2012)
2. L.V. Keldysh, *Sov. Phys. J. Exp. Theor. Phys.* **20**, 1307 (1965)
3. M. Protopapas, C.H. Keitel, P.L. Knight, *Rep. Prog. Phys.* **60**, 389 (1997)
4. M.V. Ammosov, N.B. Delone, V.P. Krainov, *Sov. Phys. J. Exp. Theor. Phys.* **64**, 1191 (1986)
5. L.D. Landau, E.M. Lifshitz, *Quantum Mechanics* (Pergamon Press, Oxford, 1991), p. 296
6. S. Augst, D.D. Meyerhofer, D. Strickland, S.L. Chin, *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 858 (1991)
7. W. Xiong, S.L. Chin, *Sov. Phys. J. Exp. Theor. Phys.* **72**, 268 (1991)
8. A. Scrinzi, M. Geissler, T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 706 (1999)
9. J.S. Parker, G.S.J. Armstrong, M. Boca, K.T. Taylor, *J. Phys. B* **42**, 134011 (2009)
10. M.Z. Milošević, N.S. Simonović, *Phys. Rev. A* **91**, 023424 (2015)
11. J.E. Sansonetti, W.C. Martin, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **34**, 1559 (2005)
12. H. Hellmann, *J. Chem. Phys.* **3**, 61 (1935)
13. G.A. Hart, P.L. Goodfriend, *J. Chem. Phys.* **53**, 448 (1970)
14. W.H.E. Schwarz, *J. Chem. Phys.* **54**, 1842 (1971)
15. J. Mitroy, M.S. Safronova, C.W. Clark, *J. Phys. B* **43**, 202001 (2010)
16. A.J. Thakkar, C. Lupinetti, *Atomic Polarizabilities and Hyperpolarizabilities: A Critical Compilation*, in *Atoms, Molecules, and Clusters in Electric Fields: Theoretical Approaches to the Calculation of Electric Polarizability*, edited by George Maroulis (Imperial College Press, 2006), p. 505
17. A. Askar, A.S. Cakmak, *J. Chem. Phys.* **68**, 2794 (1978)
18. F. Grossmann, *Theoretical Femtosecond Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 2008)

Calculations of photoelectron momentum distributions and energy spectra at strong-field multiphoton ionization of sodium^{*}

Andrej Bunjac, Duška B. Popović, and Nenad S. Simonović^a

Institute of Physics, University of Belgrade, P.O. Box 57, 11001 Belgrade, Serbia

Received 21 April 2017 / Received in final form 27 May 2017

Published online 8 August 2017 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2017

Abstract. Multiphoton ionization of sodium by a femtosecond laser pulse of 760 nm wavelength and different peak intensities is studied by inspecting the photoelectron angular and momentum distributions and the energy spectra. For this purpose a single-electron model of the atom interacting with the electromagnetic field is used, and the distributions are determined by calculating the evolution of the electron wave function. Beside the most prominent distribution maxima related to the four-photon ionization, the five-photon (above-threshold) ionization peaks are observed. Substructures in the main (nonresonant) maximum in the photoelectron spectra at the four-photon ionization are related to the resonantly enhanced multiphoton ionization via intermediate $4s$, $4f$, $5p$, $5f$ and $6p$ states.

1 Introduction

Interaction of strong laser fields with atoms may lead to their photoionization even when the single photon energy is lower than the ionization potential of atom. In that case the atom absorbs several photons simultaneously and this process is known as the multiphoton ionization (MPI, see e.g. Refs. [1–4]). Contrary to the single photon ionization, where the ionization rate is large even at very low intensities, the probability for multiphoton processes is much lower and they occur only at sufficiently strong fields. For this reason a perturbative treatment, which is a valid approach in describing the single photon ionization, in the case of MPI usually fails.

A clear indication of the non-perturbative regime in the interaction of an atom with the radiation is the so-called above threshold ionization (ATI), in which the atom absorbs more photons than the minimum required [5] (see also Refs. [1–4]). Another phenomenon of a particular interest is the resonantly enhanced multiphoton ionization (REMPI) [6] (see also Refs. [1–4]). It takes place if the MPI process occurs via an intermediate state whose excitation energy coincides with an integer multiple of the photon energy. Although these phenomena can be recognized in the photoelectron energy spectrum, for their deeper analysis it is recommended to calculate the photoelectron angular and momentum distributions (PAD and PMD) containing the information about multiphoton absorption pathways.

Here we study the MPI of the sodium atom induced by a short (10 fs) laser pulse of 760 nm wavelength. Using the single-electron model we calculate the PAD and PMD by solving numerically the time-dependent Schrödinger equation. At the considered wavelength at least four photons must be absorbed to ionize the atom and, depending on the laser intensity, the REMPI via several intermediate states may occur. A similar theoretical analysis, together with experimental results, has been reported earlier for lithium [7]. Recent measurements on sodium [8,9] revealed REMPI structures in its photoelectron spectra, stimulating the analysis presented in this paper.

In the next section we describe the model and in Section 3 consider the excitation and ionization schemes. A method for calculating the photoelectron angular and momentum distributions is briefly described in Section 4. In Section 5 we present the calculated distributions and analyze the photoelectron energy spectra. A summary is given in Section 6.

2 The model

Singly-excited states and the single ionization of the alkali-metal atoms are, for most purposes, described in a satisfactory manner using one-electron models. This follows from the structure of these atoms, which is that of a single valence electron moving in an orbital outside a core consisting of closed shells. In that case the valence electron is weakly bound and can be considered as moving in an effective core potential $V_{\text{core}}(r)$, which at large distances r approaches the Coulomb potential $-1/r$. One of the simplest models for the effective core potential, applicable

^{*} Contribution to the Topical Issue “Physics of Ionized Gases (SPIG 2016)”, edited by Goran Popovic, Bratislav Obradovic, Dragana Maric and Aleksandar Milosavljevic.

^a e-mail: simonovic@ipb.ac.rs

for the alkali-metal atoms, is the Hellmann pseudopotential [10] (in atomic units)

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

In the case of sodium the parameters $A = 21$ and $a = 2.54920$ [11] provide the correct value for the ionization potential $I_p = 5.1391 \text{ eV} = 0.18886 \text{ a.u.}$ and reproduce approximately the energies of singly-excited states [12] (deviations are less than 1%). The associated eigenfunctions are one-electron approximations of these states and have the form $\psi_{nlm}(\mathbf{r}) = R_{nl}(r)Y_{lm}(\Omega)$. Radial functions $R_{nl}(r)$ can be determined numerically by solving the corresponding radial equation.

Here we use the one-electron approach to study the single-electron excitations and the single ionization of the sodium atom in a strong laser field. Assuming that the field effects on the core electrons can be neglected (the so-called frozen-core approximation [11]), the Hamiltonian describing the dynamics of valence (active) electron of the sodium atom in an alternating electric field $F(t)$ reads (in atomic units)

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

We consider the linearly polarized laser pulse of the form

$$F(t) = F_{\text{peak}} \sin^2(\pi t/T_p) \cos \omega t, \quad 0 < t < T_p \quad (3)$$

(otherwise $F(t) = 0$). Here ω , F_{peak} and T_p are the frequency of the laser field, the peak value of its electric component and the pulse duration, respectively. Due to axial symmetry of the system the magnetic quantum number m of the valence electron is a good quantum number for any field strength. Since in the sodium ground state (when $F = 0$) the orbital and magnetic quantum numbers are equal to zero, in our calculations we set $m = 0$.

3 Excitation scheme and photoelectron excess energy

Figure 1 shows the lowest energy levels corresponding to singly-excited states of sodium and possible multiphoton absorption pathways during the interaction of the atom with a 760 nm laser radiation ($\omega = 0.06 \text{ a.u.}$). Generally, if the MPI occurs by absorbing N photons, the photoelectron excess energy in the weak field limit is

$$E_e^{(0)} = N\omega - I_p. \quad (4)$$

In a strong field case, however, the dynamic Stark shift of the ground state δE_{gr} , as well as that of the continuum boundary δE_{cont} , change effectively the ionization potential I_p to $I_p - \delta E_{\text{gr}}(F, \omega) + \delta E_{\text{cont}}(F, \omega)$ and E_e becomes dependent on the field strength. Using expression $\delta E_{\text{gr}} = -\alpha_{\text{gr}}(\omega)F^2/4$ for the ground state shift [13], in which the dynamic polarizability is approximated by its

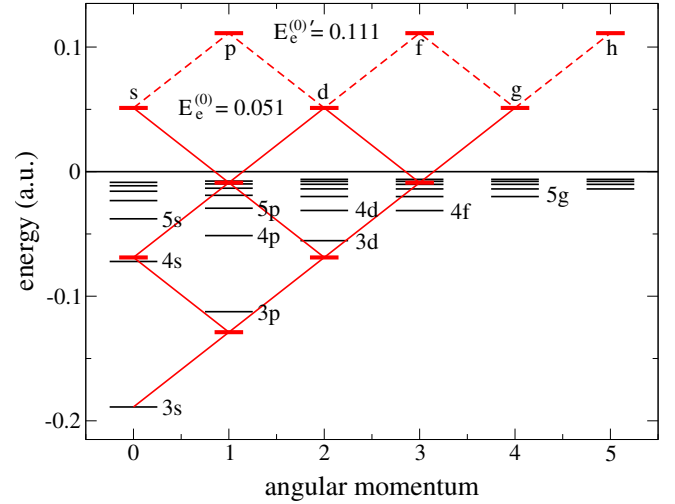


Fig. 1. Energy scheme of sodium showing the lowest singly excited states [12] and possible four-photon and five-photon (ATI) absorption pathways ($\omega = 0.06 \text{ a.u.}$) from the $3s$ ground state to the continuum.

static value (for sodium $\alpha_{\text{gr}}^{\text{stat}} = 162.7 \text{ a.u.}$ [14]), and relation $\delta E_{\text{cont}} \approx U_p$ for the continuum boundary shift [13], where $U_p = F^2/4\omega^2$ is the ponderomotive potential of electromagnetic field, the photoelectron excess energy is approximately given by formula

$$E_e = N\omega - [I_p + \frac{1}{4}(\alpha_{\text{gr}}^{\text{stat}} + \omega^{-2})F^2]. \quad (5)$$

The energy level diagram in Figure 1 illustrates that from the ground state ($3s$) at least four photons with $\omega = 0.06 \text{ a.u.}$ are required to reach the continuum. In the low-intensity regime, this nonresonant MPI is a dominating process and $E_e \approx E_e^{(0)} = 0.051 \text{ a.u.} = 1.39 \text{ eV}$. If five photons are absorbed, the photoelectron excess energy will be $E_e^{(0)'} = E_e^{(0)} + \omega = 0.111 \text{ a.u.} = 3.02 \text{ eV}$ (the first ATI peak). By increasing the field strength the excess energy E_e decreases, but on the other hand the REMPI via different intermediate states take place. The latter can be recognized as a substructure in the main (nonresonant) peak in the photoelectron spectrum. This spectrum can be obtained from the PMD, whose calculation is described in the next section.

4 Numerical method

The photoionization process is simulated by calculating the evolution of the initial wave function $\psi(\mathbf{r}, 0)$, which is the lowest eigenstate of Hamiltonian (2) at $t = 0$ (and $F = 0$), until a time $t > T_p$. This can be done by taking an adequate representation of the evolution operator $U(t, t + \Delta t)$ and integrating numerically the relation $\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = U(t, t + \Delta t)\psi(\mathbf{r}, t)$ with a sufficiently small time step Δt . Here we use the second-order-difference (SOD) scheme [15]

$$\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = \psi(\mathbf{r}, t - \Delta t) - 2i\Delta t H\psi(\mathbf{r}, t). \quad (6)$$

Since the system described by Hamiltonian (2) is axially symmetric, it is convenient to express the electron's wave function in cylindrical coordinates (ρ, φ, z) . If we write

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \Phi(\rho, z, t) \frac{e^{im\varphi}}{\sqrt{2\pi\rho}}, \quad (7)$$

equation (6) reduces to

$$\Phi(\rho, z, t + \Delta t) = \Phi(\rho, z, t - \Delta t) - 2i\Delta t \mathcal{H}\Phi(\rho, z, t), \quad (8)$$

where

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V_{\text{eff}}(\rho, z) \quad (9)$$

and

$$V_{\text{eff}} = \frac{m^2 - 1/4}{2\rho^2} + V_{\text{core}}(r) - F(t)z \quad (10)$$

with $r = (\rho^2 + z^2)^{1/2}$.

The second order derivatives of Φ (appearing in term $\mathcal{H}\Phi$ in Eq. (8)) are calculated using the finite-difference scheme

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} \right|_k &= \frac{1}{h^2} \left(-\frac{1}{560} f_{k-4} + \frac{8}{315} f_{k-3} - \frac{1}{5} f_{k-2} \right. \\ &\quad + \frac{8}{5} f_{k-1} - \frac{205}{72} f_k + \frac{8}{5} f_{k+1} \\ &\quad \left. - \frac{1}{5} f_{k+2} + \frac{8}{315} f_{k+3} - \frac{1}{560} f_{k+4} \right), \quad (11) \end{aligned}$$

where x_k and $f_k = f(x_k)$ ($k = 1, \dots, N$) are the values of variables x and f on a grid with spacing h . This method, however, fails at $\rho \rightarrow 0$ because there effective potential (10) with $m = 0$ behaves as $-1/8\rho^2$, where the solutions of the Schrödinger equation are $\Phi \sim \sqrt{\rho}$ and $\partial^2 \Phi / \partial \rho^2 \sim -\rho^{-3/2} \rightarrow -\infty$.

The problem can be regularized by introducing the function

$$u(\rho, z) = \Phi(\rho, z) / \sqrt{\rho} \quad (12)$$

which is slowly varying for values of ρ close to zero and the ρ -derivatives of u can be calculated with a sufficient accuracy. The corresponding values of $\partial^2 \Phi / \partial \rho^2$ are then obtained from the relation

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial \rho^2} = -\frac{u(\rho, z)}{4\rho^{3/2}} + \frac{1}{\rho^{1/2}} \frac{\partial u}{\partial \rho} + \rho^{1/2} \frac{\partial^2 u}{\partial \rho^2}. \quad (13)$$

The first-order derivatives are calculated using the scheme

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial f}{\partial x} \right|_k &= \frac{1}{h} \left(\frac{1}{280} f_{k-4} - \frac{4}{105} f_{k-3} + \frac{1}{5} f_{k-2} - \frac{4}{5} f_{k-1} \right. \\ &\quad \left. + \frac{4}{5} f_{k+1} - \frac{1}{5} f_{k+2} + \frac{4}{105} f_{k+3} - \frac{1}{280} f_{k+4} \right). \quad (14) \end{aligned}$$

The presented approach gives the best results if we use function (12) when $\rho \leq \rho_c$, where ρ_c is a distance of the order of Bohr radius, and calculate derivatives of Φ

directly for $\rho > \rho_c$. In our calculation the wave functions are represented by $N_\rho \times N_z = 1024 \times 2048$ discrete values on the grid covering the area $0 < \rho < 500$ a.u., -500 a.u. $< z < 500$ a.u. In order to suppress the edge effects such as reflection, an absorbing potential have been added at outer part of the area.

The momentum distribution of photoelectrons is determined from the electron probability density in the momentum space $|\bar{\psi}(\mathbf{k}, t)|^2$ at $t > T_p$. In order to make this distribution well visible, it is important to separate the outgoing wave $\psi_{\text{out}}(\mathbf{r}, t)$ from the inner (bound) part of the wave function. This can be done by propagating the wave function until the time when the overlap between these two parts becomes insignificant. The transformation of the outgoing wave from the coordinate to momentum representation is done by the Fourier transform. In our case, due to axial symmetry of the problem, it is not necessary to calculate the full 3D Fourier transform. The momentum distribution in the (k_ρ, k_z) -subspace can be obtained directly from the function $\psi_{\text{out}}(\rho, z)$ by the transformation

$$\bar{\psi}(k_\rho, k_z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} dz e^{-ik_z z} \int_0^{\infty} \rho d\rho J_0(k_\rho \rho) \psi(\rho, z), \quad (15)$$

where J_0 is the Bessel function of the first kind of order zero. The integral in terms of z -coordinate, which appears in this expression, can be evaluated by applying the FFT algorithm.

The photoelectron energy spectrum can be obtained by averaging the probability distribution $|\bar{\psi}(k_\rho, k_z, t)|^2$ at a time $t \gg T_p$ along semicircles $k_\rho^2 + k_z^2 = 2E_e$ corresponding to different photoelectron excess energies E_e .

5 Results

5.1 Angular and momentum distributions

We consider the photoionization of the sodium atom by 760 nm ($\omega = 0.06$ a.u.) laser pulse of the form (3) and 10 fs duration ($T_p = 413.4$ a.u.) for three values of the field strength: $F = 0.007, 0.01$ and 0.015 a.u. (the corresponding laser peak intensities are: 1.72, 3.51 and 7.90 TW/cm²).

Figure 2 shows the probability distribution $|\psi(\mathbf{r}, t)|^2$ of the active (valence) electron at $t = 1000$ a.u. and $t = 1200$ a.u. for the strength $F = 0.007$ a.u. The outgoing wave determines the PAD. Apart from the strong emission along the laser polarization direction ($\vartheta = 0^\circ$ and 180°) the distribution also shows maxima at $\vartheta \approx 45^\circ$, $\vartheta = 90^\circ$ and $\vartheta \approx 135^\circ$. The observed PAD relates to a superposition of the accessible emitted partial waves. In the case of four-photon absorption s, d and g partial waves can be emitted (see Fig. 1). The nodal structure of the outgoing wave in Figure 2 indicates that in this case the g partial wave is dominant (four-minima/five-maxima), i.e. the main pathway goes via F -states. This conclusion is in agreement with the nodal structure of the inner (bound) part of wave function (having four maxima), indicating

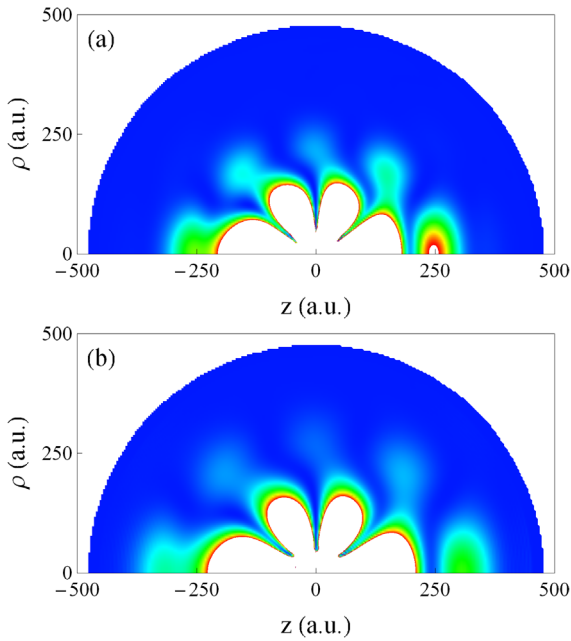


Fig. 2. Probability distribution $|\psi(\mathbf{r}, t)|^2$ of the active electron of sodium atom irradiated by the 10 fs duration laser pulse of the form (3) with $\omega = 0.06$ a.u. and $F = 0.007$ a.u. at: (a) $t = 1000$ a.u. and (b) $t = 1200$ a.u. The outgoing wave (with five maxima) determines the photoelectron angular distribution.

that, when the pulse is over, ionized atoms are in a coherent state with a significant contribution of F -states.

The PMD shows a similar structure as the PAD, but the maxima are located at semicircles of radius $k_e \approx k_e^{(0)} \equiv (2E_e^{(0)})^{1/2} = 0.32$ a.u. Shortly after the ionization, when photoelectrons did not yet reach the asymptotic area, their momenta are larger than $k_e^{(0)}$ (see Fig. 3a), but later they approach the asymptotic value (Fig. 3b). The remaining difference ($k_e - k_e^{(0)} \approx -0.02$ a.u.) can be attributed to the dynamic Stark shift.

Besides the MPI with four photons, in Figure 3 the ATI structure related to the five-photon absorption can be observed. In the later case, according to the energy level diagram in Figure 1, the photoelectron momentum in the weak field limit is $k_e^{(0)'} \equiv (2E_e^{(0)'})^{1/2} = 0.47$ a.u. and p , f and h partial waves can be emitted. The ATI structure in Figure 3 is indeed located near $k_e^{(0)'}$ and contains five minima which is a feature of h waves. It is noticed that ATI peaks are more prominent shortly after the end of the pulse (compare Figs. 2a and 2b). This feature may be explained by the fact that the electrons which absorb more photons than required have larger momenta ($k_e' > k_e$) and, thus, escape faster.

5.2 Resonantly enhanced multiphoton ionization of sodium

Freeman et al. [6] have shown that when atomic states during the laser pulse transiently shift into resonance, they can be energetically resolved in the photoelectron spec-

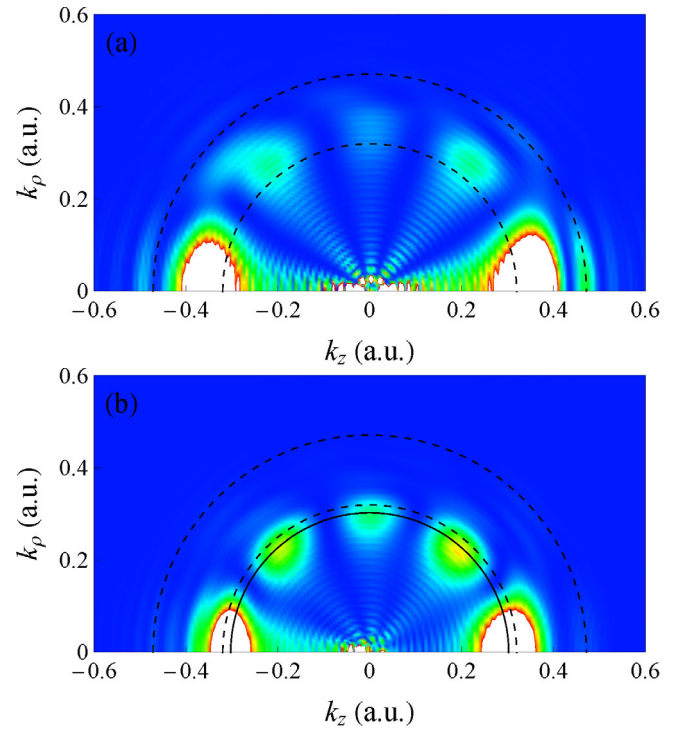


Fig. 3. The photoelectron momentum distribution for the process shown in Figure 2 at: (a) $t = 800$ a.u. and (b) $t = 1000$ a.u. Dashed semicircles denote the expected values of the momentum for the four-photon (MPI) and five-photon (ATI) processes in the weak field limit ($k_e^{(0)} \equiv (2E_e^{(0)})^{1/2} = 0.32$ a.u. and $k_e^{(0)'} \equiv (2E_e^{(0)'})^{1/2} = 0.47$ a.u.). The full semicircle corresponds to the photoelectron momentum at the four-photon ionization when the dynamic Stark shifts of the ground state and the ionization boundary (see Eq. (5)) are taken into account ($k_e \equiv (2E_e)^{1/2} = 0.30$ a.u.).

trum (electron yield versus excess energy). For a pulse of the form (3) the envelope field strength varies from zero to F_{peak} and back, and if an intermediate state shifts into resonance at a strength $F \leq F_{\text{peak}}$ (this happens two times during the pulse), the photoelectron yield will increase and one can observe a REMPI peak at the corresponding value of E_e .

The positions of REMPI peaks can be predicted using recently calculated data for resonant dynamic Stark shift for sodium [16] shown in Figure 4. One can see that for 760 nm laser radiation sodium states $4s$, $4f$, $5p$, $5f$ and $6p$ shift into resonance with an integer multiple of the laser frequency (2ω and 3ω) at different values of F , given in Table 1. Then, the energies related to REMPI peaks are obtained from equation (5) for these values of field strength.

The photoelectron spectra at three values of the field strength, obtained from the PMD are shown in Figure 5. The agreement between the values for E_e from Table 1 and the positions of maxima in the spectra confirms that the substructures (local maxima) in the main (non-resonant) four-photon-absorption maximum are related to the REMPI via corresponding intermediate states (2+2 REMPI via $4s$ state and 3+1 REMPI via $4f$, $5p$, $5f$, $6p$

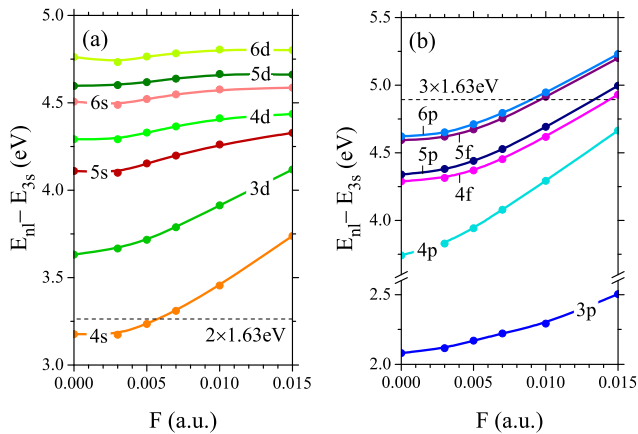


Fig. 4. The field-strength dependence of excited state energies E_{nl} relative to the ground state energy E_{3s} for the sodium atom in the laser field of frequency $\omega(F)$ under the K -photon resonance condition [$E_{nl}(\omega, F) - E_{3s}(\omega, F) = K\omega$]: (a) $K = 2$, (b) $K = 1$ (for $nl = 3p$) and $K = 3$ [16]. Horizontal dashed lines in parts (a) and (b) mark the two- and three-photon energies, respectively, for the laser field of 760 nm wave length.

Table 1. The values for laser field strength (electric component), laser intensity and photoelectron excess energy which characterize the resonant K -photon excitation of sodium states $4s$, $4f$, $5p$, $5f$ and $6p$ and subsequent ionization by 760 nm laser field ($\omega \approx 1.63$ eV).

Sate	K	F (a.u.)	Intensity (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

states). During the laser pulse with $F_{\text{peak}} = 0.007$ a.u. only $4s$ state transiently shifts into resonance (see Fig. 5a), but for the pulses with $F_{\text{peak}} = 0.01$ a.u. and $F_{\text{peak}} = 0.015$ a.u. this happens also with $5f$ and $6p$ states (Fig. 5b) and additionally with $4f$ and $5p$ states (Fig. 5c), respectively.

6 Summary

Multiphoton ionization of sodium by a femtosecond laser pulse of 760 nm wavelength and different peak intensities is studied by calculating the PAD, the PMD and the photoelectron energy spectra. The distributions are determined by applying the single-electron model, where the valence electron moves in an effective core potential and the external electromagnetic field, and calculating the evolution of the electron wave function until a time after the end of the pulse.

By inspecting the positions of maxima in the PAD and PMD, it is confirmed that s , d and g partial waves are emitted when four photons are absorbed, and p , f and h waves in the case of five-photon ionization (ATI). The g -wave is dominant in the former and the h -wave in the

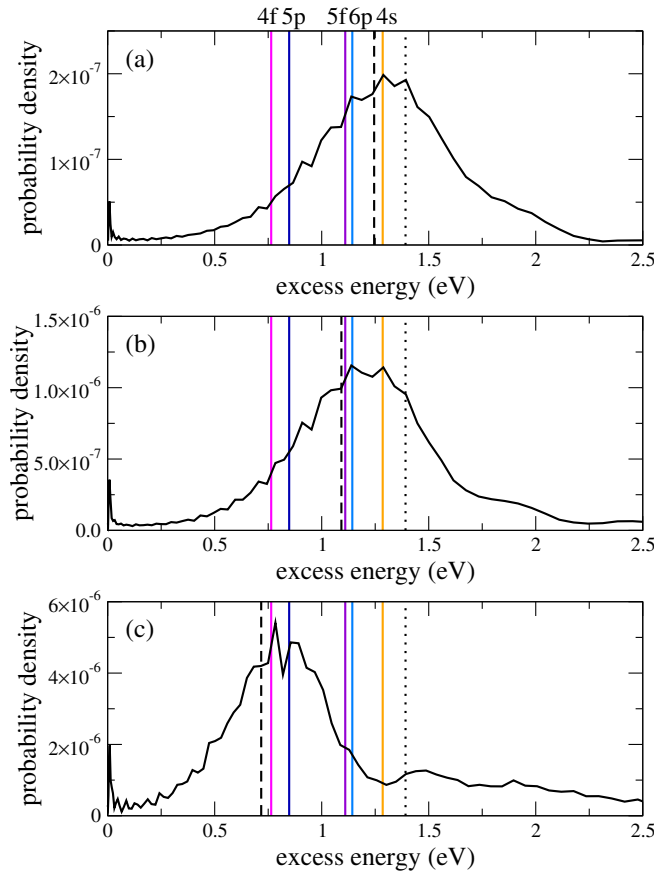


Fig. 5. Calculated photoelectron spectrum (probability density versus excess energy at $t = 1000$ a.u. – black line) of the sodium atom interacting with 10 fs laser pulse (3) with $\omega = 0.06$ a.u. (760 nm wavelength) and three peak values of the field strength: (a) $F_{\text{peak}} = 0.007$ a.u., (b) $F_{\text{peak}} = 0.01$ a.u. and (c) $F_{\text{peak}} = 0.015$ a.u. Substructures in the main maximum are related to the 2+2 REMPI via $4s$ state and 3+1 REMPI via $4f$, $5p$, $5f$ and $6p$ states. The corresponding values of photoelectron excess energies E_e estimated from the values of resonant dynamic Stark shift (see Fig. 4) and equation (5) are shown (vertical full lines). The weak-field value of the photoelectron excess energy at the non-resonant four-photon ionization ($E_e^{(0)} = 1.39$ eV), as well as those estimated using equation (5), are denoted by the dotted and dashed lines, respectively.

latter case. These facts indicate that the main photoabsorption pathway goes via F -states.

Using the resonant-dynamic-Stark-shift data for the sodium atom [16] it is shown that substructures observed in the main (nonresonant) maximum in the photoelectron spectra at the four-photon ionization of this atom are related to the REMPI via intermediate $4s$, $4f$, $5p$, $5f$ and $6p$ states.

This work was supported by the COST Action No. CM1204 (XLIC). We acknowledge support from the Ministry of Education, Science and Technological Development of Republic of Serbia under Project No. 171020.

Author contribution statement

All the authors were involved in the preparation of the manuscript. All the authors have read and approved the final manuscript.

References

1. M.H. Mittleman, *Introduction to the Theory of Laser-Atom Interactions* (Plenum Press, New York, 1982), p. 121
2. N.B. Delone, V.P. Krainov, *Multiphoton Processes in Atoms* (Springer, Heidelberg, 2000), Vol. 13
3. F. Grossmann, *Theoretical Femtosecond Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 2008)
4. C.J. Joachain, N.J. Kylstra, R.M. Potvliege, *Atoms in Intense Laser Fields* (Cambridge University Press, Cambridge, 2012)
5. P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, N.K. Rahman, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127 (1979)
6. R.R. Freeman, P.H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, M.E. Geusic, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1092 (1987)
7. M. Schuricke, G. Zhu, J. Steinmann, K. Simeonidis, I. Ivanov, A. Kheifets, A.N. Grum-Grzhimailo, K. Bartschat, A. Dorn, J. Ullrich, *Phys. Rev. A* **83**, 023413 (2011)
8. M. Krug, T. Bayer, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S.S. Ivanov, N.V. Vitanov, *New J. Phys.* **11**, 105051 (2009)
9. N.A. Hart, J. Strohaber, A.A. Kolomenskii, G.G. Paulus, D. Bauer, H.A. Schuessler, *Phys. Rev. A* **93**, 063426 (2016)
10. H. Hellmann, *J. Chem. Phys.* **3**, 61 (1935)
11. M.Z. Milošević, N.S. Simonović, *Phys. Rev. A* **91**, 023424 (2015)
12. J.E. Sansonetti, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **37**, 1659 (2008)
13. N.B. Delone, V.P. Krainov, *Physics – Uspekhi* **42**, 669 (1999)
14. J. Mitroy, M.S. Safronova, C.W. Clark, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 202001 (2010)
15. A. Askar, A.S. Cakmak, *J. Chem. Phys.* **68**, 2794 (1978)
16. A. Bunjac, D.B. Popović, N.S. Simonović, to be published

CEPAS 2017

7th Conference on Elementary Processes in Atomic Systems



3rd – 6th September 2017

Průhonice, Czech Republic



Calculation of the dynamic Stark shift for sodium and the application to resonantly enhanced multiphoton ionization

A. Bunjac¹, D. B. Popović¹, N. S. Simonović¹

¹*Institute of Physics, University of Belgrade, P.O. Box 57, 11001 Belgrade, Serbia*

Although several monographs on the topic of the resonant dynamic Stark shift (RDSS) have been published [1, 2], accurate data in a wide range of parameters is still not available for most systems studied. A method for determining the RDSS, based on wave-packet calculations of the population probabilities of quantum states, is presented. It is almost insensitive to variations of the laser pulse profile, which ensures a generality in applications. The method is used to determine an RDSS data set for transitions $3s \rightarrow nl$ ($n \leq 6$) in sodium induced by the laser pulse with the peak intensities up to $7.9 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ and wavelengths in the range from 455.6 to 1139 nm. The data is applied to analyze the photoelectron spectra (electron yield versus excess energy) of the sodium atom interacting with an 800 nm laser radiation. Substructures observed in the recent experimentally measured spectra [3] are successfully reproduced and related to the resonantly enhanced multiphoton ionization (REMPI) via specific (P and F) intermediate states.

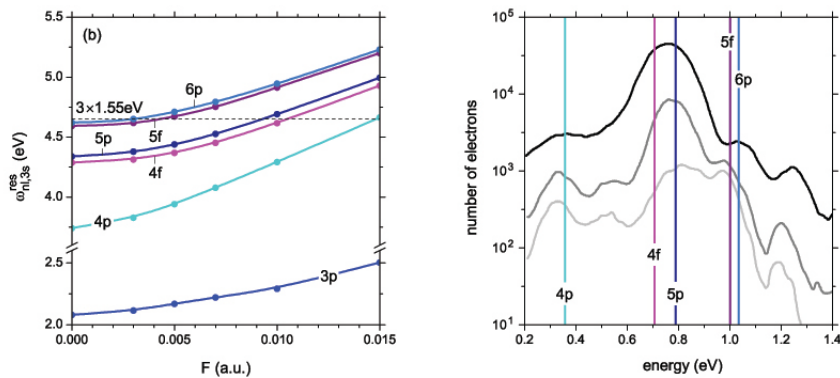
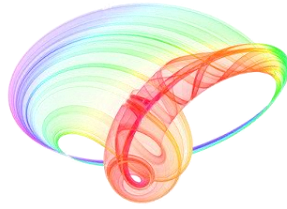


Figure 1: Left: The field-strength dependence of excited states energies relative to the ground state energy for the sodium atom in the laser field which is in K-photon resonance with transitions $3s \rightarrow nl$ $K = 1$ and $K = 3$. Horizontal dashed line marks the three-photon energy, for the laser field of 800 nm wavelength. Right: Calculated values for photoelectron excess energies (vertical lines) which characterize four-photon REMPI of sodium via 4p, 4f, 5p, 5f and 6p states by 800nm laser field, shown together with experimentally measured electron yield versus photoelectron excess energies obtained for 57 fs laser pulse with peak intensities $3.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (white gray, lower curve), $4.9 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (gray, middle curve), and $8.8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (black, upper curve) [3].

- [1] N. B. Delone and V. P. Krainov, *Multiphoton Processes in Atoms*, Vol. 13, Springer, Heidelberg, 2000.
- [2] M. Fox, *Quantum Optics: An Introduction*, Oxford University Press, New York, 2006. p. 167.
- [3] N. A. Hart *et al.*, *Phys. Rev. A* **93** (2016) 063426.

Book of abstracts



PHOTONICA2017

The Sixth International School and Conference on Photonics

& COST actions: MP1406 and MP1402



&H2020-MSCA-RISE-2015 CARDIALLY workshop



28 August – 1 September 2017

Belgrade, Serbia

Editors

Marina Lekić and Aleksandar Krmpot

Institute of Physics Belgrade, Serbia

Belgrade, 2017

Calculation of populations of energy levels of sodium interacting with an intense laser pulse and estimation of the resonant dynamic Stark shift

A. Bunjac¹, D. B. Popović¹ and N. S. Simonović¹
Institute of Physics, University of Belgrade, Serbia
 e-mail:simonovic@ipb.ac.rs

Populations of energy levels of sodium interacting with a linearly polarized intense (up to 10^{13} W/cm²) laser pulse of a few femtoseconds duration with wavelengths in the visible and near infrared domain are determined by solving the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) for the valence (active) electron which is considered as moving in an effective potential of the atomic core and the external electromagnetic field [1]. To solve the TDSE we used two different methods: (i) the method of time-dependent coefficients (TDC) and (ii) the wave-packet propagation (WPP) method. In the TDC method the total wave-function is expanded in a finite basis of unperturbed atomic (bound) states and their populations at the end of the pulse are determined from the values of expansion coefficients at that time. In the WPP method the total wave function is discretized on a coordinate grid and its evolution is calculated using the second-order-difference scheme [1, 2]. Compared to the TDC method the WPP method is more time-consuming but also more accurate because in this case there is no restriction to a finite basis and the continuum states are taken into account. For the TDC calculations here we used a basis set consisting of the lowest 14 sodium states (s, p, d, f states from 3s to 6d). It is found that the calculated populations of low lying levels as functions of the laser frequency ω agree well with the results obtained by the PPT method in the range of laser peak intensities up to few TW/cm². The peaks in the population of excited states (nl) occurring when $K\omega = \omega_{nl,3s} \equiv E_{nl}(F, \omega) - E_{3s}(F, \omega)$ (multi(K)-photon resonance condition) are used to determine the field strength dependence of the resonant dynamic Stark shift for separations of levels.

REFERENCES

- [1] A. Bunjac, D. B. Popović and N. Simonović, Eur. Phys. J. D (2017), accepted for publication.
- [2] A. Askar and A. S. Cakmak, J. Chem. Phys. 68, 2794 (1978).



28th Summer School and International Symposium on the Physics of Ionized Gases

Aug. 29 - Sep. 2, 2016, Belgrade, Serbia

CONTRIBUTED PAPERS

&

ABSTRACTS OF INVITED LECTURES,
TOPICAL INVITED LECTURES, PROGRESS REPORTS
AND WORKSHOP LECTURES

Editors:

Dragana Marić, Aleksandar Milosavljević,
Bratislav Obradović and Goran Poparić



University of Belgrade,
Faculty of Physics



Serbian Academy
of Sciences and Arts

PHOTOIONIZATION OF SODIUM BY A FEW FEMTOSECOND LASER PULSE – TIME-DEPENDENT ANALYSIS

A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović

Institute of Physics, University of Belgrade, P.O. Box 57, 11001 Belgrade, Serbia

Abstract. Multiphoton ionization of sodium by a few femtosecond duration laser pulse is examined using the single-electron model where the valence electron moves in an effective core potential and the external electromagnetic field. The photoelectron angular and momentum distributions are studied by inspecting the evolution of the electron wave function until some time after the end of the pulse. The AC Stark shift of the lowest state is estimated and the appearance of the above threshold ionization is observed.

1. INTRODUCTION

Interaction of strong laser fields with atoms may lead to the photoionization of the later even when the single photon energy is lower than the ionization potential of atom. This process is known as the multiphoton ionization (MPI). Contrary to the single photon ionization, where the ionization rate is large even at very low intensities, the probability for multiphoton processes is much lower and they occur only at sufficiently strong fields. From the theoretical point of view this means that a perturbative treatment, that is a valid approach in describing the single photon ionization, usually fails when applying to MPI. A clear indication of the non-perturbative regime is the so-called above threshold ionization (ATI), in which the atom absorbs more photons than the minimum required. Here we study the MPI of the sodium atom in strong laser fields by solving numerically the time-dependent Schrödinger equation for this system within the single-electron approximation. A similar analysis has been recently done for lithium [1].

2. THE MODEL

Within the single-electron model and the frozen core approximation the dynamics of the valence (active) electron of sodium atom in an

alternating electric field $F(t)$ is described by Hamiltonian (in atomic units)

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2} + V_{\text{core}}(r) - F(t)z. \quad (1)$$

The effective core potential (ECP) $V_{\text{core}}(r)$ describes the interaction of the valence electron with the atomic core (inner electrons + atomic nucleus). For this purpose we shall use the Hellmann's pseudopotential [2]

$$V_{\text{core}}(r) = -\frac{1}{r} + \frac{A}{r} e^{-ar}. \quad (2)$$

The parameters $A = 21$ and $a = 2.54920$ [3] provide the correct value for the ionization potential of sodium $I_p = 5.1391 \text{ eV} = 0.18886 \text{ a.u.}$ and reproduce approximately the energies of singly-excited states (see Fig. 1).

We consider the linearly polarized laser pulse of the form

$$F(t) = F_{\text{peak}} \sin^2(\pi t/T_p) \cos(\omega t), \quad 0 < t < T_p \quad (3)$$

(otherwise $F(t) = 0$). Here ω , F_{peak} and T_p are the frequency of laser field, the peak value of its electric component and the pulse duration, respectively. Due to the axial symmetry of the system the magnetic quantum number m of the valence electron is a good quantum number for any field strength. Since in the sodium ground state (when $F = 0$) the orbital and magnetic quantum numbers of this electron are equal zero, in calculations we choose $m = 0$.

3. THE METHOD

The photoionization process is simulated by calculating the evolution of the initial wave function $\psi(\mathbf{r}, 0)$, which is the lowest eigenstate of Hamiltonian (1) at $t = 0$ (then $F = 0$), until some time after the end of the pulse. This can be done by taking an adequate representation of the evolution operator $U(t, t + \Delta t)$ and integrating numerically the relation $\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = U(t, t + \Delta t)\psi(\mathbf{r}, t)$ with a sufficiently small time step Δt . Here we use of the second-order-difference (SOD) scheme [4]

$$\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = \psi(\mathbf{r}, t - \Delta t) - 2i\Delta t H \psi(\mathbf{r}, t) \quad (4)$$

that is for this purpose adapted to cylindrical coordinates. Due to the axial symmetry of the system described by the Hamiltonian (1) this observable as well as the electron's wave function do not depend on the azimuthal angle and the dynamics reduces to two degrees of freedom (ρ and z).

4. RESULTS

We study the photoionization of the sodium atom by a 760 nm ($\omega = 0.06 \text{ a.u.}$) laser pulse of the form (3) with the peak intensity $1.72 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ($F_{\text{peak}} = 0.007 \text{ a.u.}$) and 10 fs duration ($T_p = 413.4 \text{ a.u.}$).

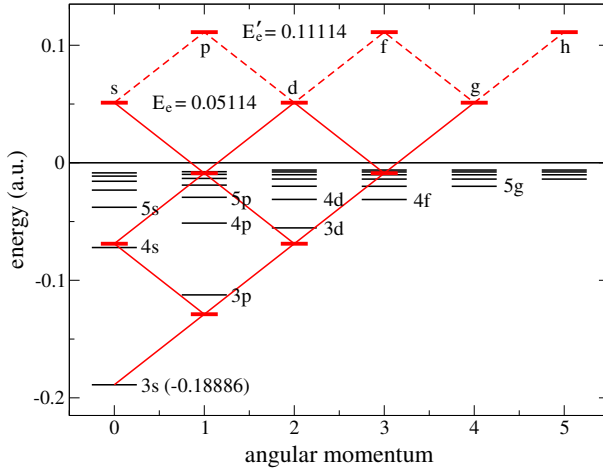


Figure 1. Energy scheme of sodium including the lowest excited states as well as possible four-photon and five-photon (ATI) absorption pathways ($\omega = 0.06$ a.u.) from the $3s$ ground state to the continuum.

The energy level diagram (Fig. 1) illustrates that from the ground state ($3s$) at least four photons with $\omega = 0.06$ are required to reach the continuum. Then, the excess energy of the photoelectrons is expected to be $E_e = 0.05114$ a.u.

The probability distribution $|\psi(\mathbf{r}, t)|^2$ of the active (valence) electron is shown in Fig. 2 at $t = 1000$ a.u. and $t = 1200$ a.u. The outgoing wave determines the photoelectron angular distribution. Apart from the strong emission along the laser polarization ($\vartheta = 0^\circ$ and 180°) the distribution shows also maxima at $\vartheta \approx 45^\circ$, $\vartheta = 90^\circ$ and $\vartheta \approx 135^\circ$. The observed distribution relates to a superposition of the accessible emitted partial waves. In the case of four-photon absorption s , d and g partial waves can be emitted

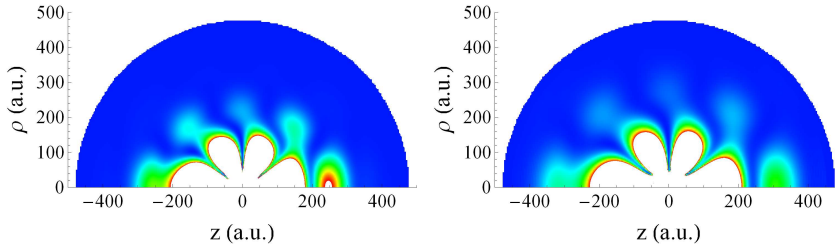


Figure 2. Probability distribution $|\psi(\mathbf{r}, t)|^2$ of the active electron of the sodium atom affected by the laser pulse (3) with $\omega = 0.06$ a.u. and $F = 0.007$ a.u. at: $t = 1000$ a.u. (left) and $t = 1200$ a.u. (right). The outgoing wave (with five maxima) determines the photoelectron angular distribution.

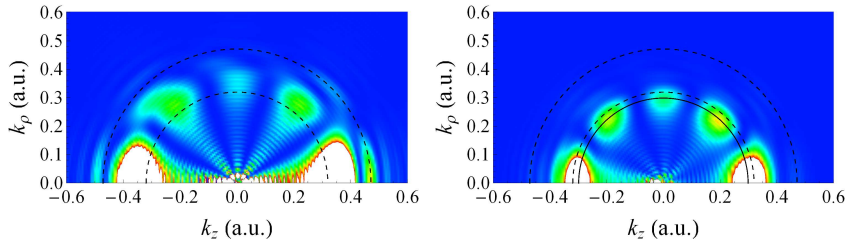


Figure 3. The photoelectron momentum distribution for the process shown in Fig. 1 at: $t = 800$ a.u. (left) and $t = 1000$ a.u. (right). Dashed semicircles denote the expected values of the momentum for the four-photon (MPI) and five-photon (ATI) processes at low laser intensities. The full semicircle corresponds to an average value of maxima in the calculated photoelectron momentum distribution at $t = 1000$ a.u.

(see Fig. 1). The maxima/minima structure of the outgoing wave in Fig. 2 indicate that in this case the g partial wave is dominant (four minima).

The photoelectron momentum distribution shows a similar angular structure, but the maxima are approximately located at semicircles of radius $k_e \equiv (2E_e)^{1/2} = 0.3198$ a.u. At shorter times after the ionization the photoelectrons momenta are larger than k_e (see Fig. 3(a)), but later they approach the asymptotic values (see Fig. 3(b)). The remaining difference can be attributed to the AC Stark shift.

Besides the regular MPI with four photons, in Fig. 3 the ATI structure related to the five-photon absorption can be observed. In the latter case, according to the energy level diagram in Fig. 1, the photoelectron excess energy in the weak field limit should be $E'_e = 0.05114$ a.u. ($k'_e = .4715$ a.u.) and p , f and h partial waves can be emitted. The ATI structure in Fig. 3 is indeed located near k'_e and contains five minima that is a feature of h waves.

Acknowledgements

This work was supported by the COST Action No. CM1204 (XLIC). We acknowledge support from the Ministry of Education, Science and Technological Development of Republic of Serbia under Project No. 171020.

REFERENCES

- [1] M. Schuricke et al, Phys. Rev. A **83**, 023413 (2011).
- [2] H. Hellmann, J. Chem. Phys. **3**, 61 (1935).
- [3] M. Z. Milošević and N. S. Simonović, Phys. Rev. A **91**, 023424 (2015).
- [4] A. Askar and A. S. Cakmak, J. Chem. Phys. **68**, 2794 (1978).

STRONG-FIELD IONIZATION OF SODIUM IN THE QUASISTATIC REGIME

A. Bunjac, D. B. Popović and N. S. Simonović

Institute of Physics, University of Belgrade, P.O. Box 57, 11001 Belgrade, Serbia

Abstract. Strong field ionization of sodium in the quasistatic regime is examined by studying the valence electron wave packet dynamics in the static electric field. The lowest state energies and ionization rates obtained by this method for different strengths of the applied field agree well with the results determined using other methods. It is shown that, if the Keldysh parameter is significantly lower than one (quasistatic regime), the probability of ionization by a laser pulse can be obtained from the static rates.

1. INTRODUCTION

When atom is irradiated by a sufficiently strong electromagnetic field the multiphoton ionization may occur although the single photon energy is lower than the ionization potential of this atom. If the field is, however, so strong that it is comparable to the atomic potential, it distorts the later forming a potential barrier through which the electron can tunnel. Finally, at extremely strong fields the barrier is suppressed below the energy of the atomic state and the so-called over-the-barrier ionization (OBI) occurs. The transition between multiphoton and tunnelling regimes is governed by the Keldysh parameter $\gamma = \omega (2I_p)^{1/2} / F$ [1], where ω , F and I_p are the frequency of electromagnetic field, the peak value of its electric component and the ionization potential of the atom (in atomic units). If $\gamma \gg 1$ (low-intensity/short-wavelength limit) the multiphoton ionization dominates, whereas for $\gamma \ll 1$ (high-intensity/long-wavelength limit) the tunnel ionization or OBI does.

Tunnel ionization is successfully described by the semiclassical theory due to Ammosov, Delone and Krainov (ADK) [2]. It is based on the quasistatic approximation which assumes that for $\gamma \ll 1$ the electric field changes slowly enough that the static tunnelling rate can be calculated for each instantaneous value of the field. Then the tunnelling rate for the alternating field can be obtained by averaging the static rates over the field

period. Here we present the results for ionization rates of the sodium atom in quasistatic field obtained by the wave-packet propagation method and compare them with the ADK values, as well as with the results obtained recently by the complex-rotation method [3]. Also we demonstrate that, if the Keldysh parameter is significantly lower than one, the probability of ionization by a laser pulse can be obtained from the static rates.

2. THE MODEL

The valence electron of alkali metal atoms can be considered as moving in an effective potential describing the interaction between this electron and the atomic core (inner electrons + atomic nucleus). The simplest effective core potential (ECP) applicable for these atoms is the Hellmann's pseudopotential [4]

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

(Atomic units are used throughout the text.) We shall for the sodium atom use the values $A = 21$ and $a = 2.54920$ from Ref. [3] which provide the correct value for the ionization potential $I_p = 5.1391 \text{ eV} = 0.18886 \text{ a.u.}$

Using this single-electron model we study the sodium atom under the influence of a quasistatic electric field F . Within the so-called frozen core approximation the dynamics of the valence electron is described by Hamiltonian

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2} + V_{\text{core}}(r) - Fz. \quad (2)$$

The core potential and the external field form a potential barrier with the saddle point at the z -axis. Since the electron can tunnel through or escape over the barrier, the atom has a nonzero probability of ionizing for any field strength $F \neq 0$. Thus, all states of the system described by Hamiltonian (2) have a resonant character. We shall consider the resonance with the lowest energy that is characterized by the magnetic quantum number $m = 0$.

3. THE METHOD

The energy spectrum of Hamiltonian (2) (for static fields) can be obtained from the autocorrelation function $c(t) = \langle \psi(0) | \psi(t) \rangle$, where the initial state $|\psi(0)\rangle$ is the lowest eigenstate of Hamiltonian (2) when $F = 0$ and $|\psi(t)\rangle$ is the corresponding state at a later time t (then $F \neq 0$). The evolution of the lowest state is calculated using the so-called second-order-difference (SOD) method [5]. The eigenenergies of (2) appear as Lorentzian peaks in the power spectrum of the autocorrelation function $|\text{FT}[c(t)]|^2$, where $\text{FT}[c(t)]$ is the Fourier transform of $c(t)$. These peaks contain the information about the resonance positions E and widths Γ (i.e. decay rates $w = \Gamma/\hbar$).

The tunnelling rates determined numerically will be compared with those given by the ADK theory [2]. For alkali-metal atoms in the ground state one has $l = m = 0$ and the ADK formula (for static fields) reduces to

$$w = |C_{n^*0}|^2 I_p \left(\frac{2F_0}{F}\right)^{2n^*-1} e^{-\frac{2F_0}{3F}}, \quad (3)$$

where $n^* = (2I_p)^{-1/2}$, $F_0 = (2I_p)^{3/2}$, and $|C_{n^*0}|^2 = 2^{2n^*}/[n^* \Gamma(n^*+1) \Gamma(n^*)]$. Since for alkali metals the energy of the lowest state changes rapidly with F , the ADK rates can be significantly improved by applying the correction $I_p \rightarrow -E(F) = I_p - \Delta E(F)$ in (3), which accounts for the Stark shift $\Delta E(F)$ of the lowest energy level. For $F \ll 1$ this shift can be expanded in a series, giving

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

The dipole polarizability and the second dipole hyperpolarizability for sodium are $\alpha = 162.7 \pm 0.8$ and $\gamma = (9.56 \pm 0.48) \times 10^5$, respectively.

4. RESULTS

The lowest state energies and widths (ionization rates) for the sodium atom at different strengths of the applied static electric field calculated by the wave-packet method [7] are shown in Fig. 1, together with the values obtained recently by the complex-rotation method [3]. The results are in a good agreement in the considered field domain. The energies and rates estimated from the Stark shift expansion (4) and the ADK theory, respectively, agree well with the presented numerical values in the tunnelling regime.

We consider further the linearly polarized laser pulse of the form

$$F(t) = F_{\text{peak}} \sin^2(\pi t/T_p) \cos(2\pi t/T_c), \quad 0 < t < T_p \quad (5)$$

(otherwise $F(t) = 0$) and take $F_{\text{peak}} = 0.01$ a.u. We choose the optical cycle period $T_c = 1931$ a.u. ($\lambda = 14 \mu\text{m}$) that provides $\gamma = 0.2$ and the pulse duration $T_p = 4T_c$. The quasistatic rate $w(F(t))$ for this pulse, obtained using the corrected ADK formula (see Eq. (3) and the text below), is shown in Fig. 1(b). In Fig. 1(c) the corresponding (quasistatic) ionization probability

$$P_{\text{ion}}^{(\text{qs})}(t) = 1 - \exp\left[-\int_0^t w(F(t')) dt'\right] \quad (6)$$

is compared with the probability P_{ion} obtained by calculating the evolution of the time-dependent system [6] defined by Hamiltonian (2) with the alternating field $F(t)$ of the form (5). $P_{\text{ion}}^{(\text{qs})}(t)$ and $P_{\text{ion}}(t)$ approach each other whenever $F = 0$, allowing us to determine the ionization probability at $t = T_p$ from the static rates [7]. The difference between $P_{\text{ion}}(T_p)$ and $P_{\text{ion}}^{(\text{qs})}(T_p)$ in this example ($\gamma = 0.2$) is less than 1%, but it increases for larger values of γ .

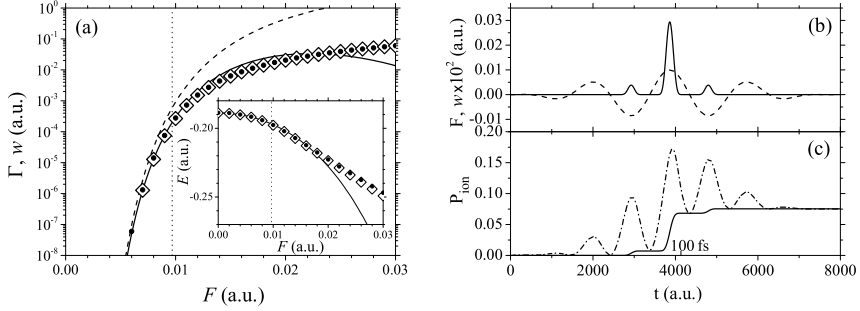


Figure 1. (a) Ionization rates of the sodium atom at different strengths of the static electric field F obtained by the wave-packet propagation method (full circles), by the complex-rotation method [3] (open 'diamonds'), by the ADK formula (3) (dashed line) and by the ADK formula with the Stark shift correction (4) (full line) are shown. The inset shows the numerical values for the lowest state energies (symbols) and those determined by the 4th order expansion formula (4) (full line). Vertical dotted lines mark the field strengths dividing the tunnelling and OBI areas (at $F = 0.00969$ for sodium). (b) The laser pulse of the form (5) with $F_{\text{peak}} = 0.01$ a.u., $T_c = 1931$ a.u., $T_p = 4T_c$ (dashed line) and the related quasistatic ionization rate $w(F(t))$ for sodium (full line). (c) The ionization probability obtained from the quasistatic rate (full line) and by solving the time-dependent problem exactly (dash-dot line).

Acknowledgements

This work was supported by the COST Action No. CM1204 (XLIC). We acknowledge support from the Ministry of Education, Science and Technological Development of Republic of Serbia under Project No. 171020.

REFERENCES

- [1] L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965).
- [2] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov, Sov. Phys. JETP **64**, 1191 (1986).
- [3] M. Z. Milošević and N. S. Simonović, Phys. Rev. A **91**, 023424 (2015).
- [4] H. Hellmann, J. Chem. Phys. **3**, 61 (1935).
- [5] A. Askar and A. S. Cakmak, J. Chem. Phys. **68**, 2794 (1978).
- [6] F. Grossmann, *Theoretical Femtosecond Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 2008).
- [7] A. Bunjac, D. B. Popović, and N. S. Simonović, Eur. Phys. J. D **70**, 116 (2016).



Meeting of the XLIC Working Group 2

WG2 Expert Meeting on Biomolecules

27-30 April 2015, Fruška gora, Serbia



Institute of Physics Belgrade
University of Belgrade

Calculations of ionization probabilities for sodium in strong laser fields

A. Bunjac, D. B. Popović and N. Simonović

Institute of Physics, University of Belgrade, Pregrevica 118, Zemun, 11080 Belgrade

Ionization probabilities for sodium atom in strong laser fields are calculated for different ratios between the frequency and the field strength, covering both the quasistatic (tunneling/over-the-barrier) and the multiphoton ionization regimes. The probabilities are determined numerically using the wave-packet propagation technique [1] and the single electron model for alkali-metal atoms, where the valence electron moves in an effective core potential and the external field [2]. In the quasistatic regime (high-field-intensity/low-frequency) the ionization rate (probability per unit time) is obtained from the autocorrelation function, which is the overlap between the initial (here the ground) state $\psi(0)$ and the corresponding state $\psi(t)$ at a later time $t \geq 0$. The calculated values for the lowest state energies and ionization rates as functions of the field strength are in good agreement with the results obtained recently using other methods [2]. Additionally, the transition time from $t = 0$, when the external field is switched on, until the decaying (resonant) state becomes quasistationary (exponential decay) is estimated and the form of the final wave function is determined. The field ionization of sodium in the multiphoton regime (low-field-intensity/high-frequency) is studied for a linearly polarized laser pulse with the intensity profile of the electric field component $F \sin^2(\pi t/T_p)$ and the pulse duration T_p of a few femtoseconds. The ionization probability $P_{\text{ion}}(t)$ is determined by calculating the occupation probabilities $P_n(t)$ for each eigenstate of the valence electron as $P_{\text{ion}}(t) = 1 - \sum_n P_n(t)$ [3]. An example for the calculated probabilities as functions of time is shown in Fig. 1.

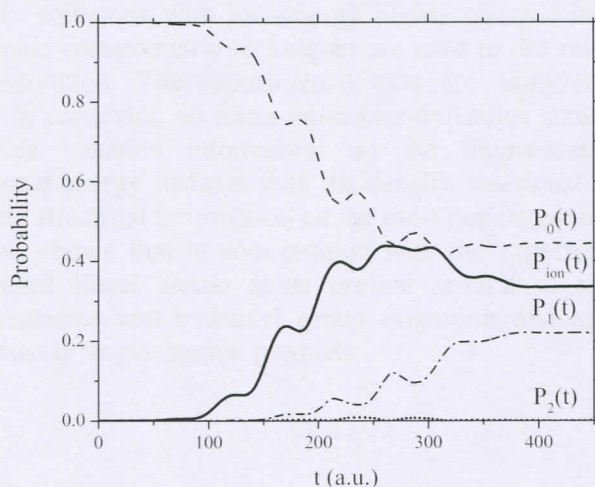


Fig.1. The occupation probabilities for the lowest three states as well as the related ionization probability for the sodium atom irradiated by the laser pulse of the wavelength $\lambda = 760$ nm, duration $T_p = 10$ fs (413.4 a.u.) and the peak intensity $1.72 \cdot 10^{12}$ W/cm² ($F = 0.007$ a.u.).

Acknowledgements: This work is supported by the COST Action No. CM1204 (XLIC). We acknowledge support from the Ministry of Education, Science and Technological Development of Republic of Serbia under Project No. 171020.

REFERENCES

- [1] M. D. Feit and J. A. Fleck, Jr., *J. Chem. Phys.* 78, 301 (1983).
- [2] M. Z. Milošević and N. S. Simonović, *Phys. Rev. A* 91, 023424 (2015).
- [3] F. Grossmann, *Theoretical Femtosecond Physics*, p. 106, (Springer, Berlin, 2008).

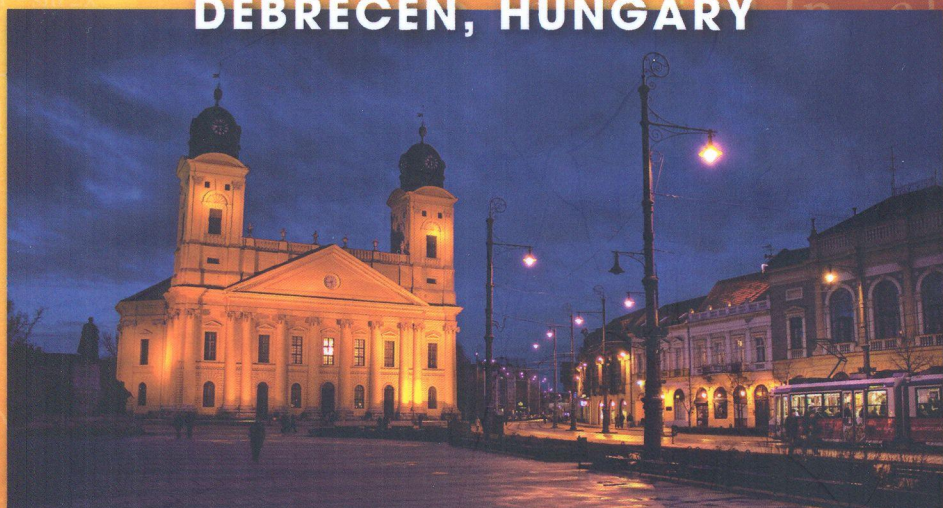
3rd
XLIC
XUV/X-ray light and fast
ions for ultrafast chemistry

GENERAL MEETING

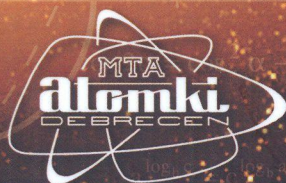
cost
EUROPEAN COOPERATION
IN SCIENCE AND TECHNOLOGY

(COST ACTION CM 1204)

**2-4 NOVEMBER 2015
DEBRECEN, HUNGARY**



PROGRAMME AND BOOK OF ABSTRACTS



3rd XLIC GENERAL MEETING
2-4 NOVEMBER, 2015

Organised by: *ATOMKI / DE / ELFT*

Venue

Centrum Hotel, Debrecen, Hungary

The conference will be hosted at Centrum Hotel, Debrecen, Hungary. The hotel is located in the very heart of the city, at 4-8 Kalvin square, next to the Reformed Great Church. All lectures, the poster sessions and the management committee meeting will be held here.

Book of Abstracts

This book contains the camera-ready copies of the abstracts as sent by the authors. In few cases only minor corrections were made.

Publisher: ATOMKI / DE / ELFT, Dr. Károly Tökési

Editor: Péter Badankó

Printed by: REXPO Kft., Manager: János Rác

ISBN: 978-963-8321-51-0

WELCOME

Welcome to the 3rd XLIC General Meeting XUV/X-ray light and fast ions for ultrafast chemistry (XLIC), organized in Debrecen (Hungary).

The workshop is an annual meeting of CM1204 action, which deals with physical and chemical phenomena induced by electromagnetic fields and charged particles. The meeting is planned for 2nd - 4th November, 2015. It will take place at Centrum Hotel, Debrecen, Hungary. There will be 24 talks given by invited speakers, 12 oral presentations by early stage scientists and 2 poster sessions.

The organization of this meeting and its funding with COST CM1204 budget was approved in the 3rd MC meeting, held in Gdansk (Poland) on October 10th, 2014.

The objectives of the workshop are to assess the state of the art in the current understanding of a variety of basic phenomena in the electron and atom dynamics such as charge-exchange processes collective as well as single-particle excitation and ionization, energy loss, and photon emission processes, collision induced physical, chemical and biological reactions radiation damage and materials modification.

The XLIC conference is held for the 3rd time. Previous conferences were organized in Madrid (Spain, 2013), Gdansk (Poland, 2014). It is a great honour for Debrecen to be the host of this prestigious event in 2015.

Debrecen is the second largest city of Hungary, one of the most important educational, research and cultural centres in Middle-Europe. Stadiums of Debrecen have given place to great sport events (like European Championship of Swimming, 2012) and the Carnival of Flowers attracts thousands of visitors from all over Europe every year. In addition, there are a lot of sights that must be seen, for instance the Great Church at the beautiful main square, Déri Museum, Reformed College and its unique library, the Great Forest and the main building of the University of Debrecen, but we could continue this list.

The 3rd XLIC conference is held at the Centrum Hotel. The hotel is located in the historic city centre of Debrecen, only 50 meters from the Great Reformed Church and the main square, the venue of many cultural events, in the close vicinity of the most important attractions, office buildings and institutions. It is one of the hotels of Eastern Hungary that provides ideal conditions for the work and recreation of business travellers, while also satisfying the needs of tourists in search of a lively atmosphere and vibrant experiences.

We hope that all participants will have a lively and successful meeting while enjoying the attractive surroundings in this beautiful region of Hungary. We hope, furthermore, we may offer exciting scientific programs in addition to various social and cultural programs, where you can enjoy the famous Hungarian dishes and wine, too. Organizers have been doing their best to guarantee pleasant experiences for everyone.

Károly Tőkési
Chair
3rd XLIC General Meeting

András Csehi
Co-Chair
3rd XLIC General Meeting

Calculation of probabilities and photoelectron angular distributions for strong field ionization of sodium

A. Bunjac^{1*}, D. B. Popović¹ and N. Simonović¹

¹Institute of Physics, University of Belgrade, Pregrevica 118, Zemun, 11080 Belgrade, Serbia

*Corresponding author: bunjac@ipb.ac.rs

Single ionization of the sodium atom in strong laser fields is studied for different frequencies and field strengths within the multiphoton ionization regime. The probabilities and photoelectron angular distributions are determined numerically using the wave-packet propagation technique [1] and the single electron model for alkali-metal atoms, where the valence electron moves in an effective core potential and the external field [2]. We considered a linearly polarized laser pulse with the intensity profile of the electric field component $F \sin^2(\pi t/T_p)$ and the pulse duration T_p of a few femtoseconds. The ionization probability $P_{\text{ion}}(t)$ is determined by calculating the occupation probabilities $P_n(t)$ for each eigenstate of the valence electron as $P_{\text{ion}}(t) = 1 - \sum_n P_n(t)$ (see e.g. Ref. 3). The photoelectron angular distributions are studied by inspecting the evolution of the electron wave function $\psi(\mathbf{r}, t)$ in the interval $(0, T_p)$. Examples for the calculated occupation and ionization probabilities as functions of frequencies at a given field strength, as well as the probability distribution of photoelectrons $|\psi(\mathbf{r}, t)|^2$ at a time near T_p are shown in Fig. 1. It is found that, due to low ionization potentials for alkali metal atoms, at the peak intensity of the laser field $\approx 3 \times 10^{12}$ W/cm² and wavelengths $\lambda \ll 3$ μm , the classical over-the-barrier threshold was reached inside the multiphoton regime.

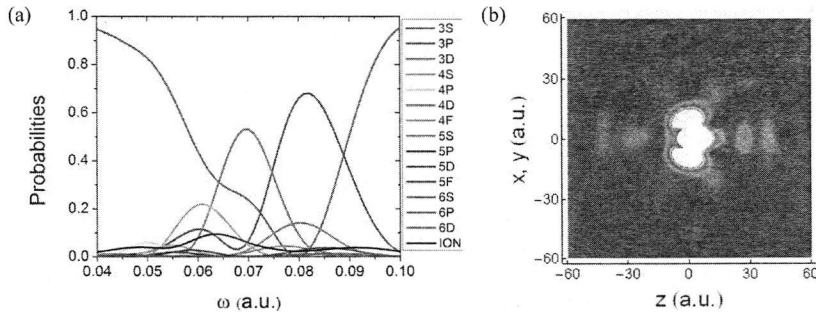


Figure 1: (a) Eigenstates occupation probabilities (different color lines) and the ionization probability (black line) as functions of the laser frequency ω at the peak intensity $1.72 \cdot 10^{12}$ W/cm² ($F = 0.007$ a.u.) at $t = T_p = 10$ fs. (b) The valence electron probability distribution $|\psi(\mathbf{r}, t)|^2$ at $t \approx T_p$ (for $\omega = 0.06$ a.u. and $F = 0.007$ a.u.). The outgoing wave determines the photoelectron angular distribution.

Acknowledgments: This work is supported by the COST Action No. CM1204 (XLIC). We acknowledge support from the Ministry of Education, Science and Technological Development of Republic of Serbia under Project No. 171020.

References

- [1] A. Askar and A. S. Cakmak, *J. Chem. Phys.*, **68**, 2794, (1978)
- [2] M. Z. Milošević and N. S. Simonović, *Phys. Rev. A*, **91**, 023424, (2015)
- [3] F. Grossmann, *Theoretical Femtosecond Physics* (Springer, Berlin, 2008), 106.