

DVOBARVNI POSKUSI S KRATKOŽIVIMI ATOMSKIMI STANJI

MATEJA HRAST

Fakulteta za matematiko in fiziko
Univerza v Ljubljani

Koncept dvobarvnega poskusa je predstavljen na primeru dipolno prepovedane vzbuditve v dvojno vzbujena stanja helijevega atoma. Da jih dosežemo, izpostavimo atome sočasnim sunkoma svetlobe z ultravijoličnega področja in infrardečega laserja. Opisana sta dva načina, s katerima je mogoče predvideti izid takega poskusa, enačbe zasedenosti stanj (zasedbene enačbe) in metodo gostotnih matrik, ter njune omejitve. Na koncu so predstavljeni še rezultati izračunov z obema metodama ter praktične možnosti izvedbe poskusa.

TWO-COLOR EXPERIMENTS ON SHORT-LIVED ATOMIC STATES

The concept of a two-color experiment is presented through the example of dipole-forbidden excitation to doubly-excited helium states. To achieve those, we expose helium atoms to two simultaneous laser pulses, one from the ultraviolet and the other from the infrared region. This work presents two ways of simulating such an experiment: rate equations and the approach with density matrices, together with their limitations. In the end, the results of both simulations are presented, mentioning also the possibilities of the realization of the described experiment.

1. Uvod

Mnogo eksperimentov v fiziki temelji na vzbujanju atomov v energijsko višje ležeča stanja s svetlobo. Pri vzbujanju z enim fotonom hitro naletimo na težave. Včasih je energijska razlika med osnovnim in želenim stanjem večja od energije fotona, morda želimo opazovati polariziran ansambel atomov, naša tarča pa je nepolarizirana. V takih primerih se zatečemo k dvobarvnim poskusom. Atom najprej z enim fotonom vzbudimo v neko vmesno stanje, nato pa z drugim fotonom v želeno končno stanje. Običajno ima prvi foton višjo energijo (krajšo valovno dolžino) od drugega in od tod ime dvobarvnih poskusov. Če je vmesno stanje kratkoživo (ima zelo kratek življenjski čas), moramo oba vira svetlobe sinhronizirati, če želimo doseči končno stanje.

Primer takega poskusa, ki je v nadaljevanju predstavljen, je dvobarvni poskus na dvojno vzbujenih stanjih helijevega atoma. Gre za stanja, pri katerih sta oba elektrona v višjih orbitalah (ne v $1s$). Energijska razlika med osnovnim in dvojno vzbujenimi stanji je velika (okrog 60 eV), zato so težko dosegljiva le z enim fotonom. Poleg tega gre pri vzbujanju z enim fotonom za dipolni proces, s katerim zaradi izbirnih pravil ne moremo doseči vseh stanj. Problem rešimo z uporabo dveh fotonov - enega VUV, s katerim dosežemo najnižje dvojno vzbujeno stanje, ter enega IR, da dosežemo želeno končno stanje. Na ta način lahko dosežemo dipolno prepovedana stanja. Poleg sinhroniziranosti, ki je pomembna zaradi kratkoživosti vmesnega stanja, želimo tu tudi dobro energijsko ločljivost, saj so energijske razlike med energijsko visoko ležečimi resonancami precej majhne. Vse to predstavlja zahteven eksperimentalen problem.

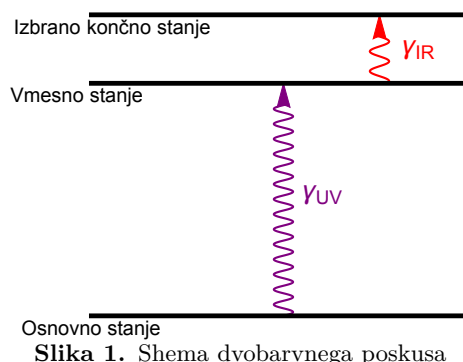
V predstavljenem poskusu kot vir močne ultravijolične (VUV) svetlobe uporabimo vir HHG (High Harmonic Generation), za IR svetlobo pa laser. Tudi končno stanje tega dvobarvnega poskusa je kratkoživo, zato lahko izmerimo le prisotnost stanj, v katera na koncu razpade. Med njimi so tudi metastabilna stanja, katerih zasedenost pa lahko izmerimo. Teoretično je to problem tronivojskega sistema, ki ga lahko rešujemo bodisi z zasedbenimi enačbami, bodisi z gostotnimi matrikami. Predstavljena sta oba pristopa ter rezultati obeh izračunov.

Rezultati simulacij kažejo, da bi pri omenjenem poskusu dobili dovolj signala, da bi ga lahko detektirali. Na viru HHG svetlobe CITIUS na Univerzi v Novi Gorici je zato eksperiment že v pripravi in kaže obetavne rezultate. V primeru, da se metoda tudi v praksi izkaže za izvedljivo, je možnosti uporabe za nadaljnje raziskovanje mnogo.

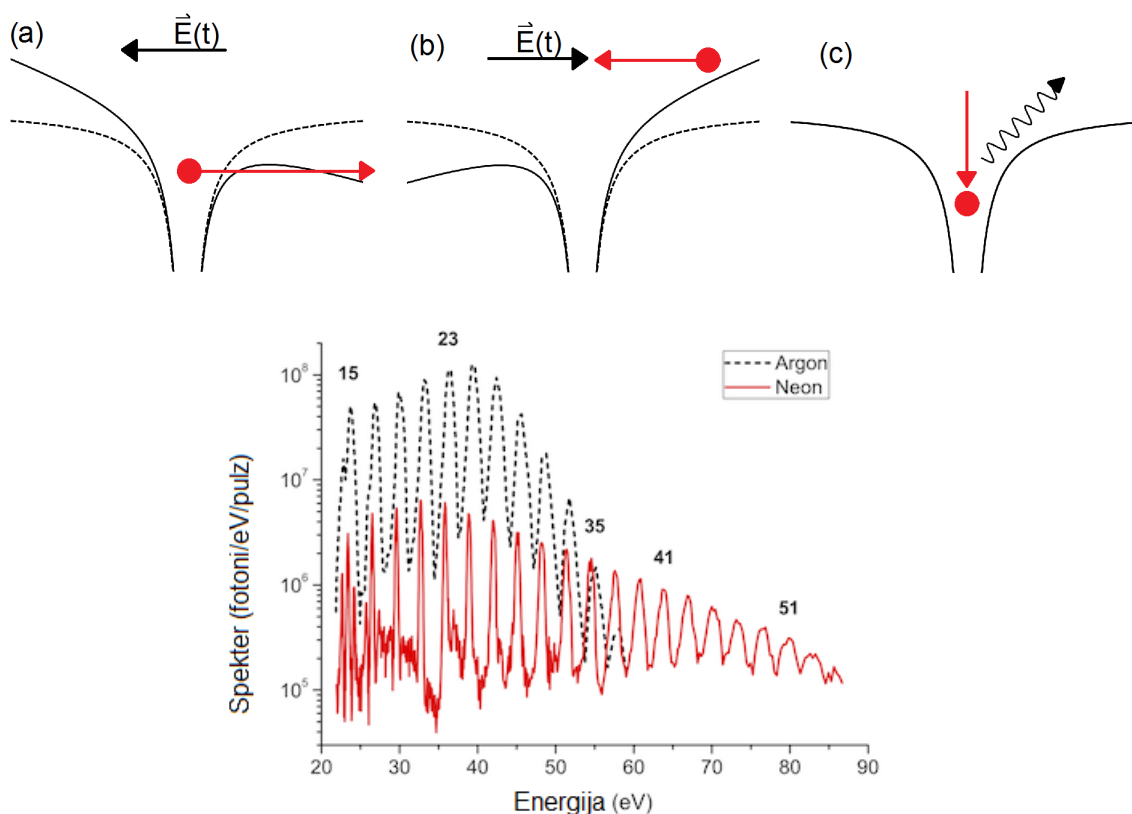
2. Dvobarvni poskusi

2.1 Ideja in prednosti

Interakcija fotonov z atomi služi kot glavno orodje za določanje strukture snovi in procesov v njej preko opazovanja odziva snovi na vzbuditev. Za zgodnejše poskuse so služili sinhrotroni, vendar ima kljub širokemu energijskemu spektru sinhrotronska svetloba prenizko intenziteto za večfotonske poskuse [1]. Novejša metoda so poskusi pump-probe, pri katerih uporabimo sinhrotron za vzbuditev v višje ležeče stanje, nato pa z laserjem opazujemo odziv tega stanja. S spreminjanjem časovnega zamika med pulzoma lahko opazujemo časovno odvisnost sistema. Tudi dvobarvni poskusi so poskusi pump-probe. Ideja je, da s sinhrotronsko ali HHG svetlobo atom vzbudimo v neko vmesno stanje, nato pa z laserjem naprej v željeno končno stanje. Za razliko od enobarvnih poskusov pump-probe tu zamik med obema sunkoma svetlobe ni pomemben, včasih celo nezaželen. Shema dvobarvnega poskusa prikazuje slika 1.



Slika 1. Shema dvobarvnega poskusa



Slika 2. HHG: Ob prisotnosti zunanega laserskega polja elektron tunelira skozi znižano bariero (a), se nato pospešuje v električnem polju laserja (b) in ob rekombinaciji z ionom izseva višji harmonik (c). Spodnji graf prikazuje harmonski spekter izsevane svetlobe [3].

HHG je relativno nov vir koherentne svetlobe, ki temelji na pomnoževanju frekvence laserske svetlobe. Laserski snop usmerimo na tarčo žlahtnega plina, ki atom ionizira, tako da zniža elektrostatsko bariero, preko katere elektron tunelira (slika 2(a)). Izbiti elektron se nato pospeši v zunanjem polju laserja (slika 2(b)) in ob rekombinaciji z ionom izseva višji harmonik vpadne laser-

ske svetlobe (slika 2(c)) [2]. Pri dvobarvnih poskusih lahko s pridom uporabimo nekatere lastnosti HHG svetlobe. Najpomembnejša je, da je intenziteta izsevane svetlobe približno konstantna do zelo visokih harmonskih redov, kar prikazuje spekter na sliki 2. To nam omogoča, da že na prvi stopnji dvofaznega poskusa dosežemo energijsko visoko ležeče stanje, v katerega vzbudimo znatno število atomov. Izsevani harmonik ima majhno spektralno širino, manjšo od razlike med energijskimi nivoji.

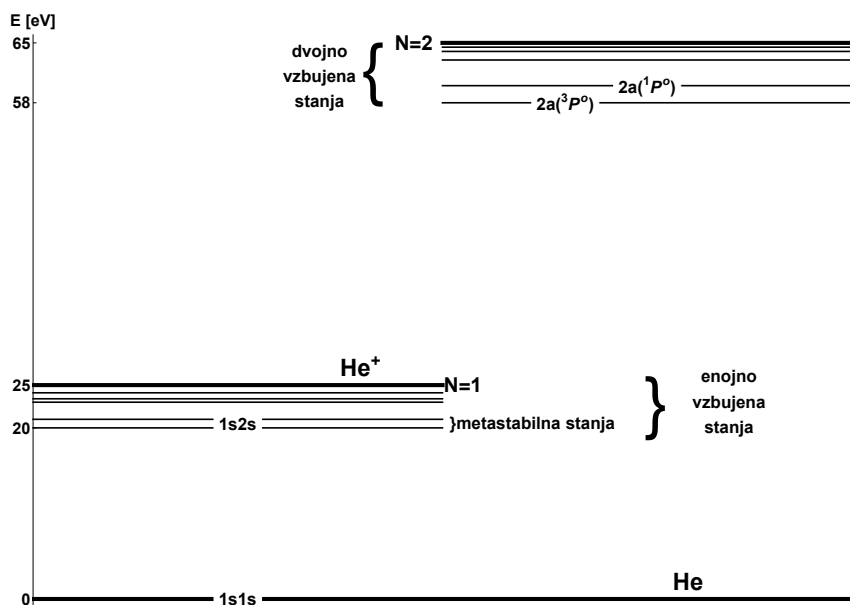
Na drugi stopnji večfaznega poskusa uporabljamo IR laser. Glavna prednost laserja je velika intenziteta in poslednično velika učinkovitost prenosa populacije iz vmesnega v končno stanje. To je še posebej pomembno pri kratkoživih stanjih, kjer lahko del atomov razpade že v času trajanja laserskega pulza. Laserska svetloba ima še manjšo spektralno širino, zato lahko natančno izberemo tudi visoko ležeča stanja, katerih energije ležijo precej blizu skupaj.

Pri dvobarvnih poskusih na kratkoživih stanjih je uporabno pulzno delovanje HHG in laserja, saj v času med zaporednima sunkoma praktično vsa vzbujena stanja razpadejo in lahko poskus ponavljamo z visoko frekvenco pri nespremenjenih pogojih.

Dodatna prednost dvobarvnih poskusov je, da omogočajo doseganje visoko ležečih stanj, ki imajo enako parnost kot osnovno stanje. To z enim fotonom ni mogoče, saj se pri dipolnem procesu parnost stanja obrne.

3. Energijska stanja helijevega atoma

3.1 Enojno in dvojno vzbujena stanja



Slika 3. Energijski nivoji helijevega atoma

Atom helija ima dva elektrona, zato elektronsko konfiguracijo podajamo v obliki $nl n' l'$, kjer sta n in l glavno in tirno kvantno število enega, n' in l' pa drugega elektrona. Osnovno stanje v prvem približku opišemo s konfiguracijo $1s^2 = 1s1s$. V tem stanju je celoten spin obeh elektronov $S = 0$.

Če atom vzbudimo tako, da ostane en elektron v orbitali $1s$, drugi pa gre v orbitalo $n' l'$, dobimo enojno vzbujena stanja $1s n' l'$. Za vsak par $n' l'$ ima dano stanje lahko skupen spin $S = 0$ ali pa $S = 1$. Energiji stanj z isto konfiguracijo in različnima spinoma sta v splošnem različni. Enojno vzbujena stanja segajo do prvega ionizacijskega praga helija, ki je pri 24.6 eV [4]. Predstavljamo si lahko, da z vzbujanjem atoma odmikamo enega od elektronov od atomskega jedra, dokler ni dovolj daleč, da dobimo ion v osnovnem stanju in prost elektron.

Namesto tega lahko atom vzbudimo tako, da noben izmed elektronov ni več v orbitali $1s$. Tako dobimo dvojno vzbujena stanja s konfiguracijami $2ln'l'$ z $n' > 1$. Najnižje dvojno vzbujeno stanje ima torej konfiguracijo $2s^2 = 2s2s$. Tudi v tem primeru sta pri vsaki konfiguraciji možna spina $S = 0$ in $S = 1$. Takšna dvojno vzbujena stanja segajo do drugega ionizacijskega praga helija pri energiji 65.4 eV [4]. Energijske nivoje enojno in dvojno vzbujenih stanj prikazuje slika 3.

Vzbuditev iz $1s1s$ v $2ln'l'$ sicer z enim fotonom ni možna, lahko pa ta stanja vseeno dosežemo iz osnovnega stanja, saj je slednje močno korelirano. To pomeni, da osnovno stanje zapišemo z linearno kombinacijo baznih valovnih funkcij več konfiguracij. Pri tem je $1s^2$ konfiguracija z največjim koeficientom v razvoju. Tudi vsa dvojno vzbujena stanja so močno korelirana, medtem ko so enojno vzbujena šibko.

3.2 Notacija

V atomski fiziki se je za označevanje dvojno vzbujenih stanj $2ln'l'$ uveljavila drugačna notacija:

$$n'x(2^{S+1}L^p). \quad (1)$$

Tu je S skupni spin obeh elektronov, L skupna tirna vrtilna količina, p predstavlja parnost stanja, ki je lahko bodisi o (odd, liho), bodisi e (even, sodo), x pa je oznaka stanja a , b ali c . Slednja je potrebna, ker zaradi močne koreliranosti dvojno vzbujenih stanj teh ne moremo opisati z eno (vodilno) konfiguracijo. Na primer oznaka $4(1P^o)$ označuje stanje $2l4l'$, pri čemer mora biti $|l - l'| \leq 1 \leq l + l'$ ter $l + l'$ liho. Take možnosti so $2s4p$, $2p4s$ ter $2p4d$. To so konfiguracije baznih stanj, katerih linearne kombinacije nato tvorijo atomska stanja. Ta v našem primeru označimo kot $4a(1P^o)$, $4b(1P^o)$ in $4c(1P^o)$.

Na opisan način lahko enolično označimo vsa dvojno vzbujena stanja.

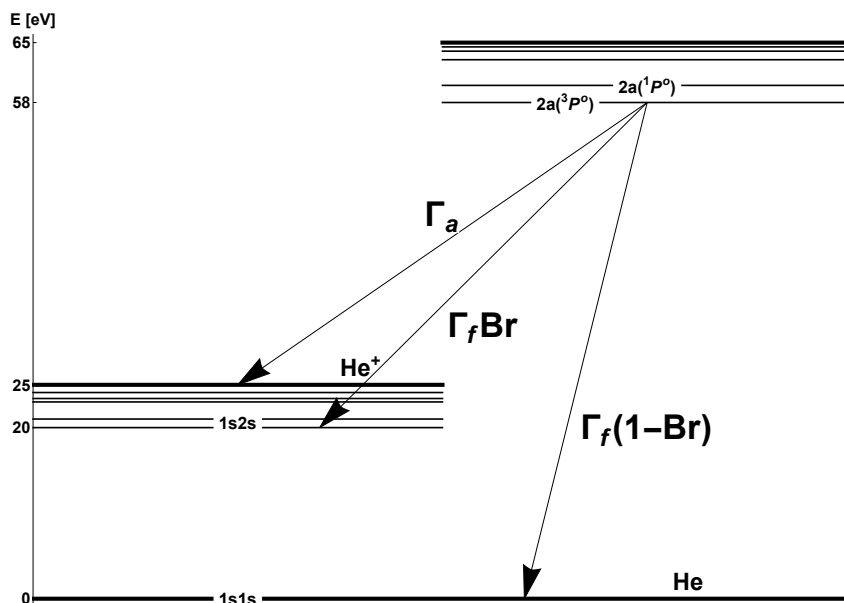
3.3 Življenjski časi in razpadi

Vsa vzbujena stanja helijevega atoma so kratkoživa. Z izjemo metastabilnih stanj imajo enojno vzbujena stanja življenjske čase reda velikosti nekaj nanosekund. V tem času se večina vzbujenih atomov s kaskadnimi razpadi preko vmesnih stanj vrne v osnovno stanje. Izjeme so stanja $1s2s$. Njihovi življenjski časi so 8000 ms [5] za tripletna in 20 ms [6] za singletno stanje, zato pravimo, da so metastabilna (skoraj stabilna). Njihov življenjski čas je dovolj dolg, da v njem atomi prepotujejo realno razdaljo med tarčo in detektorjem, zato lahko število atomov v metastabilnih stanjih izmerimo. To dejstvo je uporabljeno tudi v dvobarvnem poskusu, opisanem v nadaljevanju.

Dvojno vzbujena stanja imajo še krajše življenjske čase, pod nanosekundami. Za razliko od enojno vzbujenih stanj pa razpadajo na dva različna načina. Prvi (pogosto dominanten) razpadni kanal je avtoionizacija. To pomeni, da atomsko stanje razpade, nastaneta ion He^+ , ki je v osnovnem stanju, ter prost elektron. Drugi razpadni kanal predstavljajo fluorescenčni (tudi radiativni ali sevalni) razpadi, pri katerih se izseva foton. Atom v dvojno vzbujenem stanju se (podobno kot pri enojno vzbujenih stanjih) v več korakih vrne v osnovno, z nižjo verjetnostjo pa lahko tudi v eno od metastabilnih stanj. Takšnim večkoračnim razpadom pravimo kaskadni fluorescenčni razpadi. Meritev omogoča, da po razpadu ločimo atome v osnovnem stanju od atomov v metastabilnih stanjih. Razpadne kanale dvojno vzbujenih stanj prikazuje slika 4. Γ_a predstavlja avtoionizacijo, Γ_f , pomnožena z razvejitvenim razmerjem Br , fluorescenčni razpad, ki se konča v metastabilnem stanju, Γ_f , pomnožena z $(1 - Br)$, pa fluorescenčni razpad, ki se konča v osnovnem stanju.

3.4 Postavitev poskusa

Vzemimo helijev atom v osnovnem stanju in ga izpostavimo svetlobi HHG z energijo fotonov enako energijski razliki med osnovnim in nekim nizkim dvojno vzbujenim stanjem. Tako del atomov



Slika 4. Razpadni kanali dvojno vzbujenih stanj

prečrpamo iz osnovnega v to vmesno stanje. Dodajmo v sistem še IR laser s fotonsko energijo enako razliki energij med vmesnim in nekim drugim dvojno vzbujenim stanjem. Ta bo del atomov, ki so v danem trenutku v vmesnem stanju, prečrpal v izbrano dvojno vzbujeno stanje.

Obe zasedeni dvojno vzbujeni stanji bosta medtem razpadali. Znano je, v kakšnem deležu razpadata preko avtoionizacije in v kakšnem fluorescenčno, ter razmerje med zasedenostjo osnovnega ter metastabilnih stanj po fluorescenčnih razpadih [7, 8]. Zanimiva je predvsem končna zasedenost metastabilnih stanj, ki jo lahko merimo.

Doseženo končno stanje spreminjamo s tem, da spreminjamo energijo IR laserja. Ko bo njegova energija ravno na eni od resonanc, bo zasedenost metastabilnih stanj bodisi narasla, bodisi upadla, odvisno od zgoraj omenjenih razmerij. Tako lahko natančno določimo, kdaj smo zadeli resonanco, in s tem izmerimo spekter dvojno vzbujenih stanj.

4. Simulacije poskusa

4.1 Pristop z zasedbenimi enačbami

Označimo z N_0 , N_1 , N_2 in N_3 število atomov v osnovnem, vmesnem, izbranem višje ležečem dvojno vzbujenem ter metastabilnih stanjih $1s2s$. Število atomov v osnovnem stanju ob času $t = 0$ postavimo na $N_0 = 1$, vse ostale zasedenosti pa so na začetku 0. S tem računamo deleže atomov v vzbujenih stanjih ob kasnejših časih. Ker so preseki za vzbuditev relativno majhni, vzbudimo v višje ležeča stanja le malo atomov, zato lahko zasedenost osnovnega stanja ob vseh časih postavimo na $N_0 = 1$. Po analogiji z jedrskimi razpadi zapišemo zasedbene enačbe za N_1 , N_2 in N_3 takole [9]:

$$\frac{dN_1}{dt} = S_1 - S_2 N_1 - (\Gamma_{a1} + \Gamma_{f1}) N_1, \quad (2)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = S_2 N_1 - (\Gamma_{a2} + \Gamma_{f2}) N_2, \quad (3)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = Br_{13} \Gamma_{f1} N_1 + Br_{23} \Gamma_{f2} N_2. \quad (4)$$

Tu sta S_1 in S_2 deleža atomov, ki jih HHG in laser prečrpa v zgornje stanje, Γ_{ai} so razpadne širine za avtoionizacijo, Γ_{fi} pa za fluorescenčni razpad i -tega dvojno vzbujenega stanja. Br_{i3} je razvejitevno razmerje fluorescenčnih razpadov i -tega stanja, ki se končajo v metastabilnih stanjih.

V dobrem približku je časovna odvisnost obeh pulzov Gaussova s središčem pri $t = 0$ in širino σ_t . Iz tega sledi tudi, da je energija vpadnih fotonov razmazana, kar opišemo z Gaussovo porazdelitvijo s standardnim odklikom σ_E in povprečno vrednostjo ω . Zaradi časovne odvisnosti bosta od časa odvisna tudi člena S_1 in S_2 . Energijska odvisnost teh dveh členov pa se skriva v konvoluciji energijske porazdelitve laserja z gostoto stanj v končnem stanju. Ta ima Lorentzovo obliko okrog resonančne energije ω_R , njena širina pa je enaka celotni razpadni širini izbranega dvojno vzbujenega stanja $\Gamma = \Gamma_a + \Gamma_f$.

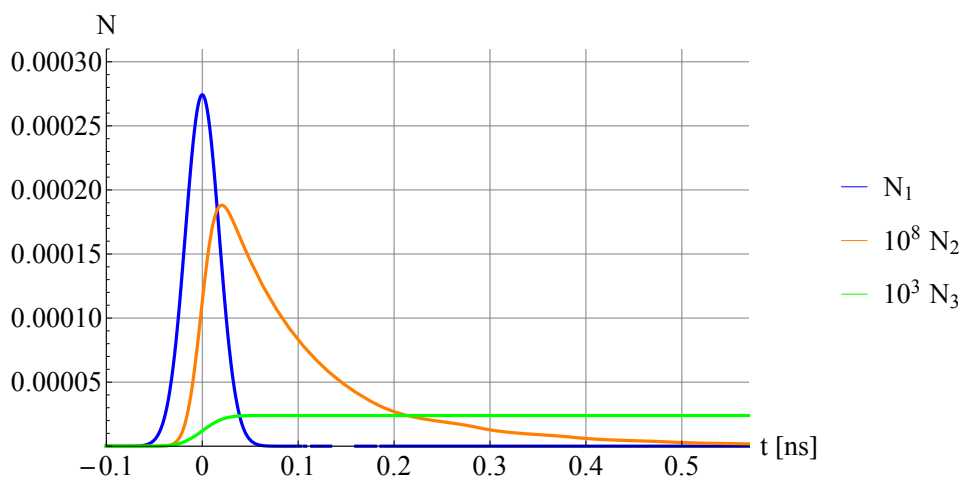
Če vsem količinam, ki pripadajo HHG dodamo indeks 1, za laser pa indeks 2, dobimo:

$$S_1 = A_1 \sigma_{ab1} \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma_{t1}^2}\right) \int \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{E1}} \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_1)^2}{2\sigma_{E1}^2}\right) \frac{\Gamma_1/2\pi}{(\omega - \omega_{R1})^2 + \Gamma_1^2/4} d\omega, \quad (5)$$

$$S_2 = A_2 \sigma_{ab2} \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma_{t2}^2}\right) \int \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{E2}} \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_2)^2}{2\sigma_{E2}^2}\right) \frac{\Gamma_2/2\pi}{(\omega - \omega_{R2})^2 + \Gamma_2^2/4} d\omega. \quad (6)$$

A_1 in A_2 sta normalizacijska člena, ki ju izračunamo iz znanih podatkov za število fotonov na sunek HHG in laserja, σ_{ab} pa je presek za absorpcijo fotona, integriran po energiji.

Če vstavimo enačbi (5) in (6) v enačbi (2) in (3), dobimo zasedbene enačbe, katerih rešitve podajajo časovno odvisnost zasedenosti vseh treh stanj. Tipično rešitev za primer, ko je $\omega_1 \approx \omega_{R1}$ in $\omega_2 \approx \omega_{R2}$, prikazuje slika 5.



Slika 5. Tipična časovna odvisnost zasedenosti vmesnega (modra), najvišjega (oranžna) in metastabilnega (zeleni) stanja.

Zasedenost vmesnega stanja razumljivo doseže vrh sočasno s pulzom HHG, nato pa zelo hitro pade, saj laser atome črpa v najvišje stanje. Zgornje stanje najvišjo zasedenost doseže z manjšim zamikom, nato pa eksponentno pada. Zasedenost najvišjega stanja je vseskozi precej nižja od zasedenosti vmesnega, saj se na vsakem koraku prečrpa le del atomov, hkrati pa vsa vzbujena stanja tudi razpadajo.

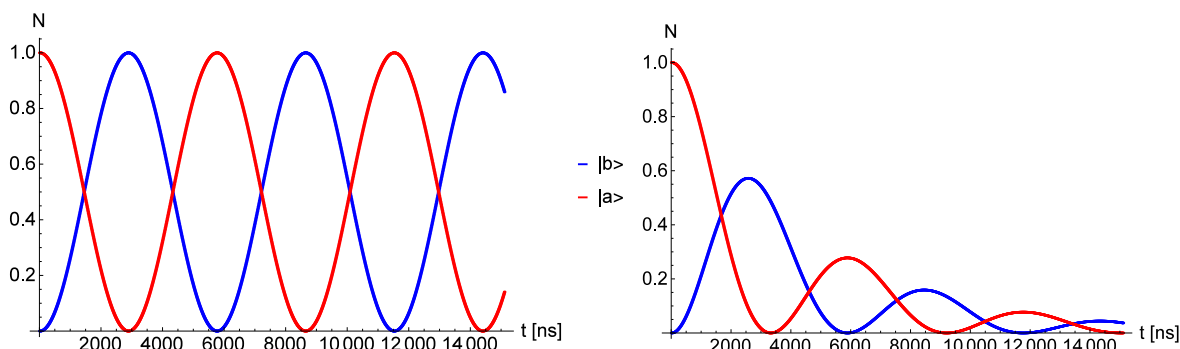
Metastabilno stanje se polni preko razpadov obeh drugih stanj in ker na časovni skali teh razpadov samo praktično ne razpada, se njegova zasedenost ustali. V primeru na sliki 5 konča v metastabilnem stanju 3×10^{-8} atomov. Ta delež se da povečati z ustrezno izbiro vmesnega stanja. Izbrati moramo stanje s čim daljšim življenjskim časom, da čim več atomov prečrpamo v najvišje stanje, preden razpadejo. Poleg tega mora biti Γ_{a1} tega stanja čim večji, B_{r1} pa čim manjši, da je v metastabilnem stanju na koncu večji delež atomov, razpadlih iz najvišjega stanja. Namreč, če na drugem koraku energije fotonov iz laserja ne nastavimo na resonanco, bomo pri poskusu vseeno dobili atome v metastabilnih stanjih, saj vanj razpada tudi vmesno stanje. Ta zasedenost bo, ko je

laser nastavljen na resonanco, predstavljala ozadje, na katerega se bo naložil delež razpadov v metastabilna stanja iz najvišjega stanja. Zanima nas razlika med celotno zasedenostjo metastabilnega stanja in ozadjem, zato želimo, da je ta čim večja. Simulacije kažejo, da je najprimernejše vmesno stanje $2a(^1P^o)$.

Pristop z zasedbenimi enačbami je sicer enostaven, vendar ima določene omejitve. Foton, z energijo enako energijski razliki med dvema stanjema, stimulira tudi prehode iz višje ležečega stanja v nižje ležeče, česar v opisanem primeru zasedbene enačbe ne upoštevajo. Glede na relativno nizko intenziteto laserja lahko predpostavimo, da je takih prehodov zelo malo. Poleg tega pride pri visokih intenzitetah laserja do premika stanj. Če pri visokih intenzitetah laserja spreminjamo energijo svetlobe HHG, lahko namesto enega opazimo dva vrhova, ki sta simetrično razmaknjena glede na prvotno resonančno energijo. Tudi ta efekt je pri nizkih intenzitetah zanemarljiv. Da preverimo, ča sta omenjeni poenostavitvi res smiselni, si oglejmo še simulacijo istega poskusa z gostotnimi matrikami.

4.2 Gostotne matrike

Vzemimo dvonivojski sistem z atomskima stanjema $|a\rangle$ in $|b\rangle$. Na začetku naj bodo vsi atomi v stanju $|a\rangle$, nato pa vklopimo elektromagnetno polje z energijo fotonov enako razliki energij $E_b - E_a$. Pravimo, da stanji optično sklopimo. Atomi prehajajo v obe smeri, število prehodov pa je sorazmerno številu atomov v posameznem stanju. Zasedenosti obeh stanj zato oscilirata, kot je prikazano levo na sliki 6.



Slika 6. Zasedenosti obeh stanj sklopljenega dvonivojskega sistema oscilirata z Rabijsko frekvenco.

Frekvenco tega nihanja imenujemo Rabijska frekvenca in jo izračunamo kot [10]

$$\Omega_{ij} = -\frac{\langle j|\vec{D}|i\rangle \cdot \vec{\mathcal{E}}}{\hbar}, \quad (7)$$

kjer je $\vec{\mathcal{E}}$ amplituda elektromagnetnega polja, $\vec{D} = e(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)$ pa operator električnega dipolnega momenta. Za atomska stanja $|i\rangle$ in $|j\rangle$ lahko velikost matričnega elementa izračunamo kot [8]

$$\langle j|D|i\rangle = \sqrt{\frac{\sigma_{abj}}{4\pi^2\alpha(E_j - E_i)}}, \quad (8)$$

kjer je α konstanta fine strukture.

Če v sistem dodamo še tretje stanje $|c\rangle$, v katerega na primer stanje $|b\rangle$ razpada, se amplituda oscilacij zmanjšuje, dokler vsi atomi ne končajo v stanju $|c\rangle$. Časovno odvisnost zasedenosti stanj $|a\rangle$ in $|b\rangle$ v tem primeru prikazuje desni graf na sliki 6.

Da bi pri simulacijah dvobarvnega poskusa upoštevali tako sklopitev, uporabimo gostotne matrike. Tronivojski sistem predstavimo z matriko dimenzij 3×3 s kompleksnimi koeficienti:

$$\begin{bmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} & \rho_{02} \\ \rho_{10} & \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{20} & \rho_{21} & \rho_{22} \end{bmatrix}. \quad (9)$$

Če zapišemo rešitev časovno odvisne Schrödingerjeve enačbe v bazi stanj $|i\rangle$, kot

$$|\psi\rangle = \sum_i C_i(t)|i\rangle, \quad (10)$$

velja v opisanem primeru za elemente gostotne matrike:

$$\rho_{ij} = C_i(t)C_j^*(t). \quad (11)$$

Iz zgornje enačbe je hitro razvidno, da je

$$\rho_{ij} = \rho_{ji}^*, \quad (12)$$

kar pomeni, da je potrebno izračunati le polovico izvendiagonalnih elementov.

Označimo z $|0\rangle$ osnovno, z $|1\rangle$ vmesno, z $|2\rangle$ pa izbrano končno stanje prej opisanega dvobarvnega poskusa ter z E_0 , E_1 in E_2 njihove energije. Diagonalni elementi matrike (9) ρ_{00} , ρ_{11} in ρ_{22} tako predstavljajo zasedenosti omenjenih stanj in sovpadajo z N_0 , N_1 in N_2 v zasedbenih enačbah. Izvendiagonalni elementi ρ_{ij} pa predstavljajo sklopitev med stanjema $|i\rangle$ in $|j\rangle$.

Iz Von Neumannove zveze $i\hbar\frac{\partial\rho}{\partial t} = [H, \rho]$ dobimo spodnje enačbe, ki podajajo časovni razvoj elementov gostotne matrike [10].

$$\frac{d\rho_{00}}{dt} = -\Gamma_0\rho_{00} + \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{01} - \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{10} \quad (13a)$$

$$\frac{d\rho_{11}}{dt} = -\Gamma_1\rho_{11} + \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{10} - \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{01} + \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{12} - \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{21} \quad (13b)$$

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -\Gamma_2\rho_{22} - \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{12} + \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{21} \quad (13c)$$

$$\frac{d\rho_{01}}{dt} = [i\Delta_1 - \frac{\Gamma_0}{2} - \frac{\Gamma_1}{2}]\rho_{01} + \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{00} - \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{11} + \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{02} \quad (13d)$$

$$\frac{d\rho_{02}}{dt} = [i(\Delta_1 + \Delta_2) - \frac{\Gamma_0}{2} - \frac{\Gamma_2}{2}]\rho_{02} + \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{01} - \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{12} \quad (13e)$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = [i\Delta_2 - \frac{\Gamma_1}{2} - \frac{\Gamma_2}{2}]\rho_{12} + \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{11} - \frac{i\Omega_{12}}{2}\rho_{22} - \frac{i\Omega_{01}}{2}\rho_{02} \quad (13f)$$

Ω_{01} in Ω_{12} v enačbah (13a) - (13f) sta Rabijevi frekvenci obeh sklopitev. Ker gre za laserska sunka s časovno spreminjajočo se amplitudo, sta tudi Rabijevi frekvenci časovno odvisni.

Prvi členi v enačbah diagonalnih elementov so enaki kot pri zasedbenih enačbah in predstavljajo spontani razpad stanj. Ker je v obravnavamen primeru $|0\rangle$ osnovno stanje, je $\Gamma_0 = 0$. V enačbi za ρ_{00} bi se sicer pojavila tudi člena, ki opisujeta razpad zgornjih dveh stanj v osnovno stanje, vendar se v praksi izkaže, da sta zanemarljiva. Členi z Rabijevimi frekvencami v enačbah diagonalnih elementov predstavljajo obe sklopitvi. Tisti z Ω_{01} sklopitev osnovnega stanja z vmesnim, tisti z Ω_{12} pa sklopitev vmesnega s končnim.

V enačbah izvendiagonalnih elementov nastopata energijska odmika (detuning) od obeh resonančnih energij $\Delta_1 = E_1 - E_0 - \omega_1$ in $\Delta_2 = E_2 - E_1 - \omega_2$. Ta odmika sta različna od 0, če frekvenci laserske oziroma HHG svetlobe nista nastavljeni natančno na energijsko razliko nivojev, ki ju sklapljata. Ker nas zanima le primer, ko sta energiji poravnani, so ti členi vsi enaki 0. Izvendiagonalni

elementi predstavljajo fazno povezavo med posameznima stanjema, ki jo spontan razpad znižuje. Členi z razpadnimi širinami zato v teh enačbah nastopajo z negativnim predznakom.

Dodajmo v sistem še metastabilno stanje $|3\rangle$. Časovni razvoj njegove zasedenosti v tem formalizmu lahko ob zgornjih predpostavkah zapišemo kot

$$\frac{d\rho_{33}}{dt} = Br_{13}\Gamma_{f1}\rho_{11} + Br_{23}\Gamma_{f2}\rho_{22}. \quad (14)$$

Za simulacijo opisanega dvobarvnega poskusa postavimo začetni pogoj $\rho_{00}(t=0) = 1$, vsi ostali elementi gostotne matrike pa so ob času $t=0$ enaki 0.

Vrednost ozadja pri meritvi v tem primeru dobimo tako, da amplitudo električnega polja laserja na drugem koraku postavimo na 0, da je $\Omega_{12} = 0$. S tem dosežemo, da so elementi gostotne matrike, ki opisujejo stanje $|2\rangle$ (ρ_{22}, ρ_{02} in ρ_{12}), vedno enaki 0.

Tipična rešitev zgornjih enačb za diagonalne elemente se ne razlikuje bistveno od tiste, prikazane na sliki 5. Zanimajo nas vrednosti ρ_{33} , če za končno stanje vzamemo različna dvojno vzbujena stanja.

4.3 Rezultati

Pri vseh simulacijah sem za vmesno stanje izbrala stanje $2a(^1P^o)$. Kočno stanje mora torej imeti parnost e in spin 0, zato sem si ogledala dvojno vzbujena stanja serij ($^1S^e$) in ($^1D^e$). Vsi podatki o stanjih so iz [7, 8].

Na prvi stopnji poskusa sem za HHG uporabila podatke iz tabele 1, za laser na drugi stopnji pa tipične podatke za IR laser, predstavljene v tabeli 2.

Intenziteta	$2.6 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$
Presek curka	50 μm
σ_{t1}	15 fs
σ_{E1}	11 meV

Tabela 1. Podatki o napravi HHG [11]

Intenziteta	$9.6 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$
Presek curka	50 μm
σ_{t2}	15 fs
σ_{E2}	11 meV

Tabela 2. Podatki o IR laserju [11]

Za boljšo predstavljivost podajam rezultate kot število izmerjenih atomov v metastabilnem stanju na sekundo. Privzela sem, da svetlobna curka prepotujeta razdaljo 1 mm skozi plinasto tarčo helija pri tlaku 10^{-4} mbar in sobni temperaturi [11]. Frekvenca ponavljanja poskusa je bila 5 kHz.

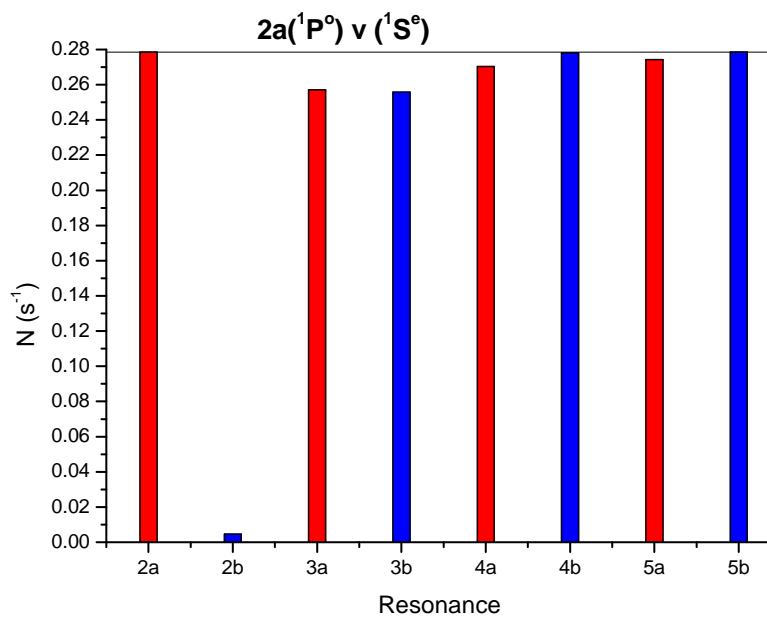
Grafa na sliki 7 prikazujeta rezultate simulacije z zasedbenimi enačbami. Vodoravna črna črta predstavlja ozadje.

V seriji ($^1S^e$) so razen za stanje $2b$ vsi rezultati zelo blizu ozadja in jih pri meritvi najverjetneje ne bi mogli razločiti. V seriji ($^1D^e$) pa od ozadja jasno odstopajo stanja z oznakami b in c , medtem ko so stanja a skrita v ozadju. Stanja b predvidoma izstopajo zaradi visokih razvejitenih razmerij Br , stanja c pa zaradi nizkih verjetnosti za avtoionizacijo. Pričakujemo torej, da bi z opisanim eksperimentom lahko izmerili stanja b in c v seriji ($^1D^e$).

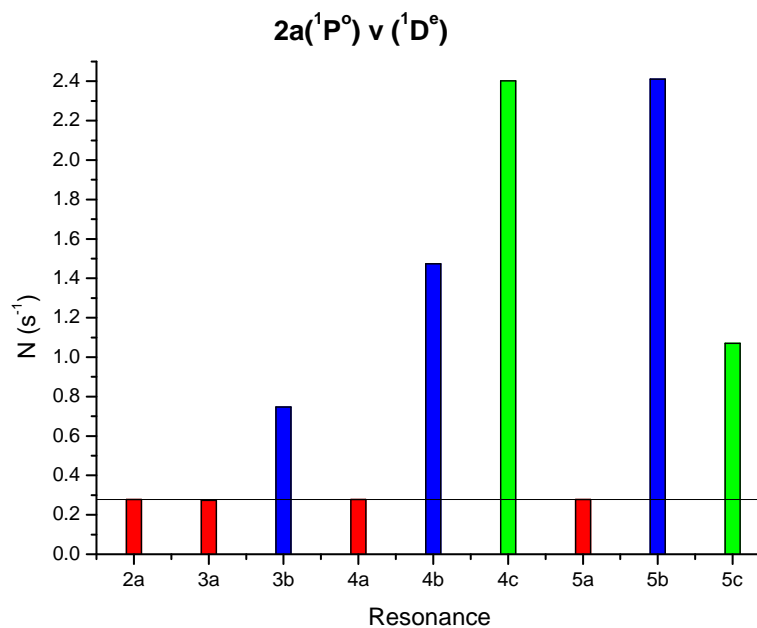
Za primerjavo so na sliki 8 prikazani še rezultati simulacije z gostotnimi matrikami.

Oblika spektra ostaja podobna kot pri simulaciji z zasedbenimi enačbami, relativne razlike med stanji pa so nekoliko manjše. Razlika med signalom iz serije ($^1S^e$) ter ozadjem je še manjša kot na grafih na sliki 7. Teh stanj torej v eksperimentu res ne bi mogli opazovati. So pa zato črte na spodnjem grafu na sliki 8, ki pripadajo stanjem b in c še vedno veliko nad ozadjem in bi jih v eksperimentu zlahka opazili. V primerjavi s simulacijo z zasedbenimi enačbami, da simulacija z gostotnimi matrikami sicer nekoliko manjše število atomov v metastabilnem stanju na sekundo, vendar vseeno dovolj za izvedbo eksperimenta.

a)

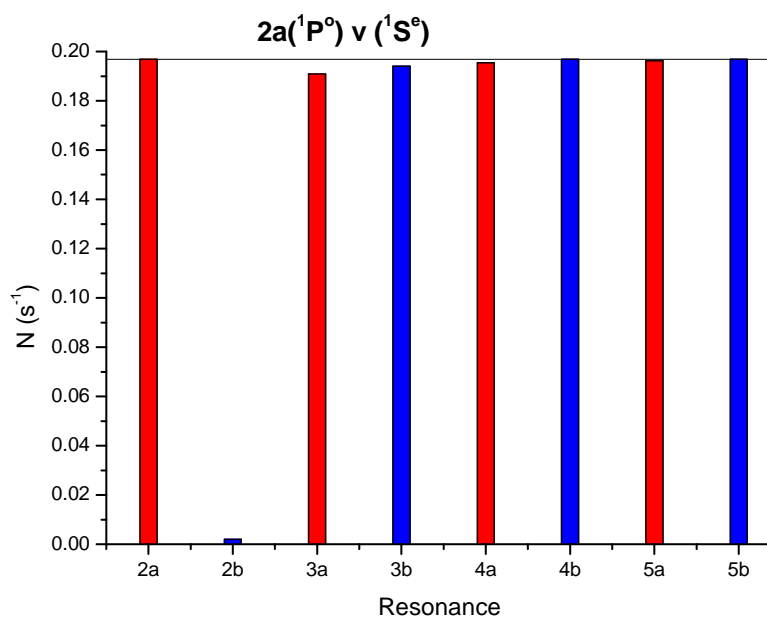


b)

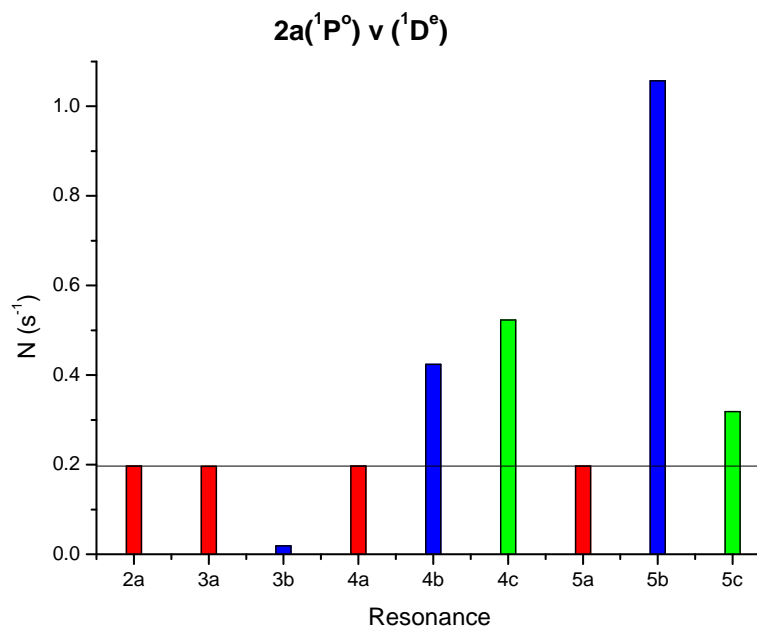


Slika 7. Število detektiranih atomov v metastabilnem stanju na sekundo za a) stanja ($^1S^e$) in b) stanja ($^1D^e$) - simulacija z zasedbenimi enačbami

a)



b)



Slika 8. Število detektiranih atomov v metastabilnem stanju na sekundo za a) stanja ($^1S^e$) in b) stanja ($^1D^e$) - simulacija z gostotnimi matrikami

5. Zaključek

Tista dvojno vzbujena stanja helijevega atoma, ki z absorpcijo fotona niso neposredno dostopna iz osnovnega stanja, so zaradi omejenih zmožnosti virov koherentne svetlobe eksperimentalno slabo raziskana. Nove možnosti ponuja razvoj svetlobnih virov HHG, še posebej, ker imamo enega tudi v Sloveniji. Simulacije kažejo, da bi z dvobarvnim poskusom, ki vključuje HHG in IR laser, ta stanja lahko opazovali. Z detekcijo atomov v metastabilnih stanjih bi sicer razločili samo dvojno vzbujena stanja b in c serije ($1D^e$) ter stanje $2b$ serije $1S^e$. Z merjenjem nastalih ionov helija ali prostih elektronov pa bi lahko opazovali še nekatera druga.

Dvobarvni poskus na kratkoživih stanjih helijevega atoma, ki je opisan v tem prispevku, predstavlja enostavno različico poskusa pump-probe. V splošnem bi pri takem poskusu lahko spreminjali tudi zamik med obema pulzoma vpadne svetlobe in s tem opazovali časovni razvoj sistema. Takšni poskusi so se uveljavili v kemiji, za preučevanje kemijskih reakcij, v katerih igrajo glavno vlogo kratkoživa vmesna stanja. Omogočili so razvoj nove veje kemije, ki ji pravimo femtokemija in je leta 1999 že bila deležna Nobelove nagrade [12].

Zahvale

Zahvala za pomoč pri pripravi tega dela gre na prvem mestu mojemu mentorju Andreju Miheliču, poleg tega pa tudi Matjažu Žitniku in ostalim sodelavcem na odseku F2 inštituta Jožef Štefan.

LITERATURA

- [1] F. J. Wuilleumier, M. Meyer, *Pump-probe experiments in atoms involving laser and synchrotron radiation: an overview*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **39** (2006), R425–R477.
- [2] http://matrika.fmf.uni-lj.si/letnik-1/stevilka-1/Tvorba_visjih_harmonikov_svetlobe.html (7.11.2014).
- [3] <http://www.elettra.trieste.it/lightsources/labs-and-services/citius/citius.html> (29.1.2015).
- [4] G. Tanner, K. Richter in J. M. Rost, *The theory of two-electron atoms: between ground state and complete fragmentation*, Rev. Mod. Phys. **72** (2000), 497–544.
- [5] S. S.Hodgman, R. G. Dall, L. J. Byron, K. G. H. Baldwin, S. J. Buckman in A. G. Truscott, *Metastable helium: A new determination of the longest atomic excited-state lifetime*, Phys. Rev. Lett. **103** (2009), 053002.
- [6] R. S. Van Dyck, C. E. Johnson in H. A. Shugart, *Radiative lifetime of the 2^1S^0 metastable state of helium*, Phys. Rev. A **4** (1971), 1327.
- [7] A. Mihelič, Doktorska disertacija, Fakulteta za matematiko in fiziko UL, 2006.
- [8] A. Mihelič, neobjavljeno (2014).
- [9] M. G. Makris, P. Lambropoulos, *Reexamination of multiphoton ionization of xenon under 12.7-eV radiation*, Phys. Rev. A **77** (2008), 023415.
- [10] P. Lambropoulos, D. Petrosyan, *Fundamentals of Quantum Optics and Quantum Information*, Springer, 2007.
- [11] C. Grazioli et al, *CITIUS : an infrared-extreme ultraviolet light source for fundamental and applied ultrafast science*, Rev. Sci. Instrum. **85** (2014), 023104.
- [12] A. H. Zewail, *Femtochemistry. Past, present, and future*, Pure Appl. Chem. **72** (2000), 2219–2231.