УДК 535.374; 535.212

АНАЛИЗ МНОГОФОТОННЫХ ПЕРЕХОДОВ В РАМКАХ ДВУХУРОВНЕВОЙ СХЕМЫ

Т. И. Кузнецова

В статье анализируется вклад одной пары энергетических уровней в возникновение многофотонного поглощения при действии импульсной накачки. Предложена упрощенная модель для описания многофотонной ионизации, позволяющая находить приближенные оценки скорости процесса в зависимости от параметров системы.

Ключевые слова: многофотонное поглощение, импульсная накачка, ионизация, свободные электроны.

Введение. Среди исследований многофотонных процессов особое место занимает анализ вклада переходов локализованных атомных электронов в свободное состояние под действием лазерного поля. Исключительная роль свободных электронов в процессе многофотонной ионизации была акцентирована в классической работе Л. В. Келдыша [1] (см. также [2, 3]). Эти работы основывались на использовании Волковских функций для состояний свободных электронов. После работы [1] многофотонная ионизация в газах и конденсированных средах теоретически исследовалась во многих других работах (см., напр., [4]). Ниже будет предложено рассмотрение электронных переходов, основанное на использовании только стандартных стационарных состояний. Будет анализироваться многоквантовый переход в квантово-механической системе, имеющей только два энергетических уровня. Такой подход к нелинейным эффектам был изложен ранее в монографии [5], где с его помощью иллюстрировался механизм генерации второй гармоники лазерного излучения. Цель нашего расчета состоит в том, чтобы получить упрощенное описание многофотонного перехода, позволяющее находить полуколичественные оценки эффективности процесса. Работа ориентирована на приложения к экспериментальным исследованиям в оптическом диапазоне.

Многофотонное поглощение. Рассматривается двухуровневая система с энергиями уровней $\hbar\omega_a$ и $\hbar\omega_b$. Амплитуды уровней, зависящие от времени t, обозначаем a и b. Разность частот уровней обозначаем $\hbar\omega_b - \hbar\omega_a = \hbar\Omega$. Для квазимонохроматического

ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: tkuzn@lebedev.ru.

поля комбинация амплитуды поля и дипольного момента перехода пусть имеет вид $2F\cos\omega t$. Величина F включает медленную огибающую амплитуду поля $f(t)$, то есть $F = i^{-1}F_0 f(t)$, причем $f(0) = 0$. Удобно вести отсчет энергии от энергии нижнего уровня $\hbar\omega_a$. При этом будут рассматриваться случаи частот, удовлетворяющих условиям $\omega < \Omega$ либо $\omega \ll \Omega$. В расчетах будет использоваться "медленность" изменения огибающей по отношению к величине ω^2/Ω. Решение будем строить с помощью итераций.

Уравнения для амплитуд a и b будут следующие:

$$\frac{da}{dt} = 2F(\cos\omega t)b,$$

$$\frac{db}{dt} + i\Omega b = 2F(\cos\omega t)a \tag{1}$$

начальное условие для этой системы: $a(0) = a_0 = 1$, $b(0) = 0$.

В первом приближении имеем уравнение для поправки к решению

$$\exp(i\Omega t)\left(\frac{db_1}{dt} + i\Omega b_1\right) = F\exp(i\Omega t)[\exp(-i\omega t) + \exp(i\omega t)]. \tag{2}$$

Во втором приближении имеем

$$\frac{da_2}{dt} = 2F(\cos\omega t)b_1. \tag{3}$$

Здесь введена такая нумерация, при которой поправки к амплитуде a имеют четные номера, а поправки к амплитуде b – нечетные номера. Для последующих итераций имеем соотношения, аналогичные (2), (3),

$$\exp(i\Omega t)\left(\frac{db_n}{dt} + i\Omega t b_n\right) = F\exp(i\Omega t)[\exp(-i\omega t) + \exp(i\omega t)]a_{n-1} \tag{4}$$

и

$$\frac{da_m}{dt} = 2F(\cos\omega t)b_{m-1}. \tag{5}$$

Из (4), (5) можно увидеть, что каждая поправка будет представлять собой сумму степеней величин $F\exp(-i\omega t)$ и $F\exp(i\omega t)$. Для каждой из поправок можно записать выражение

$$a_m = F^m \sum_{s=-m}^{m} \alpha_{m,s}\exp(-i\omega st),$$

$$b_n = F^n \sum_{s=-n}^{n} \beta_{n,s}\exp(-i\omega st). \tag{6}$$

В задаче о многофотонном поглощении интерес представляет поправка, содержащая частоту, максимально близкую к частоте верхнего уровня. Для простоты расчета будем считать, что частота Ω кратна частоте накачки, то есть $\Omega = N\omega$, где N – нечетное целое число. При этом резонанс достигается на i-й итерации, на которой возникает осциллирующий множитель $\exp(-i\omega Nt)$.

Поскольку в каждой итерации коэффициенты перед "оптимальными" частотами можно выразить через коэффициенты, стоящие перед "оптимальными" частотами предыдущей итерации, нетрудно найти выражения для величин $\alpha_{m,m}$, $\beta_{n,n}$. Получаем

$$\beta_{n,n} = F^n i^{-n} \left(\prod_{q=1}^{n-1/2} [\Omega - (2q-1)\omega][-2q\omega] \right)^{-1} [\Omega - n\omega]^{-1},$$

$$\alpha_{m,m} = F^m i^{-m} \left(\prod_{q=1}^{m/2} [\Omega - (2q-1)\omega][-2q\omega] \right)^{-1}. \tag{7}$$

Формулы (7) применимы для поправок с номерами, меньшими, чем "резонансный" номер $N = \dfrac{\Omega}{\omega}$. Для поправки с номером N мы будем иметь уравнение с правой частью вида

$$\frac{d}{dt}(\exp(i\Omega t) b_n) \simeq F\alpha_{N-1,N-1} \exp(i\Omega t - iN\omega t). \tag{8}$$

Таким образом, правая часть будет содержать величину, которая не осциллирует, – напомним условие $\Omega = N\omega$. Отбрасывая осциллирующие слагаемые, получаем из уравнения (8) линейный рост модуля амплитуды со временем,

$$b_N \exp(i\Omega t) \simeq F\alpha_{N-1,N-1} t. \tag{9}$$

Используя выражение (7) и преобразуя входящее в него произведение, можем этот результат представить в виде

$$|b_N| \simeq \frac{F^N}{\omega^{N-1}} \frac{1}{([(N-1)/2]!)^2} \frac{1}{2^{N-1}} t. \tag{10}$$

В реальности рост амплитуды будет ограничен длительностью накачки, а также релаксационными процессами. Соответствующие изменения, связанные с учетом конечной шириной уровня b и дающие линейный рост квадрата амплитуды, мы опускаем.

Таким образом, упрощенный подход, использующий в расчетах только два уровня, дает степенную зависимость скорости поглощения от интенсивности накачки, что соответствует известным ранее результатам. При этом, несмотря на формализованный характер вычислений, мы получили, что резонансный эффект осуществляется только для нечетных итераций (что отвечает переходам с нижнего уровня на верхний). Можно предполагать, что двухуровневую схему целесообразно использовать также для качественного описания ряда других нелинейных эффектов.

Ионизация. Схему квантово-механических переходов далее следует изменить так, чтобы она отражала роль свободных электронов в процессе ионизации. Оставляем в прежней схеме нижний локализованный уровень a, уровень b пусть отвечает свободному электронному состоянию, добавляем в схему уровень c – еще одного свободного состояния. Первоначальным переходом в системе по-прежнему будет $a \to b$, но на всех последующих этапах рассматриваем только переходы $b \to c$ и $c \to b$. Последовательность итераций будет следующая

$$a_0 = 1,$$
$$\frac{db_1}{dt} + i\Omega' b_1 = 2F(\cos\omega t)a_0,$$

$$\frac{dc_m}{dt} + i\Omega'' c_m = 2F\frac{d_{bc}}{d_{ab}}(\cos\omega t)b_{m-1},\ m = 2, 4, 6, \ldots \tag{11}$$
$$\frac{db_n}{dt} + i\Omega' b_n = 2F\frac{d_{bc}}{d_{ab}}(\cos\omega t)c_{n-1},\ n = 3, 5, 7, \ldots.$$

В этой схеме все действия с амплитудами c и b, за исключением первой итерации, повторяют те действия, которые проводились в предыдущем разделе с амплитудами a и b. Введены обозначения для дипольных моментов d_{bc} и d_{ab}, соответственно, переходов $b \to c$ и $a \to b$. Частоты, отвечающие уровням b и c (и соответствующим свободным электронам), обозначены символами Ω' и Ω''. Разность между частотами невелика, она соответствует ближайшим волновым числам, определяемым размером области, в которой присутствует накачка. Можно считать, что $|\Omega' - \Omega''| \ll \Omega'$. Существенно, что для всех переходов между состояниями b и c матричный элемент перехода относится к двум свободным электронным состояниям. Отличие его от элемента, связывающего локализованное и свободное состояния, явно учитывается множителем d_{bc}/d_{ab}. Он действует для всех итераций, кроме первоначальной, и указывает на более эффективное взаимодействие свободных электронов с полем по сравнению с локализованными электронами.

Анализируя итерационную схему, замечаем, что каждая из последовательных поправок к решению уравнений (11) представляет собой сумму гармоник вида $\exp(-i\omega st)$:

$$b_n(t) = F^n (d_{bc}/d_{ab})^{n-1} \sum_{s=-n}^{n} \beta_{n,s} \exp(-i\omega st),$$

$$c_m(t) = F^m (d_{bc}/d_{ab})^{m-1} \sum_{s=-m}^{m} \alpha_{m,s} \exp(-i\omega s t). \tag{12}$$

Подобно тому, как это делалось в предыдущем разделе, отыскиваем значения "оптимальных" коэффициентов $\alpha_{m,m}$ и $\beta_{n,n}$. Получаем

$$\alpha_{m,m} = F^m i^{-m} (d_{bc}/d_{ab})^{m-1} \left(\prod_{q=1}^{m/2} [\Omega' - (2q-1)\omega][\Omega'' - 2q\omega] \right)^{-1},$$

$$\beta_{n,n} = F^n i^{-n} (d_{bc}/d_{ab})^{n-1} \left(\prod_{q=1}^{(n-1)/2} [\Omega' - (2q-1)\omega][\Omega'' - 2q\omega] \right)^{-1} (\Omega' - n\omega)^{-1}. \tag{13}$$

Предполагаем, что одна из частот, например, Ω', кратна частоте накачки $\Omega' = N$, где N – нечетное число. В условиях, когда частоты Ω' и Ω'' близки, снова можем упростить выражение для произведения, и получить следующую формулу, которая отвечает линейному росту во времени модуля амплитуды b_N:

$$|b_N| \simeq \frac{F^N}{\omega^{N-1}} (d_{bc}/d_{ab})^{N-1} \frac{1}{([(N-1)/2]!)^2} \frac{1}{2^{N-1}} t. \tag{14}$$

Подчеркнем, что здесь, по сравнению с результатом предыдущего раздела, взаимодействие электрона с полем оказывается многократно усиленным (поскольку $d_{bc} \gg d_{ab}$). Здесь в переходе участвуют электронные функции, которые охватывают область не атомарного, а субмикронного или даже микронного масштаба.

В заключение упомянем еще один многоквантовый эффект, в котором также могут проявляться переходы между состояниями свободных электронов. Эффект наблюдался в работе [6], в ней, при освещении образцов синтетического опала лазерной накачкой, было получено интенсивное вторичное излучение на частотах, существенно превосходящих частоту накачки. По нашему предположению (см. [7]), в кристалле, в условиях работы [6], при двухфотонном поглощении возникает короткоживущее излучающее состояние. Роль делокализованных электронов состоит в том, что с их участием возбуждение происходит эффективно. Обеспечивается высокая амплитуда возбужденного состояния, радиационный распад которого дает в результате ап-конверсию. Используя формулу (13), можно сказать, что вклад свободных электронов в амплитуду возбужденного состояния должен значительно превышать вклад локализованных электронов даже для двухфотонного процесса (малый показатель нелинейности, $N = 2$). Для двухфотонного процесса имеем различие в (d_{bc}/d_{ab}) раз. Указанное отношение можно оценить, используя величины периода кристалла (0.3 мкм) и радиуса электронной орбиты

(10^{-8} см), что дает различие в 3000 раз. Эта оценка дополнительно подчеркивает роль вклада свободных электронов в возникновение нелинейно-оптических явлений. Обращение к двухуровневой квантово-механической схеме может оказаться целесообразным при анализе результатов других нелинейно-оптических экспериментов.

Л И Т Е Р А Т У Р А

[1] Л. В. Келдыш, ЖЭТФ **47**(5), 1945 (1964).

[2] Л. В. Келдыш, УФН **187**(11), 1280 (2017).

[3] А. М. Желтиков, УФН **187**(11), 1169 (2017).

[4] L. Berge, St. Skupin, Discrete and continuous dynamical systems **23**(4), 1099 (2009).

[5] P. W. Milonni, J. H. Eberly, *Laser Physics* (Wiley, New Jersey, 2010).

[6] Н. В. Чернега, А. Д. Кудрявцева, Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования № 7, 23 (2009). DOI: 10.1134/S1027451009040053.

[7] Т. И. Кузнецова, Краткие сообщения по физике ФИАН **48**(11), 37 (2021).

Поступила в редакцию 27 октября 2022 г.
После доработки 31 октября 2022 г.
Принята к публикации 1 ноября 2022 г.