

09

Влияние формы коротких электромагнитных импульсов на вероятность квантовых переходов

© Н.Н. Розанов

ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия
e-mail: nnrosanov@mail.ru

Поступила в редакцию 04.07.2024 г.

В окончательной редакции 04.07.2024 г.

Принята к публикации 29.07.2024 г.

В рамках первого порядка теории возмущений без использования электрического дипольного приближения проведен анализ вероятности квантовых переходов микрообъектов под действием предельно коротких электромагнитных импульсов. Обсуждены правила отбора и определена зависимость вероятности переходов от параметров импульсов.

Ключевые слова: предельно короткие электромагнитные импульсы, электрическая площадь импульса, вероятность квантовых переходов.

DOI: 10.61011/OS.2024.08.59030.136-24

1. Введение

Прогресс в получении все более коротких импульсов излучения, вплоть до аттосекундного уровня, сделал реальным наблюдение проявлений движения электронов в атомах, молекулах и конденсированных средах [1]. Это требует и решения новых задач теории применительно к такой длительности воздействия импульсов на объекты и соответствующих соотношений между размерами объекта и пакета излучения. Помимо прямых численных расчетов, из которых сложно извлечь общие закономерности, в литературе используются два подхода. Первый основывается на приближении внезапных возмущений [2–4]; на этом пути удается получить общие выражения для вероятности переходов под воздействием предельно коротких импульсов [5]. Недостатком такого подхода служит игнорирование проявлений фронтов импульса, для которых напряженность поля недостаточно велика для применимости подхода. Второй подход — привлечение теории возмущений по полю, практически ее первого порядка. При этом в литературе используется электрическое дипольное приближение, справедливое, если размеры объекта много меньше центральной длины волны излучения или размеров пакета излучения. Условия применимости электрического дипольного приближения нарушаются для ряда важных случаев. Здесь можно упомянуть ридберговские атомы и молекулы [6,7], размеры которых могут достигать 1 нм, и квантовые точки [8]. В [9,10] отмечено также, что это приближение не позволяет получить корректные выражения для частоты отсечки при генерации высших гармоник интенсивного лазерного излучения в условиях его прохождения через разреженные газы.

Задачей настоящего сообщения служит анализ вероятности квантовых переходов микрообъектов, вызванных

воздействием предельно коротких электромагнитных импульсов, без привлечения электрического дипольного приближения. В следующем разделе приводятся постановка задачи и общие соотношения для вероятности переходов. Поскольку малая длительность импульса означает малость продольных по отношению к направлению распространения излучения размеров пакета поля, мы ограничимся здесь плосковолновым приближением для поля. Это оправдано, если поперечные размеры пакета значительно превосходят поперечные размеры объекта. Далее представлен анализ этих соотношений, причем основное внимание уделено выявлению зависимости вероятности переходов от характеристик импульса.

2. Постановка задачи и общие соотношения

Основываемся на нестационарном нерелятивистском уравнении Шредингера [11,12]

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = (\hat{H}_0 + \hat{V})\Psi. \quad (1)$$

Здесь \hbar — приведенная постоянная Планка. Невозмущенный гамильтониан \hat{H}_0 стационарен (не зависит от времени t). Волновые функции стационарных состояний с энергией $\hbar\omega_n$ невозмущенной системы (частицы или квантового микрообъекта) имеют вид $\Psi_n^{(0)}(\mathbf{r}, t) = \psi_n(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_n t)$. Возмущение \hat{V} описывает взаимодействие частицы с зарядом e и массой m с электромагнитным импульсом в отсутствие или при пренебрежении спиновыми эффектами [12]:

$$\hat{V} = -\frac{e}{mc} \mathbf{A} \hat{\mathbf{p}} + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2. \quad (2)$$

В (2) c — скорость света в вакууме, $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$ — импульс частицы и \mathbf{A} — векторный потенциал поля при калибровке с нулевым скалярным потенциалом.

Используем теорию возмущений, считая возмущение слабым. Стандартным образом разлагаем волновую функцию по базису стационарных состояний невозмущенной системы $\Psi_n^{(0)}(\mathbf{r}, t)$. Вероятность перехода под действием импульса конечной длительности из состояния i невозмущенной системы в состояние f в первом порядке теории возмущений дается общим выражением [11]

$$w_{fi} = \frac{1}{\hbar^2\omega_{fi}^2} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial V_{fi}}{\partial t} \exp(i\omega_{fi}t) dt \right|^2. \quad (3)$$

Здесь $\omega_{fi} = \omega_{gf} - \omega_i$ и матричные элементы оператора возмущения

$$V_{fi} = \int \psi_f^* \hat{V} \psi_i d\mathbf{r}.$$

В первом порядке теории возмущений мы можем пренебречь квадратичным по векторному потенциалу членом в (2). Вероятность перехода (3) примет вид [12]

$$w_{fi} = \frac{e^2}{m^2\omega_{fi}^2} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_f^* \mathbf{E} \nabla \exp(i\omega_{fi}t) \psi_i d\mathbf{r} dt \right|^2, \quad (4)$$

где

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$$

— электрическая напряженность поля при калибровке с нулевым скалярным потенциалом. Отметим, что в выражении (4) не используется электрическое дипольное (длинноволновое) приближение.

Будем теперь считать, что излучение — линейно поляризованная плоская волна, распространяющаяся вдоль оси x :

$$\mathbf{E} = E \left(t - \frac{x}{c} \right) \mathbf{e}_z \quad (5)$$

(\mathbf{e}_z — единичный вектор вдоль оси z). Плосковолновое приближение оправдано, если поперечные размеры структуры излучения превосходят поперечные размеры объекта. Тогда

$$w_{fi} = \frac{e^2}{m^2\omega_{fi}^2} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_f^* \frac{\partial}{\partial z} \psi_i E \left(t - \frac{x}{c} \right) \times \exp(i\omega_{fi}t) d\mathbf{r} dt \right|^2 = \frac{e^2}{m^2\omega_{fi}^2} I_{fi} I_E, \quad (6)$$

где

$$I_{fi} = \left| \int \psi_f^* \frac{\partial}{\partial z} \psi_i \exp\left(i \frac{\omega_{fi}}{c} x\right) d\mathbf{r} \right|^2, \quad (7)$$

$$I_E = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) \exp(i\omega_{fi}t) dt \right|^2.$$

Тем самым вероятность перехода факторизуется: помимо частоты перехода ω_{fi} и направления поляризации излучения вся зависимость от характеристик импульса излучения сосредоточена в множителе I_E , а зависимость от состояний микрообъекта, между которыми происходит переход, в множителе I_{fi} .

3. Анализ вероятности переходов

Обратимся сначала к фактору I_{fi} . Введя волновое число $k_{fi} = \omega_{fi}/c$, мы видим, что для переходов между „обычными“ (не слишком высоко возбужденными) состояниями выполняется условие $k_{fi}|x| \ll 1$, так что можно положить $\exp(ik_{fi}x) \approx 1$. Тогда мы приходим к обычному дипольному приближению [12]. Естественно, при этом сохраняются обычные правила отбора.

Для высоковозбужденных состояний (ридберговские атомы), а также для наночастиц величина $k_{fi}|x|$ может значительно превышать единицу. Тогда можно привлечь разложение

$$\exp(ik_{fi}x) = J_0(k_{fi}r \sin \theta) + 2 \sum_{j=1}^{\infty} J_j(k_{fi}r \sin \theta) \cos(j\theta). \quad (8)$$

Это разложение удобно применять в важном случае центросимметричного (не обязательно кулоновского) потенциала, при котором волновые функции невозмущенного гамильтониана представляются в виде [11]

$$\psi_{nlm} = R_{nl}(r) Y_{lm}(\theta, \varphi). \quad (9)$$

Здесь используются сферические координаты (r, θ, φ) , n, l и m — целочисленные главное, орбитальное и магнитное квантовые числа, $n = 1, 2, 3, \dots$, $l = 0, 1, \dots, n-1$ и $m = l, l-1, \dots, -l$. Сферические функции дополнительно факторизуются: $Y_{lm}(\theta, \varphi) = Q(\theta) \exp(im\varphi)$.

Обозначим квантовые числа для исходного состояния как n, l, m и для возбужденного как n', l', m' . Подставив разложение (8) в первую формулу (7) и выполнив интегрирование по φ , убеждаемся, что ненулевое значение фактора I_{fi} возможно при любом изменении магнитного числа (в диапазоне ограниченных орбитальным квантовым числом значений):

$$m' - m = \pm j, \quad j = 0, 1, 2, \dots, \quad |m'| \leq l', \quad |m| \leq l. \quad (10)$$

В соответствии с двумя знаками в первой формуле (10) при $j > 0$ происходит одновременное возбуждение двух состояний с различающимися магнитными числами.

Другое правило отбора заключается в том, что исходное и возбужденное состояния должны быть разной четности по z (или же по $\cos \theta$). Отсюда следует, что изменение орбитального квантового числа l должно быть нечетным числом:

$$l' - l = \pm 1, \pm 3, \pm 5, \dots, \quad 0 \leq l' \leq n' - 1, \quad 0 \leq l \leq n - 1. \quad (11)$$

Для переходов между не сильно возбужденными состояниями „обычных“ атомов вероятности „дополнительных“ переходов малы. При высокой точности спектроскопических измерений имеет смысл их дополнительный анализ, что, однако, не служит предметом настоящей статьи.

Основной интерес для нас заключается в анализе фактора формы импульса I_E . Для предельно коротких импульсов с длительностью τ_p много менее периода оптического перехода, $\omega_{fi}\tau_p \ll 1$, множитель I_E совпадает с квадратом электрической площади импульса $S_E = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{E} dt$: $I_E = S_E^2$. При этом переход fi может быть произвольной мультипольности.

В общем случае I_E — квадрат модуля спектральной компоненты электрической напряженности на частоте ω_{fi} . Зависимость этого фактора от длительности импульса удобно проиллюстрировать для импульса формы

$$E(t) = E_0 \exp(-t^2/\tau_p^2) \cos(\omega_p t + \varphi_p). \quad (12)$$

Для многоцикловых импульсов, $\omega_p \tau_p \gg 1$, параметры τ_p и ω_p имеют смысл длительности импульса и несущей частоты, для малоцикловых импульсов такая терминология условна. Импульс чисто униполярный при $\omega_p = 0$. Для импульса формы (12) спектр

$$\begin{aligned} E_\omega &= \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp(-i\omega t) dt \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{2} E_0 \tau_p \left\{ \exp\left[-\frac{1}{4}(\omega_p - \omega)^2 \tau_p^2\right] e^{i\varphi_p} \right. \\ &\quad \left. + \exp\left[-\frac{1}{4}(\omega_p + \omega)^2 \tau_p^2\right] e^{-i\varphi_p} \right\}, \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} I_\omega = |E_\omega|^2 &= \frac{\pi}{4} (E_0 \tau_p)^2 \left\{ \left[\exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p - \omega)^2 \tau_p^2\right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p + \omega)^2 \tau_p^2\right) \right]^2 - \left[\exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p - \omega)^2 \tau_p^2\right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p + \omega)^2 \tau_p^2\right) \right]^2 \sin^2 \varphi_p \right\}, \end{aligned} \quad (14)$$

электрическая площадь импульса

$$S_E = E_{\omega=0} = \sqrt{\pi} E_0 \tau_p \exp(-\omega_p^2 \tau_p^2 / 4) \cos \varphi_p, \quad (15)$$

энергия импульса (более точно, пропорциональная ей величина)

$$\begin{aligned} W &= \int_{-\infty}^{+\infty} E^2(t) dt \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{2}} E_0^2 \tau_p [1 + \exp(-\omega_p^2 \tau_p^2 / 2) \cos(2\varphi_p)]. \end{aligned} \quad (16)$$

Наконец, фактор

$$\begin{aligned} I_E = I_{\omega_{fi}} &= \frac{\pi}{4} (E_0 \tau_p)^2 \left\{ \left[\exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p - \omega_{fi})^2 \tau_p^2\right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p + \omega_{fi})^2 \tau_p^2\right) \right]^2 - \left[\exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p - \omega_{fi})^2 \tau_p^2\right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \exp\left(-\frac{1}{4}(\omega_p + \omega_{fi})^2 \tau_p^2\right) \right]^2 \sin^2 \varphi_p \right\}. \end{aligned} \quad (17)$$

Факторы I_ω , S_E^2 и I_E максимальны при $\sin \varphi_p = 0$, ввиду чего далее мы примем это условие. Тогда спектральная плотность I_ω и фактор I_E имеют при $\omega = 0$ максимум, если $\omega_p \tau_p < 1/\sqrt{2}$, и минимум в противоположном случае. Более правильным является сравнение эффективности возбуждения микрообъекта импульсами с совпадающей энергией W . Введем для этого безразмерные „длительность импульса“ $T = \omega_{fi} \tau_p$ и „несущую частоту“ $\Omega = \omega_p / \omega_{fi}$. Соответственно $I_E = \sqrt{\pi/2} (W/\omega_{fi}) i_E$. Множитель W/ω_{fi} можно сопоставить числу фотонов с частотой ω_{fi} , суммарная энергия которых равна W . Безразмерный фактор формы импульса

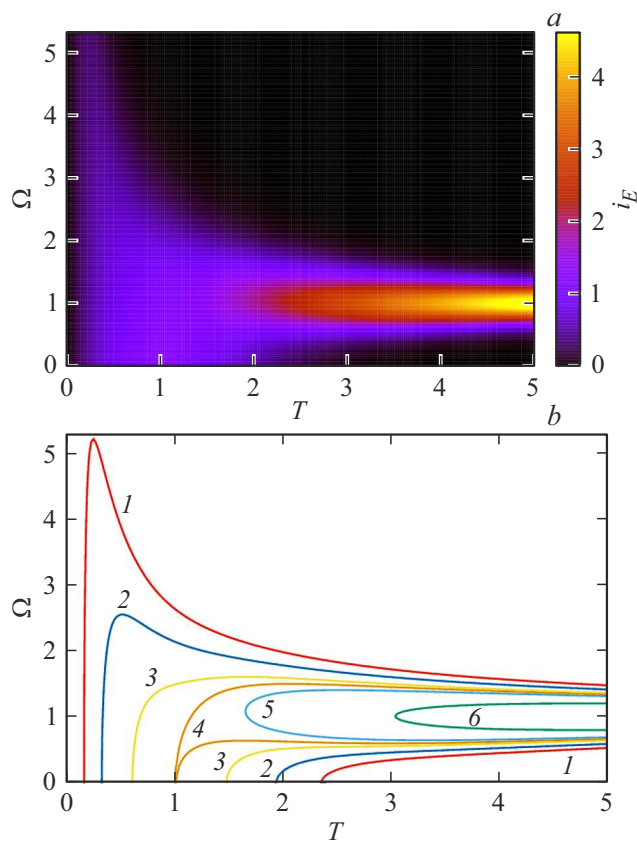
$$\begin{aligned} i_E &= \frac{T}{1 + \exp(-\Omega^2 T^2 / 2)} \\ &\quad \times \left\{ \exp[-(\Omega - 1)^2 T^2 / 4] + \exp[-(\Omega + 1)^2 T^2 / 4] \right\}^2. \end{aligned} \quad (18)$$

Для многоцикловых резонансных импульсов $\Omega = 1$, $\Omega T \ll 1$, отсюда находим $i_E = T$. Это отвечает асимптотически постоянной вероятности возбуждения объекта за единицу времени. В остальных случаях с увеличением длительности импульса фактор i_E сначала возрастает, достигая максимума, а затем убывает, как это показано на рисунке. Резонансное возбуждение оказывается более эффективным, чем в случае чисто униполярного импульса ($\Omega = 0$), при $T > 1.1$, тогда как для более коротких импульсов ситуация обратная.

Обсуждение

При указанных в статье предположениях стандартное приближение дипольного перехода оправдывается, если размер микрообъекта заметно меньше длины волны, связанной с этим переходом ($\lambda_{fi} = 2\pi c/\omega_{fi}$), и для длительностей импульса, меньших периода перехода ($2\pi/\omega_{fi}$). Естественно, что для применимости теории возмущений необходимо, чтобы вероятность перехода оставалась малой, $w_{fi} \ll 1$. Кроме того, длительность импульса должна быть меньше времен релаксации.

Описанная факторизация роли характеристик квантового микрообъекта и возбуждающего его пакета излучения оказалась возможной в случае плосковолновой формы импульса (5). Отклонения от такой формы возможны для пакетов поля, сфокусированных в область, меньшую размеров объекта, например, ридберовского



(а) Зависимость фактора поля i_E от безразмерных длительности импульса T и его частоты Ω . (б) То же в форме линий уровня $i_E(T, \Omega) = 0.3$ (кривая 1), 0.6 (2), 1 (3), 1.21 (4), 1.5 (5) и 3 (6).

атома. Это могло бы позволить осуществить томографию микрообъекта. Однако тогда разделение факторов микрообъекта и излучения становится уже невозможным, что приводит к снятию остающихся запретов на квантовые переходы. В этом случае, по-видимому, доступны лишь численные расчеты этих процессов. Такая запутанность служит проявлением сильно выраженной неточности микрообъекта, приводящей к эффектам пространственно-временной дисперсии, актуальной на макроуровне для кристаллов [13,14].

Автор глубоко сожалеет об уходе от нас Владимира Моисеевича Аграновича, большого ученого и замечательного человека, и с благодарностью вспоминает его мудрые суждения и советы.

Финансирование работы

Работа поддержана Российским научным фондом, грант 23-12-00012.

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] K. Midorikawa. *Nature Photonics*, **16**, 2670278 (2022).
- [2] W. Pauli. *Handbuch der Physik*, **24**, part 1, 83–272 (1933).
- [3] А.Б. Мигдал. *ЖЭТФ*, **9**, 1163–1165 (1939).
- [4] W. Magnus. *Commun. Pure Appl. Math.*, **7**, 649–673 (1954).
- [5] Д.Н. Макаров, В.И. Матвеев. *Письма в ЖЭТФ*, **103**, 464–468 (2016) [D.N. Makarov, V.I. Matveev. *JETP Lett.*, **103**, 415–419 (2016)].
- [6] *Rydberg states of atoms and molecules*, ed. by R.F. Stebbings, F.B. Dunning (Cambridge University Press, Cambridge, 1983).
- [7] T.F. Gallagher. *Rydberg Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, 1994).
- [8] А.И. Екимов, А.А. Онущенко. *Письма в ЖЭТФ*, **34**, 363–366 (1981). [A.I. Ekimov, A.A. Onushchenko. *JETP Lett.*, **34**, 345–349 (1981)].
- [9] H.R. Reiss. *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 043002 (2008).
- [10] H.R. Reiss. *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 159901 (2008).
- [11] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Квантовая механика (нерелятивистская теория)* (Наука, М., 1989). [L.D. Landau, E.M. Lifshitz. *Quantum mechanics* (Pergamon Press, Oxford, 1965)].
- [12] А.С. Давыдов. *Квантовая механика* (Наука, М., 1973). [A.S. Davydov. *Quantum mechanics* (Pergamon Press Ltd., Oxford, 1965).
- [13] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. *Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов* (Наука, М., 1979).
- [14] С.И. Пекар. *Кристаллооптика и добавочные световые волны* (Наукова думка, Киев, 1982).