ЛЕКЦИЯ #09
НЕСТАЦИОНАРНАЯ ТЕОРИЯ ВОЗМУЩЕНИЙ
ВЫСШИЕ ПРИБЛИЖЕНИЯ - 2

§ 9.0 Разминка

✧ **Р17** Оценить квадратичную поляризуемость $\chi_2 \equiv \chi^{(2)}[2\omega]$ частицы, находящейся в основном состоянии в потенциале **смещенной** параболической ямы

$$U(x) = \frac{m\Omega^2}{2}(x-a)^2$$

(потенциал и стационарные состояния **не** обладают определенными четностями).

✧ **Р18** Оценить (параметрически и численно) квадратичную поляризуемость свободного электрона $\chi_2 \equiv \chi^{(2)}[2\omega]$ на стандартной частоте ω_s и сравнить ее с квадратичной восприимчивостью типичного свободного атома.

§ 9.1 Высокочастотная асимптотика квадратичной восприимчивости: классический подход

◆ В прошлой лекции для главного члена высокочастотного разложения квадратичной восприимчивости из квантовой формулы получено выражение

$$\boxed{\chi_2^{(6)} = -\frac{e^3}{16m^3}\omega^{-6}\langle U'''\rangle}. \qquad (1)$$

Это выражение не содержит постоянной Планка $\hbar$, что указывает на возможность его классического вывода. Рассмотрим ВЧ асимптотику квадратичной поляризуемости в классической модели с уравнением движения

$$m\ddot{x} + U'(x) = e\mathcal{E}\cos\omega t. \qquad (2)$$

Пусть $x_0(t)$ - невозмущенный (найденный при $\mathcal{E}=0$) закон движения. Считая возмущение малым, представим решение возмущенной задачи в виде $x(t) = x_0(t) + \xi(t)$, где $\xi(t) \sim \mathcal{E}$ - линейный отклик. Подставляя $x(t)$ в уравнение движения и линеаризуя его по ξ, получаем уравнение для отклика

$$m\ddot{\xi} + U''\xi = e\mathcal{E}\cos\omega t \qquad (3)$$

При $\omega \to \infty$ можно пренебречь вторым членом в левой части и найти $\xi(t)$:

$$\xi(t) \approx -\frac{e\mathcal{E}}{m\omega^2}\cos\omega t \qquad (4)$$

В следующем приближении положим $x(t) = x_0(t) + \xi(t) + \eta(t)$, где $\eta(t) \sim \mathcal{E}^2$ - квадратичный отклик. Подставляя $x(t)$ в уравнение движения и приравнивая члены второго порядка по полю, получаем

$$m\ddot{\eta}+U''\eta=-\frac{U'''}{2}\xi^2. \qquad (5)$$

Считая, что функция $U'''(t)$ меняется со временем медленно в сравнении со внешним полем, для квадратичного отклика на удвоенной частоте на данном небольшом интервале времени получаем

$$\eta(t)\approx-\frac{U'''}{16}\frac{e^2\mathcal{E}^2}{m^3\omega^6}\cos 2\omega t \qquad (6)$$

Усредняя эту величину по времени (или по инвариантной компоненте классического невозмущенного движения), получаем для высокочастотной асимптотики квадратичной поляризуемости

$$\chi_2\approx-\frac{e^3}{16m^3}\omega^{-6}\langle U'''\rangle \qquad (7)$$

которая в точности совпадает с результатом квантового расчета.

☆ Найти следующий член ВЧ разложения квадратичной поляризуемости $\chi_2[2\omega]$.

§ 9.2 Кубичная и другие поляризуемости

◆ Итерационные уравнения для амплитуд $a_k(t)$ интегрируются элементарно, и формулы для $a_k^{(N)}$ можно выписать в любом желаемом порядке N. Правила, облегчающие получение таких выражений, изложены в [ДК78, с.33-38].

🕮 [ДК78] - Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Атом в сильном световом поле. - М.: Атомиздат, 1978. - 287 с.

Выражения высших порядков громоздки: $a_k^{(N)}$ содержит сумму 2^N слагаемых с разными зависимостями от ω_{nm} и ω. Содержательная же часть расчетов - вычисление матричных элементов, частот переходов и бесконечных сумм их комбинаций - не элементарна. Поэтому мы ограничимся простыми оценками, вид которых легко установить. При каждой новой итерации в числитель амплитуды войдет множитель $V_{mn}/\hbar\sim\tilde{\Omega}$, а интегрирование по времени добавит в знаменатель множитель, представляющий линейную комбинацию частот ω_{nm} и ω: оценим ее как типичную расстройку $\tilde{\Delta}$. Зависимость дипольного момента от времени в порядке N будет содержать те же гармоники, что и функция $\cos^N\omega t$. Так, члены третьего порядка по полю дадут в дипольный момент вклад

$$\vec{d}_3(t)=\vec{d}_3[\omega]\cos\omega t+\vec{d}_3[3\omega]\cos 3\omega t. \qquad (8)$$

Первый член описывает изменение линейной поляризуемости под действием внешнего поля, а второй описывает генерацию третьей гармоники. В поляризуемость третьего (и вообще любого нечетного) порядка входят “контуры” из **четного** числа матричных элементов вида $x_{nm}x_{ml}\ldots x_{kn}$. В таких контурах все переходы могут быть разрешены по четности. Отсюда получается оценка

$\chi_3 \sim \mathcal{E}_p^{-2}\chi_1$, где $\mathcal{E}_p$ - "поле поляризуемости" (см. § 8.2). Аналогичное соотношение,

$$\boxed{\chi_N \sim \mathcal{E}_p^{1-N}\,\chi_1} \tag{9}$$

получается для высших поляризуемостей (**нечетных** порядков: в четных надо учесть зависимость от симметрии при инверсии - см. случай χ_2).

★ Выше мы получили для прозрачных диэлектриков оценку $\mathcal{E}_p = 3.2\cdot 10^6$ Гс. Ее можно сравнить с величинами $\mathcal{E}_p$, определенными по **измеренным** значениям высших поляризуемостей. Так, из значения κ_4 для формиата лития (LFM) получается $\mathcal{E}_p = 5.2\cdot 10^6$ Гс, а из κ_5 для кальцита ($CaCO_3$) - $\mathcal{E}_p = 3.6\cdot 10^6$ Гс.

☆ Оценить кубичную поляризуемость $\chi_3[3\omega]$ атома Na на стандартной частоте ω_s.

§ 9.3 Многофотонная ионизация: простая оценка скорости

◆ При рассмотрении переходов в непрерывный спектр с помощью первого порядка теории возмущений в § 3.1 было установлено, что такие резонансные переходы возможны, если энергия фотона $\hbar\omega$ превосходит энергию связи электрона в начальном состоянии: $E_k = E_n + \hbar\omega > 0$. Если это условие не выполнено, то скорость переходов в первом порядке теории возмущений равна нулю, и для описания процесса фотоионизации надо использовать высшие порядки теории возмущений. Начнем со второго порядка. Если $a_m(t)$ - амплитуды состояний дискретного спектра, то вероятность перехода в одно из состояний ν непрерывного спектра дается формулой

$$W_\nu(t) = \left|\frac{1}{\hbar}\sum_m \int_{-\infty}^{t} V_{\nu m}(t')a_m(t')e^{i\omega_{\nu m}t'}dt'\right|^2 \tag{10}$$

Поскольку однофотонного перехода в непрерывный спектр нет, амплитудой начального состояния $a_n \approx 1$ можно пренебречь. Для амплитуд других состояний дискретного спектра $a_m(t)$ можно использовать выражения, найденные выше (в § 2.3) по теории возмущений. Поскольку основной вклад в амплитуды состояний, лежащих по энергии выше начального, дает компонента возмущения с отрицательной частотой (см. § 3.2), сохраним только ее, положив $\hat{V}(t) = \hat{V}e^{-i\omega t}/2$. Тогда в первом порядке теории возмущений имеем

$$a_m^{(1)}(t) = -\frac{V_{mn}}{2\hbar}\cdot\frac{e^{i(\omega_{kn}-\omega)t}}{\omega_{kn}-\omega}, \tag{11}$$

Здесь подразумевается, что $\omega_{kn} > 0$, где $|n\rangle$ - начальное состояние. Подстановка (11) в (10) дает выражение для вероятности перехода во втором порядке:

$$W_{n\nu}^{(2)}(t)=\left|\frac{1}{\hbar}\sum_m \int_{-\infty}^{t} \frac{V_{\nu m}V_{mn}}{4\hbar(\omega_{mn}-\omega)} e^{i(\omega_{\nu n}-2\omega)t'} dt'\right|^2 \qquad (12)$$

Зависимость от времени всех членов в сумме одинакова. Определим *составной матричный элемент* второго порядка соотношением

$$\tilde{V}_{\nu n}^{(2)}=\sum_m \frac{V_{\nu m}V_{mn}}{4\hbar(\omega_{mn}-\omega)} \qquad (13)$$

Тогда можно придать формуле для вероятности перехода вид

$$W_{n\nu}^{(2)}(t)=\frac{\left|\tilde{V}_{\nu n}^{(2)}\right|^2}{\hbar^2}\left|\int_{-\infty}^{t} e^{-i2\omega t'+i\omega_{\nu n}t'} dt'\right|^2 \qquad (14)$$

Это выражение отличается от найденного ранее (в § 3.2) для случая однофотонной ионизации только обозначениями. Если состояние с энергией $E_k = E_n + 2\hbar\omega$ принадлежит непрерывному спектру, то из (14) сразу следует ответ: скорость двухфотонной ионизации определяется выражением

$$\dot{W}^{(2)}=\frac{2\pi}{\hbar}\left|\tilde{V}_{n\vec{k}}^{(2)}\right|^2 \rho(E_k). \qquad (15)$$

Оно представляет обобщение золотого правила Ферми (GR_1) на второй порядок теории возмущений.

◆ Из определения составного матричного элемента (13) следует оценка

$$\tilde{V}_{n\nu}^{(2)} \sim \frac{\tilde{\Omega}}{\tilde{\Delta}} V_{n\nu} \approx \beta V_{n\nu}. \qquad (16)$$

Она легко обобщается на расчет в высших порядках теории возмущений: $\tilde{V}_{n\nu}^{(K)} \sim \beta^{K-1}V_{n\nu}$. Скорость K-фотонной ионизации можно оценить так:

$$\boxed{\dot{W}^{(K)} \sim \beta^{2(K-1)}\dot{W}^{(1)}} \qquad (17)$$

где $\dot{W}^{(1)}$ - скорость однофотонной ионизации полем частоты $K\omega$. Оценка (17) правильно передает зависимость скорости ионизации от интенсивности поля, но требует деликатного подхода к оценке параметра β.

★ **Пример.** Рассмотрим ионизацию атома натрия излучением стандартного лазера. Потенциал ионизации в этом случае равен $\hbar\omega_I = 5.14\,\text{эВ} = 4.42\hbar\omega_s$, и для перехода в непрерывный спектр необходимо поглощение 5 фотонов. Если, как то мы делали раньше, взять в качестве матричного элемента дипольного момента перехода величину $d_s = ea_0$, а эффективную расстройку оценить частотой излучения, $\tilde{\Delta}=\omega_s$, то из формулы (Ki) получим $\dot{W}^{(5)} \approx 7.8\cdot 10^{-17}\ \text{с}^{-1}$. Количественные расчеты дают для этих условий значение $\dot{W}^{(5)} \approx 8.2\cdot 10^{-10}\ \text{с}^{-1}$, на **семь порядков большее**.

◆ При оценке величины составного матричного элемента высокого порядка следует учесть **увеличение** матричных элементов переходов между возбужденными состояниями и **уменьшение** расстроек, связанное со сгущением уровней в атомных спектрах вблизи границы континуума. В итоге параметр теории возмущений $\beta = \tilde{\Omega}/\tilde{\Delta}$ может стать гораздо больше принятого нами значения $\beta_s = ea_0\mathcal{E}/\hbar\omega_s$.

◆ В экспериментах по многофотонной ионизации мишень представляет собой атомный пучок с плотностью атомов $n \le 10^{12}$ см$^{-3}$ и поперечным сечением $D \le 1$ см. Поперечник лазерного луча в фокусе $d \approx 10^{-2}$ см, а глубина области фокусировки $l \sim 10d \approx 10^{-1}$ см. Таким образом, одновременно действию излучения подвергается $N \approx nd^2 l \approx 10^7$ атомов. Детектор регистрирует лишь часть $(\eta \approx 10^{-2})$ вылетевших электронов. Поэтому эксперименты должны проводиться при условиях, когда вероятность W ионизации атома под действием импульса длительностью τ, $W = \dot{W}\tau$, велика в сравнении с $(N\eta)^{-1}$ (регистрируются фотоэлектроны) и мала в сравнении с единицей (нет насыщения). Середине этого диапазона, $W = (N\eta)^{-1/2}$, для атомов Na при $\tau \approx 10^{-8}$ с соответствует интенсивность $I_{\mathrm{exp}} = 820 I_s = 8.3 \cdot 10^{10}$ Вт см$^{-2}$. Уместен вопрос: применима ли при таких интенсивностях теория возмущений? Даже стандартная оценка параметра теории возмущений дает в этом случае $\beta_s = 0.035$, а сверх того надо учесть и перечисленные в предыдущем пункте факторы. Мы вернемся к обсуждению этих вопросов при рассмотрении альтернативных теорий ионизации атома в поле сильной электромагнитной волны. А пока декларируем результат:

> Существует область значений интенсивности, в которой наблюдаемая фотоионизация атомов может быть описана теорией возмущений. Однако граница применимости последней недалека от экспериментального окна.

EOL ☯