

# Диффузионная динамика ридберговских состояний в поле излучения с непрерывным спектром

© А.С. Червинская, Д.Л. Дорофеев, **Б.А. Зон**

Воронежский государственный университет,  
394006 Воронеж, Россия

e-mail: dmitrii.dorofeev@gmail.com

Поступила в редакцию 29.07.2020 г.

В окончательной редакции 17.03.2021 г.

Принята к публикации 22.03.2021 г.

Рассмотрены перераспределение заселенности ридберговских состояний и ионизация атома в результате многоступенчатых каскадных переходов между состояниями под действием излучения с непрерывным спектром. Рассмотрение производится как путем непосредственного численного решения кинетических уравнений для заселенности состояний, так и посредством диффузионного приближения на основе уравнения Фоккера-Планка. На примере атома натрия, на который действует излучение с прямоугольным спектром, показано хорошее согласие диффузионного приближения с численным решением кинетических уравнений. В рамках диффузионного приближения получены оценки для заселенности состояний, скорости ионизации и минимальной спектральной плотности излучения, необходимой для значительной ионизации.

**Ключевые слова:** диффузионная ионизация, ридберговские состояния.

DOI: 10.21883/OS.2021.07.51070.207-20

## 1. Введение

Экспериментальное наблюдение многофотонной ионизации ридберговских состояний атома водорода СВЧ-излучением [1] (см. также [2]) стимулировало большое количество теоретических исследований, посвященных квантовой диффузии и классической теории возникновения и развития хаотического движения. Модель квантовой диффузии для указанного процесса была предложена в работе [3]. В этой модели внешнее поле считалось монохроматическим, что соответствовало условиям эксперимента [1]. Для появления в атомном спектре достаточного количества переходов с частотой, равной частоте воздействующего излучения, в работе [3] предполагалось значительное расщепление атомных уровней сильным полем. Дальнейший анализ вопроса [4] показал, что для этого необходимо поле с напряженностью порядка 10–20% от напряженности атомного поля на соответствующих возбужденных состояниях.

Суть механизма диффузионной ионизации состоит в том, что атом, находившийся в начальный момент времени в состоянии, прямая фотоионизация из которого невозможна или маловероятна, вследствие многоступенчатых каскадных переходов между уровнями под действием внешнего излучения приходит в какое-либо высоковозбужденное состояние, из которого он быстро ионизируется. Название данного механизма связано с тем, что многоступенчатые каскадные переходы эффективно описываются как процесс постепенной диффузии заселенности из начального состояния в состояние, всё более отличающиеся от него по энергии.

Классическое рассмотрение этой задачи, в частности хаотизация из-за переменного электромагнитного поля регулярных траекторий заряженной частицы в кулоновском поле, проводилось в большом числе работ. В качестве примера можно указать статьи [5–7]. Одними из первых обзорных статей, посвященных рассматриваемому вопросу, являются статьи [8,9].

В настоящей работе рассматривается диффузионная ионизация под действием излучения с непрерывным спектром. В этом случае для реализации каскадных процессов не требуется сильное возмущение атомного спектра и соответственно эти процессы оказываются возможными при более низкой интенсивности излучения.

По сравнению с диффузионной ионизацией в поле монохроматического излучения для излучения с непрерывным спектром данный тип ионизации исследован значительно меньше. В работе Каулакиса [10] была теоретически рассмотрена диффузионная ионизация ридберговских состояний в поле чернотельного излучения, однако при этом из модели была полностью исключена прямая фотоионизация из начального состояния, идущая одновременно с диффузионной. В экспериментальной работе [11] было отмечено существенное влияние каскадных процессов на вероятность фотоионизации, однако систематического исследования этих процессов не проводилось. Следует отметить также публикации Бетерова и сотрудников, которые экспериментально измерили скорость ионизации ридберговских состояний атомов щелочных металлов под действием чернотельного излучения [12], а также провели соответствующие теоретические расчеты [13,14], учитывая при этом кас-

кадные процессы, но с длиной каскадов, не превышающей четыре ступени.

Сложность учета многоступенчатых каскадных процессов заключается в том, что с увеличением количества ступеней резко увеличивается количество состояний, которые необходимо включать в расчет. Решить эту проблему позволяет переход от дискретного представления процесса (в виде кинетических уравнений) к непрерывному представлению — диффузионному приближению на основе уравнения Фоккера-Планка. Аналогичный подход активно используется для расчета столкновительной ионизации (см., например, [15–17]), однако для фотоионизации данный подход менее разработан.

В настоящей работе проводится систематический учет многоступенчатых каскадных процессов в диффузионном приближении на основе уравнения Фоккера-Планка, что делает рассмотрение более наглядным и допускающим качественные оценки. Мы показываем, что диффузионный процесс перераспределения заселенности по состояниям может приводить к существенному изменению вероятности ионизации по сравнению с прямой фотоионизацией из начального состояния. В качестве модельного объекта выбран атом Na. Рассмотрена его фотоионизация под действием излучения с прямоугольным спектром. Вместе с тем полученные результаты несложно обобщить на случай, например, чернотельного излучения. Результаты, полученные с использованием диффузионного приближения, сравнены с расчетом непосредственно на основе системы кинетических уравнений для заселенностей состояний атома.

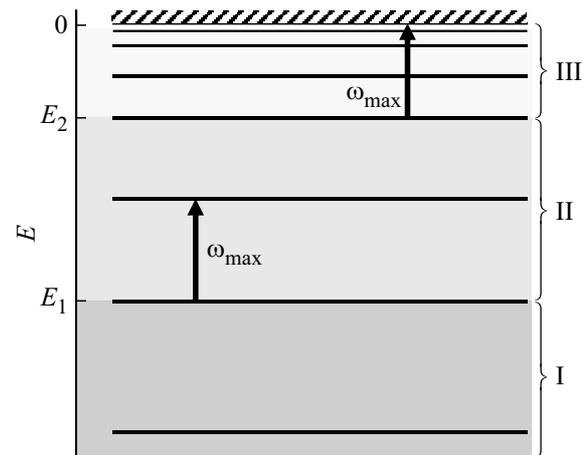
Все величины, если не указано иное, даны в атомных единицах.

## 2. Диффузия по состояниям под действием излучения с непрерывным спектром

Будем рассматривать поле малой интенсивности с непрерывным спектром. В этом случае можно пренебречь динамическим эффектом Штарка [3] и рассматривать эволюцию системы как последовательность переходов между уровнями с различными значениями главного и орбитального квантовых чисел. Будем считать, что в начальный момент времени электрон находится в некотором состоянии  $(n_0, l_0)$ , а последующие переходы и ионизация атома определяются системой кинетических уравнений:

$$\frac{dN_{nl}}{dt} = \sum_{n'l'} V(n'l' \rightarrow nl) N_{n'l'} - N_{nl} \left( \sum_{n'l'} V(nl \rightarrow n'l') + W_i(nl) \right), \quad (1)$$

где  $N_{nl}$  — заселенность состояния  $(nl)$ ,  $V(nl \rightarrow n'l')$  — вероятность перехода  $nl \rightarrow n'l'$ , равная сумме вероятностей



**Рис. 1.** Области в энергетическом спектре электрона: I — невозможны никакие вынужденные переходы; II — возможны вынужденные связанно-связанные переходы, но не прямая фотоионизация; III — возможна прямая фотоионизация;  $\omega_{\max}$  — максимальная частота в спектре излучения, действующего на атом.

стей вынужденного и спонтанного переходов

$$V(nl \rightarrow n'l') = V_{\text{ind}}(nl \rightarrow n'l') + V_{\text{sp}}(nl \rightarrow n'l'),$$

$W_i(nl)$  — вероятность прямой фотоионизации электрона из состояния  $(nl)$ .

В данной работе мы ограничиваемся только случаем стохастического излучения, фазы спектральных компонент которого представляют равномерно распределенные случайные величины. Именно это позволяет описать воздействие излучения системой кинетических уравнений (1) и пренебречь интерференционными эффектами.

Далее будем считать, что спектральная плотность действующего на атом излучения сосредоточена между граничными значениями частоты  $\omega_{\min}$  и  $\omega_{\max}$ . В этом случае можно разделить все спектральные уровни атома на три группы в зависимости от их энергии (рис. 1).

I.  $E_{nl} < E_1$ : область, где частоты всех разрешенных переходов превосходят  $\omega_{\max}$ , соответственно, излучение не может индуцировать какие-либо переходы в данной области.

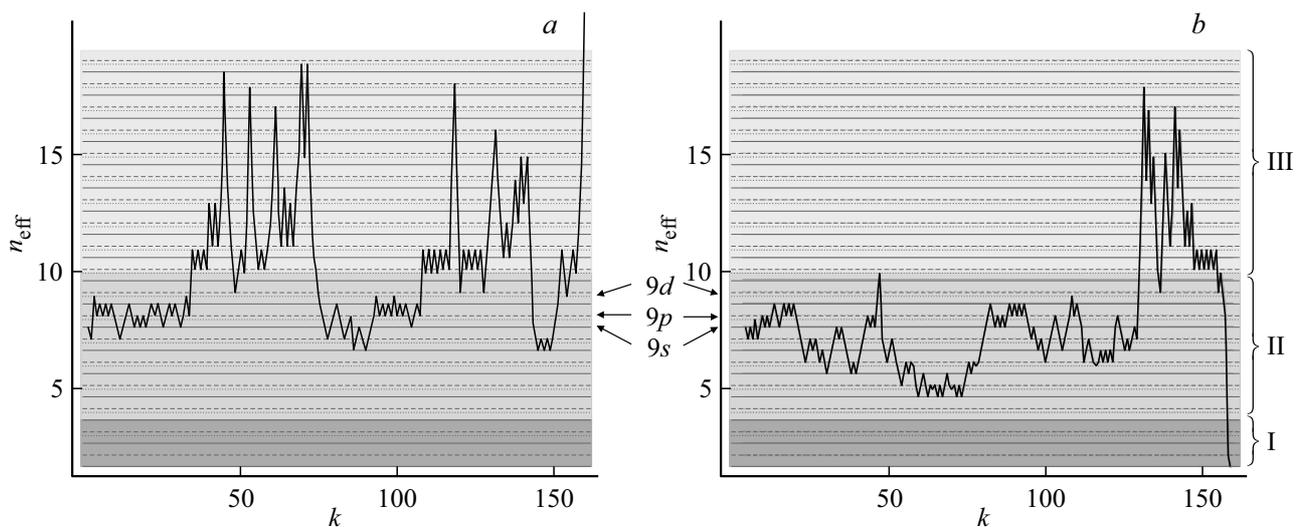
II.  $E_1 < E_{nl} < E_2 = -\omega_{\max}$ : область, где излучение может индуцировать связанно-связанные переходы, но прямая фотоионизация невозможна.

III.  $E_2 < E_{nl} < 0$ : область, где становится возможной прямая фотоионизация.

Значения главных квантовых чисел, соответствующие  $E_1$  и  $E_2$ , обозначим  $n_1$  и  $n_2$ .

Наибольший интерес для нас представляет область II, поэтому далее будем считать, что начальное состояние электрона  $(n_0, l_0)$  находится в этой области.

Выясним, насколько быстро происходит переход в область III, где возможна прямая фотоионизация. Используя в качестве модельного объекта атом натрия, на который действует излучение с прямоугольным спектром



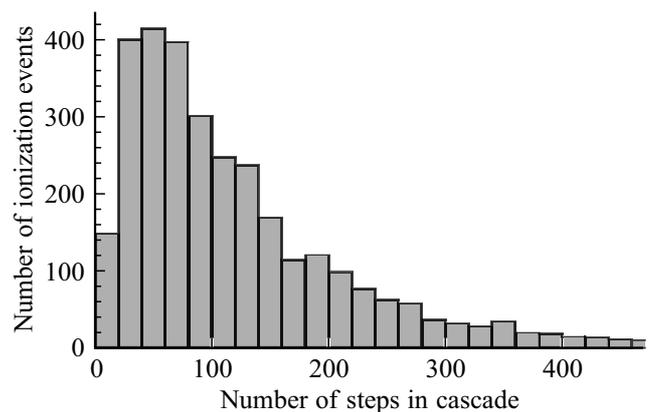
**Рис. 2.** Примеры блуждания электрона по энергетическим уровням в атоме Na из начального состояния  $9s$  под действием излучения с граничными частотами  $\omega_{\min} = 7 \cdot 10^{-4}$ ,  $\omega_{\max} = 5 \cdot 10^{-3}$  и энергетической спектральной плотностью излучения  $\rho = 4 \cdot 10^{-14}$ . По оси абсцисс отложен номер перехода, т.е. порядковый номер ступени каскада  $k$ . По оси ординат отложено эффективное квантовое число  $n_{\text{eff}} = n - \mu$ , где  $\mu$  — квантовый дефект состояния. Горизонтальными линиями показаны состояния  $s$ ,  $p$  и  $d$  (сплошные, штриховые и пунктирные линии соответственно). В результате блуждания, показанного на рисунке *a*, атом ионизируется, тогда как в случае *b* атом в результате спонтанного перехода возвращается в основное состояние.

с граничными частотами  $\omega_{\min} = 7 \cdot 10^{-4}$ ,  $\omega_{\max} = 5 \cdot 10^{-3}$  и энергетической спектральной плотностью излучения  $\rho = 4 \cdot 10^{-14}$ , рассмотрим процесс блуждания электрона по состояниям. На рис. 2 представлены результаты численного моделирования двух реализаций такого процесса: когда блуждание заканчивается ионизацией и когда блуждание заканчивается спонтанным переходом в основное состояние. В расчетах использовались формулы для матричных элементов связанно-связанных и связанно-свободных переходов в ридберговских атомах, приведенные в работах [18–22], и модельный потенциал для атома натрия, предложенный в [23]. Моделирование было выполнено в классической модели случайных блужданий с описанными выше вероятностями переходов. Как можно видеть, электрон совершает достаточно длительный путь по уровням, что связано с малостью вероятности ионизации и спонтанных переходов по отношению к вероятности вынужденных переходов в дискретном спектре.

Отметим также, что блуждания, представленные на рис. 2, происходят преимущественно между состояниями  $s$  и  $p$ . Это связано с тем, что при выбранных параметрах излучения в рассматриваемых областях спектра натрия вероятности переходов между этими состояниями значительно выше, чем между другими. Это позволяет оставить в (1) только состояния  $s$  и  $p$ . Также мы перейдем в (1) к суммарным заселенностям

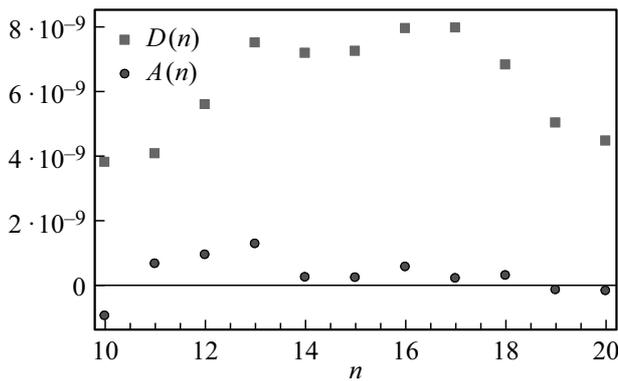
$$N(n) = N(n, s) + N(n, p),$$

складывая уравнения для  $N(n, s)$  и  $N(n, p)$  и усредняя коэффициенты в правых частях уравнений.



**Рис. 3.** Количество событий ионизации с заданным числом ступеней в каскаде. Начальное состояние атома и параметры излучения такие же, как на рис. 2. Общее количество рассмотренных событий ионизации: 10000. Можно видеть, что наиболее часты каскады с количеством ступеней порядка 40–60.

Оценим теперь, какой вклад вносят многоступенчатые каскады в суммарную вероятность ионизации. На рис. 3 показано распределение событий ионизации по длине приводящих к ним каскадов. Видно, что преобладают каскады длиной 40–60 ступеней, т.е. достаточно длинные. Такие длительные случайные блуждания допускают эффективное описание этого процесса как процесса диффузии по состояниям, определяемого уравнением Фоккера-Планка [3,10,15].



**Рис. 4.** Коэффициенты  $D(n)$ ,  $A(n)$  для переходов в атоме Na. Начальное состояние и параметры излучения такие же как на рис. 2.

Следуя [16,24], перейдем от (1) к уравнению Фоккера-Планка:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial n}(AN) + \frac{\partial^2}{\partial n^2}(DN) - (W_i + W_q)N, \quad (2)$$

где

$$A(n) = \frac{1}{2} \sum_{n' > n_1} [V(ns \rightarrow n'p) + V(np \rightarrow n's)](n' - n), \quad (3)$$

$$D(n) = \frac{1}{4} \sum_{n' > n_1} [V(ns \rightarrow n'p) + V(np \rightarrow n's)](n' - n)^2, \quad (4)$$

$$W_i(n) = \frac{1}{2}(W_i(ns) + W_i(np)),$$

$$W_q(n) = \frac{1}{2} \sum_{n' \leq n_1} V(ns \rightarrow n'p) + V(np \rightarrow n's).$$

Можно видеть, что уравнение (2) представляет из себя уравнение диффузии с дополнительными слагаемыми, соответствующими утечке заселенности в область I и в непрерывный спектр.

Расчет коэффициентов (3), (4), результаты которого приведены на рис. 4, показывает, что в широком диапазоне характеристик излучения и в широком интервале значений  $n$  справедливы допущения: (i)  $D \gg A$ ; (ii)  $D$  слабо зависит от  $n$ . С учетом этих допущений в области II уравнение (2) принимает следующий вид:

$$\frac{\partial N_{II}}{\partial t} = D \frac{\partial^2 N_{II}}{\partial n^2} - W_q N_{II}. \quad (5)$$

К уравнению (5) необходимо добавить граничное условие:

$$\left. \frac{dN_{II}}{dn} \right|_{n=n_1} = 0, \quad (6)$$

означающее нулевой поток заселенности через границу  $n = n_1$ , поскольку за счет вынужденных переходов электрон не может перейти из области II в область I.

В области III уравнение (2) выглядит так:

$$\frac{\partial N_{III}}{\partial t} = D \frac{\partial^2 N_{III}}{\partial n^2} - (W_i + W_q)N_{III}. \quad (7)$$

При этом на границе  $n = n_2$  должны выполняться условия непрерывности:

$$N_{II} = N_{III}, \quad \frac{dN_{II}}{dn} = \frac{dN_{III}}{dn}. \quad (8)$$

Уравнения (5) и (7) вместе с граничным условием (6) и условиями непрерывности (8) допускают аналитическое решение, однако оно оказывается слишком громоздким и не позволяет сделать какие-либо качественные оценки. Поэтому мы принимаем дальнейшие упрощения: пренебрегая граничными условиями (8), воспользуемся для области II известным решением для полубесконечного стержня:

$$N_{II} = \frac{\exp(-w_q t)}{2\sqrt{\pi D t}} \left( \exp\left(-\frac{(n-n_0)^2}{4Dt}\right) + \exp\left(-\frac{(n-2n_1+n_0)^2}{4Dt}\right) \right). \quad (9)$$

При этом мы принимаем, что вероятность перехода в область I имеет приближенно постоянное значение:  $W_q(n) \approx w_q = \text{const}$ .

Далее мы пользуемся решением (9) для того, чтобы определить поток на границе  $n = n_2$ :

$$\left. \frac{\partial N_{II}}{\partial n} \right|_{n=n_2} = \frac{\exp(-w_q t)}{4\sqrt{\pi D^3 t^3}} \left[ (n_2 - n_0) \exp\left(-\frac{(n_2 - n_0)^2}{4Dt}\right) + (n_2 - 2n_1 + n_0) \exp\left(-\frac{(n_2 - 2n_1 + n_0)^2}{4Dt}\right) \right]. \quad (10)$$

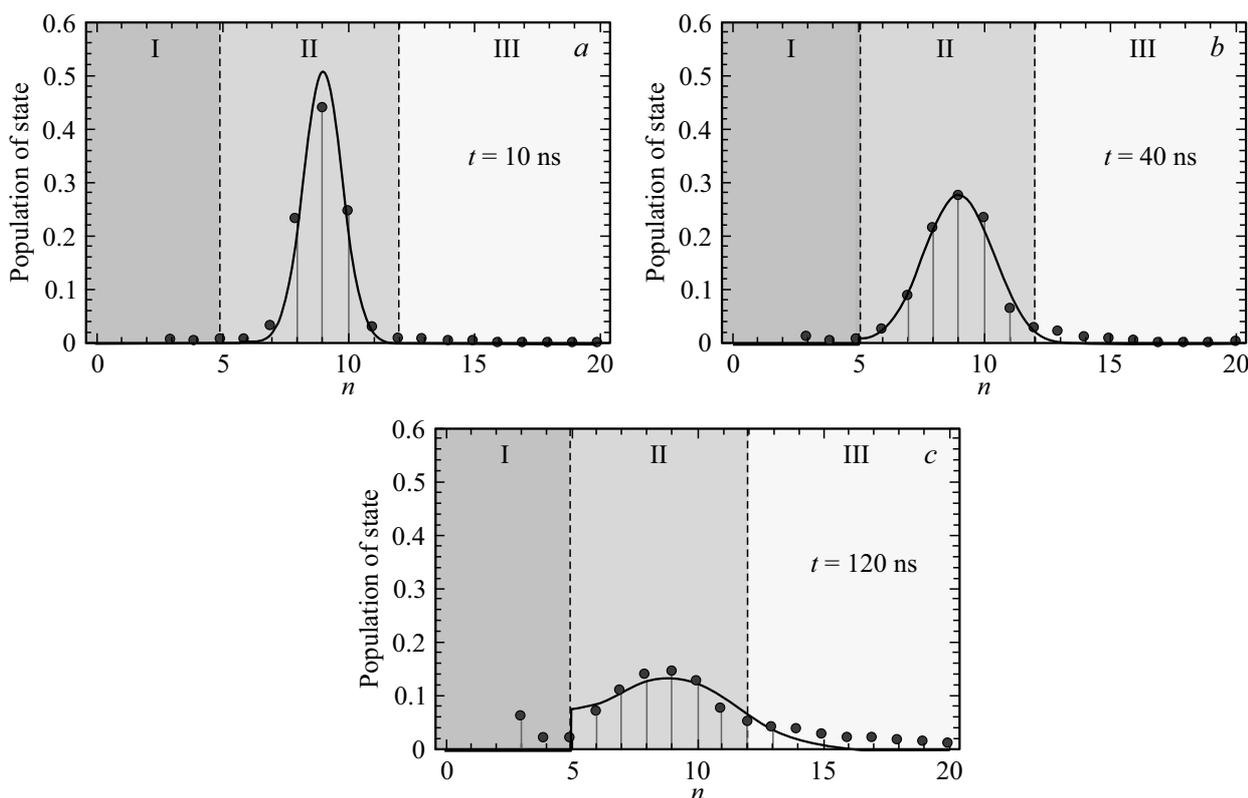
Подставив теперь (10) в (8), мы можем решить уравнение (7). На рис. 5 представлена динамика перераспределения заселенности по уровням, полученная численно из уравнения (1) (точки) и рассчитанная на основе диффузионного приближения (5)–(10) (сплошные линии). Как видно, диффузионное приближение очень хорошо согласуется с численным расчетом. Этот факт можно также рассматривать как обоснование сделанных выше приближений.

Теперь перейдем к рассмотрению полной вероятности ионизации в единицу времени

$$\Omega_i = \int_{n_2}^{\infty} W_i(n) N_{III}(n) dn.$$

При этом сделаем еще одно приближение — примем, что в области III скорость прямой фотоионизации имеет примерно равное значение для всех состояний  $W_i(n) \approx w_i = \text{const}$ . Тогда

$$\Omega_i = w_i P, \quad P = \int_{n_2}^{\infty} N_{III}(n) dn.$$



**Рис. 5.** Перераспределение заселенности состояний в атоме Na. Начальное состояние и параметры излучения такие же как на рис. 2. Точки — численное решение кинетических уравнений (1); сплошная — линия — диффузионное приближение (3)–(10).

Проинтегрировав уравнение (7) по  $n$  в диапазоне от  $n_2$  до  $\infty$ , получим уравнение для  $P$ :

$$\frac{dP}{dt} = -D \left. \frac{\partial N_{II}}{\partial n} \right|_{n=n_2} - (w_i + w_q)P. \quad (11)$$

Решив уравнение (11), получим:

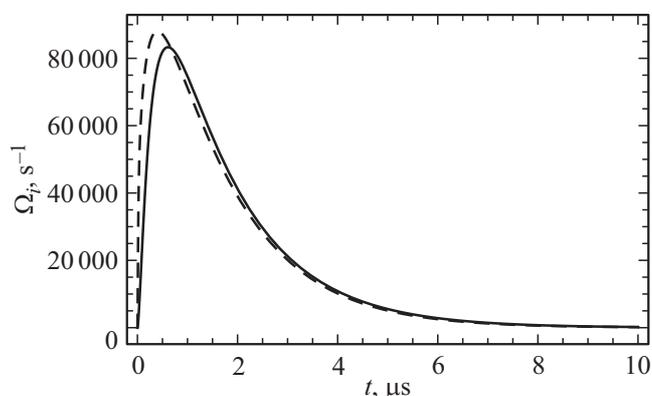
$$\Omega_i(t) = -w_i D \int_0^t \left. \frac{\partial N_{II}}{\partial n} \right|_{n=n_2} e^{(w_i+w_q)(\tau-t)} d\tau, \quad (12)$$

где  $\left. \frac{\partial N_{II}}{\partial n} \right|_{n=n_2}$  определяется выражением (10).

Таким образом, в рамках диффузионного приближения оказалось возможным получить явные выражения для заселенности состояний (9) и скорости ионизации (12).

На рис. 6 представлена скорость ионизации, рассчитанная по формуле (12) и полученная численно из (1). Можно видеть, что в начальный момент она равна 0, потому что заселенность сосредоточена в области II, где прямая фотоионизация невозможна. Затем заселенность частично переходит в область III, соответственно скорость ионизации начинает расти, достигая своего максимального значения в момент времени

$$t_i \approx 0.2 \left( \frac{n_2 - n_0}{\omega_q \sqrt{D}} \right)^{2/3}, \quad (13)$$



**Рис. 6.** Скорость ионизации атома Na (скорость уменьшения заселенности связанных состояний) в зависимости от времени. Начальное состояние и параметры излучения такие же как на рис. 2. Сплошная линия — численное решение кинетических уравнений (1); штриховая линия — расчет по формуле (12).

и далее медленно убывает, потому что суммарная заселенность состояний в области II и III уменьшается.

Представляет интерес оценить, какова должна быть минимальная спектральная плотность излучения, при которой существенная доля заселенности начального состояния уходит в непрерывный спектр, а не возвращается в основное состояние. Для этого, очевидно,

время жизни состояния  $\tau \sim 1/w_q$  должно превышать характерное время ионизации  $t_i$ . Запишем коэффициент диффузии в виде  $D \sim \rho C$ , где  $C$  — коэффициент пропорциональности, зависящий от  $\omega_{\min}$  и  $\omega_{\max}$ . Тогда из (13) следует, что минимальная плотность излучения, при которой диффузионная ионизация становится существенной, дается выражением

$$\rho_{\min} \approx 0.008 \frac{w_q(n_2 - n_0)^2}{C}. \quad (14)$$

Для ионизации атома Na из начального состояния  $9s$  под действием излучения с граничными частотами  $\omega_{\min} = 7 \cdot 10^{-4}$ ,  $\omega_{\max} = 5 \cdot 10^{-3}$  выражение (14) дает  $\rho_{\min} \approx 2 \cdot 10^{-16}$ .

Выполненное рассмотрение остается справедливым и для излучения с прямоугольным спектром. От профиля спектра будут зависеть лишь численные значения вероятностей переходов в кинетических уравнениях (1) и соответственно коэффициентов в уравнении Фоккера-Планка (2) и в следующих из него приближенных решениях и оценках (9)–(14). Диффузионная динамика переходов под действием излучения с неограниченным спектром требует дополнительного анализа, но и для нее данное рассмотрение остается по большей части справедливым, если можно указать приближенные значения  $\omega_{\min}$  и  $\omega_{\max}$ , понимая их как границы диапазона, в котором сосредоточена большая часть энергии излучения (например, в случае теплового излучения).

### 3. Заключение

Рассмотренный механизм диффузионной ионизации, кроме возможного применения для описания лабораторных экспериментов, может быть использован для анализа астрофизических данных. В частности, диффузионный механизм ионизации может вносить существенный вклад в вероятность ионизации атомов в верхних слоях хромосферы красных гигантов, где достаточно мала плотность частиц и соответственно маловероятна столкновительная ионизация.

Что касается рассмотренного в настоящей статье атома Na, то актуальными являются многие вопросы, относящиеся к процессам в обогащенных натрием атмосферах коричневых карликов, а также спутника Юпитера Ио, где могут проявляться ионизационные процессы с участием возбужденного атома натрия [25].

### Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 19-32-90204) и Министерства науки и высшего образования РФ (проект FZGU-2020-0035).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] Bayfield J.E., Koch P.M. // Phys. Rev. Lett. 1974. V. 33. N 5. P. 258.
- [2] Koch P.M., Van Leeuwen K.A.H. // Phys. Rep. 1995. V. 255. N 5–6. P. 289.
- [3] Delone N.B., Zon B.A., Krainov V.P. // ZhETF. 1978. V. 75. P. 445.
- [4] Jensen R.V. // Nature. 1992. V. 355. N 6358. P. 311.
- [5] Casati G., Chirikov B.V., Shepelyansky D.L., Guarneri I. // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 57. N 7. P. 823.
- [6] Casati G., Ford J. // LNP. 1979. V. 93. P. 375.
- [7] Galvez E.J., Sauer B.E., Moorman L., Koch P.M., Richards D. // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 61. N 18. P. 2011.
- [8] Delone N.B., Krainov B.P., Shepelyanskii D.L. // Phys. Uspekhi. 1983. V. 26. N 7. P. 551.
- [9] Casati G., Chirikov B.V., Shepelyansky D.L., Guarneri I. // Phys. Rep. 1987. V. 154. N 2. P. 77.
- [10] Kaulakis B.P. // JETP Lett. 1988. V. 47. N 6. P. 360.
- [11] Burkhardt C.E., Corey R.L., Garver W.P., Leventhal J.J., Allegrini M., Moi L. // Phys. Rev. A. 1986. V. 34. N 1. P. 80.
- [12] Ryabtsev I.I., Tretyakov D.B., Beterov I.I. // J. Phys. B. 2005. V. 38. N 2. P. S421.
- [13] Beterov I.I., Tretyakov D.B., Ryabtsev I.I., Entin V.M., Ekers A., Bezuglov N.N. // New J. Phys. 2009. V. 11. N 1. P. 013052.
- [14] Beterov I.I., Tretyakov D.B., Ryabtsev I.I., Ekers A., Bezuglov N.N. // Phys. Rev. A. 2007. V. 75. N 5. P. 052720.
- [15] Bezuglov N.N., Borodin V.M., Kazanskii A.K., Klyucharev A.N., Matveev A.A., Orlovskii K.V. // Opt. Spectrosc. 2001. V. 91. N 1. P. 19.
- [16] Kaulakys B., Ciziunas A. // J. Phys. B. 1987. V. 20. N 5. P. 1031.
- [17] Bezuglov N.N., Borodin V.M., Ekers A., Klyucharev A.N. // Opt. Spectrosc. 2002. V. 93. N 5. P. 661.
- [18] Давыдкин В.А., Зон Б.А. // Опт. и спектр. 1981. Т. 51. № 1. С. 25.
- [19] Davydkin V.A., Ovsyannikov V.D., Zon B.A. // Las. Phys. 1993. V. 3. N 2. P. 449.
- [20] Гореславский С.П., Делоне Н.Б., Крайнов В.П. // ЖЭТФ. 1982. Т. 82. № 6. С. 1789.
- [21] Delone N.B., Goreslavsky S.P., Krainov V.P. // J. Phys. B. 1989. V. 22. N 18. P. 2941.
- [22] Delone N.B., Goreslavsky S.P., Krainov V.P. // J. Phys. B. 1994. V. 27. N 19. P. 4403.
- [23] Schweizer W., Faßbinder P., Gonzalez-Ferez R. // At. Data Nucl. Data Tables. 1999. V. 72. N 1. P. 33.
- [24] Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. Физическая кинетика. М.: Наука, Глав. ред. физико-математической лит-ры, 1979. 533 с.
- [25] Ключарев А., Безуглов Н. Элементарные процессы и ионизационные явления в газоразрядных средах. СПб.: Издательство СПбГУ, 2017. 244 с.