

НЕПЕРТУРБАТИВНАЯ ТЕОРИЯ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ АТОМНЫХ СИСТЕМ С ИНТЕНСИВНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ПОЛЯМИ

© 2024 г. С. Ю. Стремоухов^{1, 2, *}

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова”, Москва, Россия

²Федеральное государственное бюджетное учреждение “Национальный исследовательский центр
“Курчатовский институт”, Москва, Россия

*E-mail: sustrem@gmail.com

Поступила в редакцию 29.08.2023 г.

После доработки 15.09.2023 г.

Принята к публикации 29.09.2023 г.

Представлено краткое описание согласованного непертурбативного подхода к расчету отклика ансамбля атомов на воздействие интенсивного многокомпонентного произвольно-поляризованного излучения. Обсуждается его применение к исследованию явлений генерации гармоник высокого порядка и генерации терагерцового излучения в многочастотных лазерных полях.

DOI: 10.31857/S0367676524010094, EDN: SAVPMF

ВВЕДЕНИЕ

С развитием методов генерации ультракоротких (вплоть до одного цикла поля) интенсивных лазерных импульсов [1] ученые получили возможность экспериментального изучения взаимодействия такого излучения с веществом. В результате было обнаружено множество явлений, которые не смогли получить своего теоретического объяснения в рамках существующих в то время подходов, основанных в основном на теории возмущений, феноменологических принципах и методе медленно меняющихся амплитуд и фаз электромагнитного поля. При таких (в первую очередь, фемтосекундных) длительностях импульсов пиковая напряженность лазерного поля перестает быть малой величиной по сравнению с внутриатомной ($E_{\text{ат}} = 5 \cdot 10^9$ В/см) и отклик среды становится существенно нелинейным [2–4], что открывает возможности генерации интенсивного импульсного терагерцового (ТГц) излучения [5] и генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) [6–8]. В этом случае применение квантово-механических подходов, основанных на теории возмущений, в которой в качестве малого параметра используется отношение величины напряженности электромагнитной волны к внутриатомной напряженности, оказывается проблематичным. В связи с этим возникла необходимость развития принципиально новых, так называемых непертурбативных подходов, учитывающих энергетическую структуру атомов и молекул и свободных от использования отношения величины напряженности лазерного поля к внутриатомной напряженности в качестве малого параметра. К таковым относится

предложенная в [9] и развиваемая нами непертурбативная теория. Она основана на решении квантово-механической задачи взаимодействия одиночного атома с интенсивными лазерными полями. Последовательный учет симметрии взаимодействия, а также нелинейностей задачи взаимодействия одиночного атома с лазерным полем позволяет применять развиваемую теорию к описанию явлений генерации гармоник высокого (и низкого) порядков и генерации ТГц излучения — одних из самых интересных нелинейно-оптических явлений, происходящих в результате взаимодействия интенсивных ультракоротких лазерных импульсов с веществом.

Для разработки удобных для применения методов управления характеристиками генерируемого излучения, а также для интерпретации результатов современных экспериментов необходимо не только с большой точностью уметь рассчитывать отклик одиночного атома на микроскопическом (квантово-механическом) уровне, но и на основе параметров поля отклика одиночного атома уметь рассчитывать макроскопический отклик среды без использования феноменологических предположений о величине нелинейности среды. Это позволяет рассматривать явления ГГВП и генерации ТГц излучения как результат единого процесса движения электрона в суперпозиционном поле многокомпонентного многочастотного произвольно поляризованного лазерного излучения и кулоновского потенциала атома.

До недавнего времени считалось, что природа ГГВП и природа генерации ТГц излучения

находятся на разных пространственных масштабах описания нелинейно-оптического отклика среды на воздействие интенсивного лазерного поля. Так, явление ГГВП является результатом нелинейно-оптического отклика одиночного атома, а макроскопические факторы среды оказывают влияние на условия фазового синхронизма [10]. При обсуждении механизмов генерации ТГц излучения в газовых средах, взаимодействующих с двухчастотными лазерными полями, в основном выделяют вклады фототока, создаваемого движением в лазерном поле ионизованных электронов, и нейтральной среды за счет учета ее тензоров нелинейной восприимчивости [11], компоненты которого, как правило, описаны феноменологически. Вместе с тем экспериментальные исследования демонстрируют общие черты у этих двух явлений [12], что позволяет предположить их единую природу.

Нами предложен единый теоретический подход к описанию указанных явлений, который учитывает динамику изменения населенностей уровней дискретного и непрерывного спектров атомов, распределенных в среде, при их взаимодействии с интенсивными лазерными полями, параметры которых зависят от положения атомов в среде за счет эффектов распространения лазерного излучения. В настоящей работе представлен краткий обзор данного теоретического подхода.

ОСНОВНЫЕ ПОЛОЖЕНИЯ НЕПЕРТУРБАТИВНОГО ТЕОРЕТИЧЕСКОГО ПОДХОДА К РАСЧЕТУ ОТКЛИКА АТОМА В ИНТЕНСИВНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ПОЛЯХ

В [13, 14] представлены основные положения развитого непертурбативного теоретического подхода к описанию отклика одиночного атома на воздействие интенсивного произвольно поляризованного многокомпонентного лазерного поля. В рамках данного подхода предложен метод преобразования исходного нестационарного уравнения Шредингера, описывающего динамику изменения волновой функции $(\psi(\vec{r}, t))$ валентного электрона в дорелятивистском приближении:

$$i\hbar \frac{\partial \psi(\vec{r}, t)}{\partial t} = \left[\frac{1}{2m} (\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A}(t))^2 + U(\vec{r}) \right] \psi(\vec{r}, t),$$

где $\vec{A}(t)$ — векторный потенциал внешней электромагнитной волны, $U(\vec{r})$ — кулоновский потенциал, в систему уравнений для амплитуд населенностей уровней атома $a_{n_1 l_1 m_1}$, характерный вид уравнения которой имеет вид:

$$i\hbar \frac{da_{n_1 l_1 m_1}(t)}{dt} = \sum_{n_2 l_2 m_2, n_3 l_3 m_3} \langle n_1 l_1 m_1 | \hat{V}^{-1} | n_3 l_3 m_3 \rangle \times \times E_{n_3 l_3} \langle n_3 l_3 m_3 | \hat{V} | n_2 l_2 m_2 \rangle a_{n_2 l_2 m_2}(t), \quad (1)$$

где $E_{n_3 l_3}$ — значение энергии уровня атома, соответствующего набору квантовых чисел: n_3 — главное квантовое число, l_3 — орбитальное квантовое число, m_3 — проекция орбитального квантового числа, $\langle n_3 l_3 m_3 | \hat{V} | n_2 l_2 m_2 \rangle$ — матричные элементы оператора $\hat{V} = \exp\left[-i \frac{q}{\hbar c} \vec{A}(t) \vec{r}\right]$, связывающе-

го волновые функции — точные решения краевой задачи свободного атома и краевой задачи “об атоме в поле”, гамильтониан которой совпадает с гамильтонианом исходного нестационарного уравнения Шредингера. Эти матричные элементы, рассчитанные аналитически как для переходов между уровнями дискретного спектра, так и переходов между уровнями дискретного и непрерывного спектра атома, являются нелинейными функциями параметров лазерного поля. В частности, важным управляющим параметром задачи является

$\mu_0 = \frac{eA_0 a_B}{\hbar c}$ (A_0 и a_B соответственно амплитуда векторного потенциала лазерного излучения и боровский радиус). Благодаря использованию волновых функций краевой задачи “об атоме в поле” удастся учесть изменение симметрии системы “атом+поле” в околоатомных ($E \sim E_{at}$) лазерных полях.

Система уравнений для амплитуд населенностей уровней в общем случае содержит в себе бесконечное количество элементов, для ее численного решения был предложен метод оценки полноты базиса учитываемых волновых функций — точных решений краевой задачи “об атоме в поле” [15].

Динамика амплитуд населенностей уровней атома может быть использована для расчета спектра тока атомного отклика:

$$\begin{aligned} \vec{J}(t) &= i \sum_{n_1, l_1, m_1, n_2, l_2, m_2} a_{n_1 l_1 m_1}^*(t) a_{n_2 l_2 m_2}(t) \times \\ &\times \langle n_1 l_1 m_1 | \vec{J} | n_2 l_2 m_2 \rangle, \\ \langle n_1 l_1 m_1 | \vec{J} | n_2 l_2 m_2 \rangle &= \\ &= i \sum_{n_3 l_3 m_3} \sum_{n_4 l_4 m_4} \frac{(E_{n_3 l_3} - E_{n_4 l_4})}{\hbar} \times \\ &\times \langle n_1 l_1 m_1 | V^{-1} | n_3 l_3 m_3 \rangle \langle n_3 l_3 m_3 | \vec{d} | n_4 l_4 m_4 \rangle \times \\ &\times \langle n_4 l_4 m_4 | V | n_2 l_2 m_2 \rangle, \end{aligned} \quad (2)$$

где $\vec{d}$ — оператор дипольного момента. Это позволяет исследовать характеристики генерируемого когерентного излучения, поскольку в дальней зоне спектр тока атомного отклика $J(\omega)$ совпадает со спектром генерируемого электромагнитного излучения.

В качестве примера применения описанного непертурбативного подхода к расчету отклика

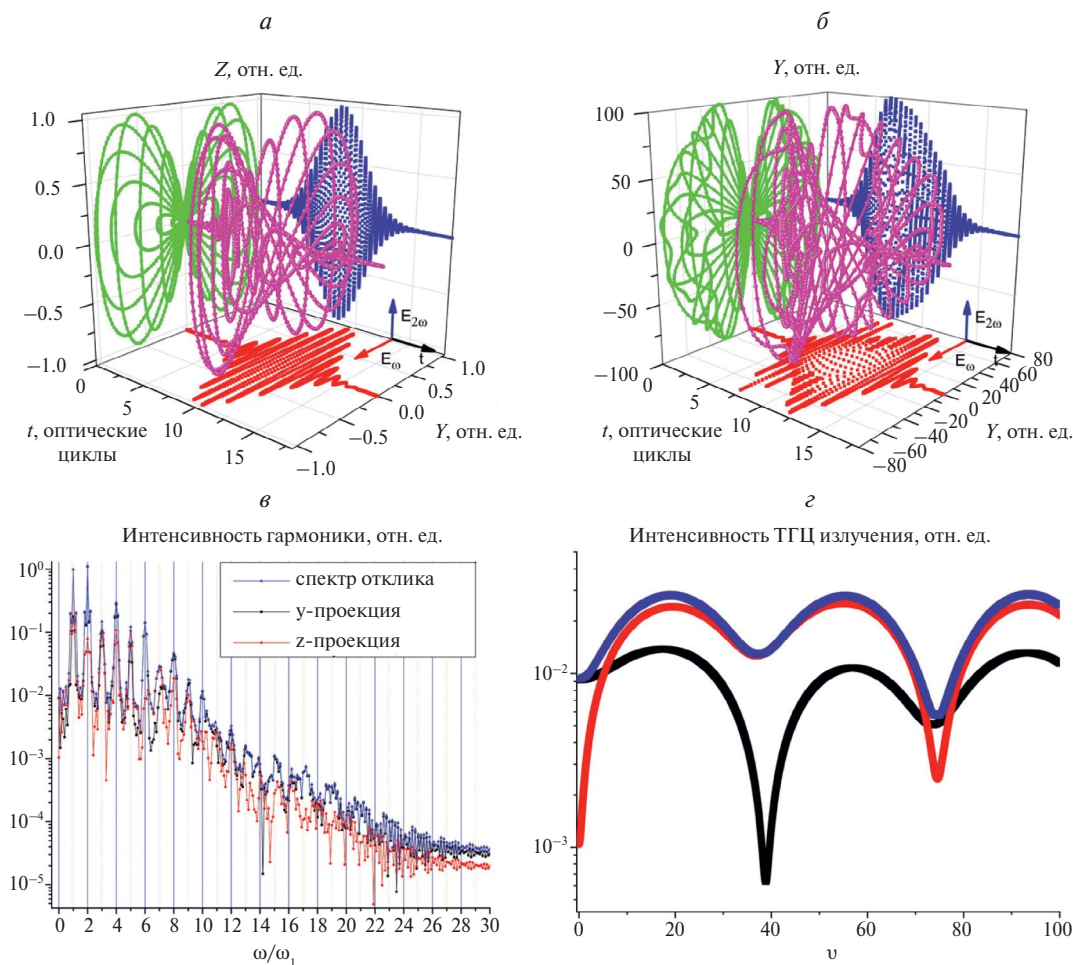


Рис. 1. Временная зависимость двухчастотного лазерного поля (а); рассчитанная с помощью формулы (2) временная зависимость тока атомного отклика на воздействие двухчастотного лазерного поля (б); фотоэмиссионный спектр отклика атома (в) (синяя кривая с треугольниками), его проекции на перпендикулярные оси (черная кривая с квадратами и красная кривая с кружками) и его длинноволновая часть (г). Расчеты проведены для атома аргона (модельная структура уровней атома представлена в [16]), взаимодействующего с двухчастотным лазерным полем, образованным линейно поляризованными первой и второй гармониками Ti:Sa лазера. Параметры поля, используемые в расчетах, имеют вид $\mu_{01} = 0.1$ (амплитуда компоненты двухчастотного поля на основной частоте лазера), $\mu_{02} = 0.1$ (амплитуда компоненты двухчастотного поля на частоте второй гармоники лазера), $\tau_1 = \tau_2 = 26.6$ фс (длительности импульсов), $\theta = \frac{21\pi}{48}$ — угол между направлениями поляризаций компонент двухчастотного поля, $t_{02} - t_{01} = 0$ — временная задержка между импульсами.

одиноким атомом при конкретных параметрах поля на рис. 1 представлены результаты расчета спектра тока отклика атома аргона на воздействие двухчастотного лазерного поля, образованного линейно поляризованными первой и второй гармониками Ti:Sa лазера (см. рис. 1а). Явный вид тока атомного отклика, рассчитанный с помощью формулы (2), представлен на рис. 1б. Видно, что спектр состоит из последовательности четных и нечетных гармоник поля, причем амплитуды каждой из гармоник обладают ненулевыми проекциями на ортогональные оси (см. рис. 1б). Важно отметить, что спектр не ограничивается подбарьерными и околобарьерными гармониками (гармониками, энергия фотона которых

меньше или равна энергии ионизации атома), несмотря на то что модельная структура уровней атома [16] не учитывает динамику населенностей квазиуровней непрерывного спектра атома (рис. 1в). Действительно, энергия ионизации атома аргона составляет величину 15.76 эВ, для излучения Ti: Sa лазера соответствует ~10-й гармонике поля, вместе с тем фотоэмиссионный спектр существенно шире. Кроме того, в спектре излучения присутствует ненулевой сигнал на “нулевой” частоте, который в случае воздействия лазерных импульсов фемтосекундной длительности соответствует ТГц диапазону (рис. 1г). Отклик в ТГц части также имеет ненулевые проекции на перпендикулярные оси.

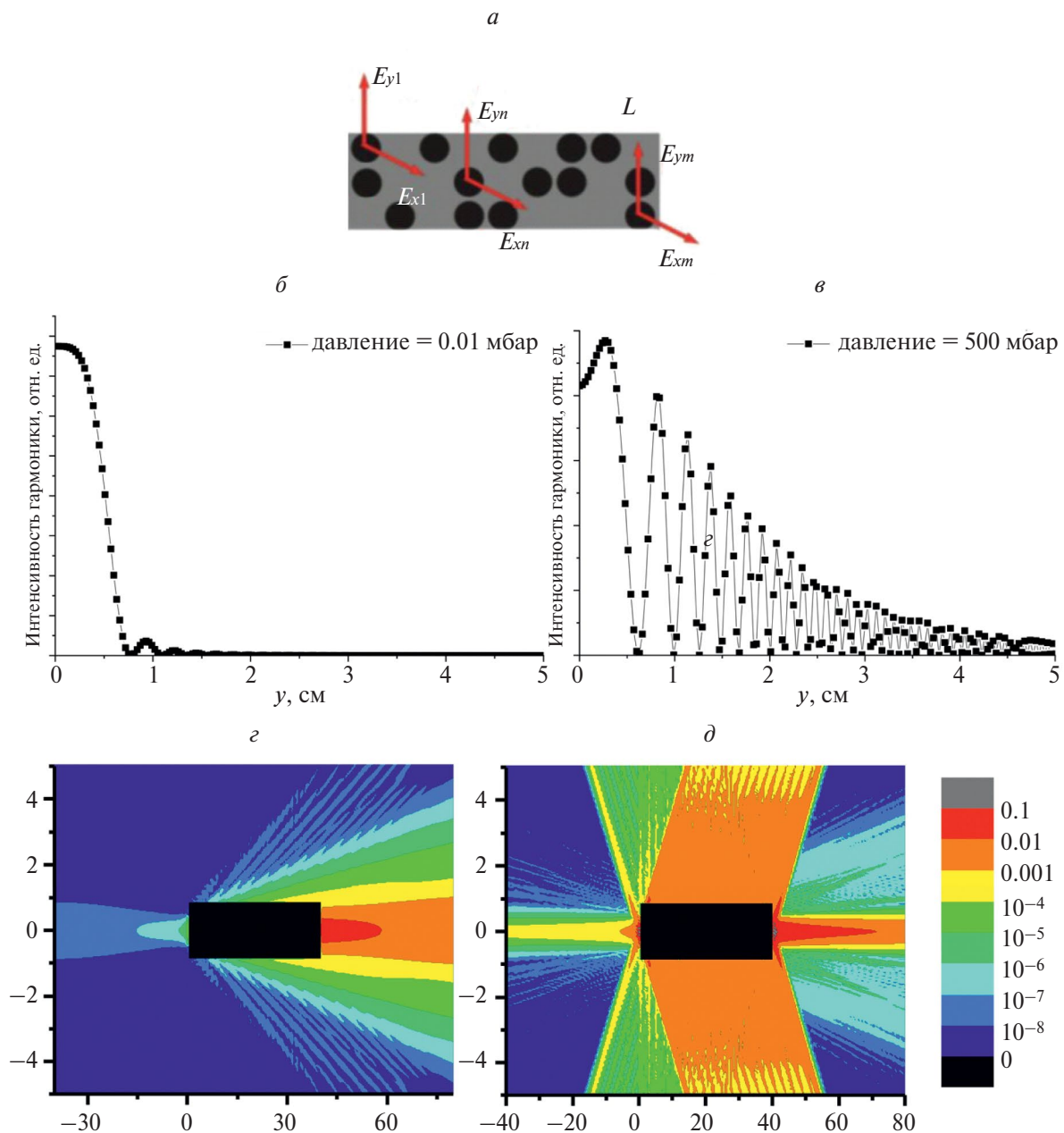


Рис. 2. Схематическое изображение газа (серый прямоугольник) с атомами (черные кружки), генерирующими электромагнитное поле (красные стрелки указывают две его проекции) (а). Радиальное распределение интенсивности 6-й гармоники, рассчитанной для аргонового газа длины 1 см при значении давления 0.01 мбар (б) и 500 мбар (в) в среде. Расчет проводился для лазерного излучения, сформированного из первой и второй гармоник Ti:Sa лазера, интенсивность компонент поля $\mu_{01} = 0.1$, $\mu_{02} = 0.1$, длительности импульсов $\tau_1 = \tau_2 = 30$ фс, угол между поляризациями компонент поля $\theta = \frac{\pi}{2}$. Излучение на частотах 1 ТГц (г) и 11 ТГц (д), испускаемое протяженной аргоновой газовой средой. Черный прямоугольник показывает объем газовой камеры (длина 40 см, ширина 1.8 см). Параметры двухчастотного лазерного поля, образованного первой и второй гармониками Ti:Sa лазера, имеют вид $\mu_{01} = 0.1$, $\mu_{02} = 0.0147$, $\tau_1 = \tau_2 = 30$ фс, $\varphi_2 - \varphi_1 = \frac{\pi}{2}$ (разность фаз между компонентами двухчастотного поля). Цветом указана шкала интенсивностей генерируемого излучения в относительных единицах.

ОТКЛИК АНСАМБЛЯ АТОМОВ — ИНТЕРФЕРЕНЦИОННАЯ МОДЕЛЬ ОТКЛИКА ПРОТЯЖЕННОЙ СРЕДЫ

В протяженных средах при распространении лазерного излучения происходит трансформация профиля лазерного импульса. В случае одночастотного поля накачки это связано с отличием фазовой и групповой скоростей импульса, что приводит к изменению фазы поля и огибающей импульса при распространении. В случае многочастотного поля накачки в дополнение к указанным причинам существенную роль начинает играть дисперсия, приводящая к серьезному изменению как фазовых, так и групповых скоростей, составляющих импульс накачки, важную роль играют также другие эффекты распространения мощного лазерного излучения в среде [17]. В следствие чего вид токов атомных откликов (2) начинает зависеть от положения атома (поскольку параметры лазерного поля, с которым взаимодействует атом, зависят от координаты атома). В рамках предложенной интерференционной модели [18–20] удастся рассчитать отклик протяженной газовой среды. Эта модель выглядит следующим образом. Среда представляет собой набор невзаимодействующих друг с другом атомов, расположенных в общем случае в цилиндре, ориентированном вдоль направления распространения лазерного излучения, длины L и радиусом R (двумерная проекция области локализации атомов представлена на рис. 2а). Фотоэмиссионные отклики атомов рассчитываются с помощью представленной выше развитой непертурбативной теории. Спектральные компоненты генерируемого одиночными атомами излучения “суммируются” с помощью следующей формулы при расчете величины поля в определенной точке пространства:

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = -\frac{i\omega}{c^2} \sum_i \left[\vec{n}_i \left[\vec{n}_i \vec{J}_i(\omega) \right] \right] \times \times \frac{1}{R_i} \exp\left(i \frac{\omega}{c} R_i\right), \quad (3)$$

где $\vec{R}_i = \vec{r} - \vec{r}_i$ и $\vec{n}_i = \vec{R}_i/R_i$, $\vec{r}_i$ — радиус-вектор i -го атома, $\vec{r}$ — радиус-вектор точки наблюдения.

Формула (3) учитывает интерференцию вкладов от различных источников поля. Она определяет напряженность поля отклика макроскопического ансамбля атомов в произвольной точке наблюдения, расположенной как внутри ансамбля, так и вне него. Приближения, которые использовались при ее выводе, состоят в том, что (i) размер атомных оболочек много меньше длины волны испускаемого излучения и (ii) расстояние до точки наблюдения много больше размеров атома.

Пример использования интерференционной модели для расчета параметров как ТГц излучения, так и параметров гармоник высокого порядка представлен на рис. 2. При расчете параметров генерируемого ТГц излучения использовалась двумерная среда, расчет параметров гармоник высокого порядка проводился для одномерной цепочки атомов, расположенных на оси распространения лазерного импульса. Рисунок 2а иллюстрирует, что использование интерференционной модели открывает возможность исследовать влияние макропараметров среды (давления, длины среды и др.) на энергетические, поляризационные и частотно-угловые особенности генерируемого излучения.

С помощью разработанного непертурбативного теоретического подхода и интерференционной модели среды были проведены экспериментально ориентированные теоретические расчеты, они продемонстрировали хорошее качественное, а в некоторых случаях и количественное согласование с соответствующими экспериментальными результатами по исследованию особенностей генерации гармоник в газах (Ar, Ne, Xe, Xe+CO₂) [14, 21, 22], в плазме (Ag, In) [23–26], в газокластерных смесях (Ar) [27], а также по генерации ТГц излучения (CO₂) [28]. Это является достоверной верификацией разработанного комплексного теоретического подхода к расчету отклика ансамбля атомов на воздействие интенсивного многокомпонентного произвольно-поляризованного излучения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, представлен краткий обзор разработанного комплексного теоретического подхода к расчету отклика ансамбля атомов на воздействие интенсивного многокомпонентного произвольно-поляризованного излучения. Указанный теоретический подход апробирован при проведении совместных теоретико-экспериментальных исследований. Он может быть использован для исследований отклика протяженной среды и развития новых методов повышения эффективности генерации когерентного излучения различных спектральных диапазонов, управления поляризационными свойствами такого излучения, в частности, в условиях как фазового, так и квази-фазового согласования при генерации ТГц-излучения [29] и ГГВП [30] в двухчастотных лазерных полях, а также при более сложной организации многокомпонентного лазерного поля.

Автор выражает благодарность проф. А. В. Андрееву за полезные обсуждения результатов исследований.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке гранта РФФИ № 19-29-12030.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М.: Наука, 1988. С. 312.
2. Беленов Э.М., Назаркин А.В. // Письма в ЖЭТФ. 1990. Т. 51. № 5. С. 252; *Belenov E.M., Nazarkin A.V.* // JETP Lett. 1990. V. 51. No. 5. P. 288.
3. Маймистов А.И. // Квант. электрон. 2000. Т. 30. № 4. С. 287; *Maimistov A.I.* // Quant. Electron. 2000. V. 30. No. 4. P. 287.
4. Козлов С.А. // Опт. и спектроск. 1995. Т. 79. № 2. С. 290; *Kozlov S.A.* // Opt. Spectrosc. 1995. V. 79. No. 2. P. 267.
5. Сазонов С.В., Соболевский А.Ф. // Письма в ЖЭТФ. 2002. Т. 75. С. 746; *Sazonov S.V., Sobolevski A.F.* // JETP Lett. 2002. V. 75. P. 621.
6. Кучиев М.Ю. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 45. № 7. С. 319; *Kuchiev M.Yu.* // JETP Lett. 1987. V. 45. No. 7. P. 404.
7. Corkum P.B. // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 71. P. 1994.
8. Платоненко В.Т. // Квант. электрон. 2001. Т. 31. № 1. С. 55; *Platonenko V.T.* // Quant. Electron. 2001. V. 31. No. 1. P. 404.
9. Андреев А.В. // ЖЭТФ. 1999. Т. 116. № 3(9). С. 793; *Andreev A.V.* // JETP. 1999. V. 116. No. 3. P. 421.
10. Стрелков В.В., Платоненко В.Т., Стержантов А.Ф., Рябикин М.Ю. // УФН. 2016. Т. 86. № 5. С. 449; *Strelkov V.V., Platonenko V.T., Sterzhantov A.F., Ryabikin M.Yu.* // Phys. Usp. 2016. V. 86. No. 5. P. 425.
11. Borodin A.V., Panov N.A., Kosareva O.G. et al. // Opt. Lett. 2013. V. 38. P. 1906.
12. Zhang D., Lü Z., Meng C. et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 109. Art. No. 243002.
13. Andreev A.V., Stremoukhov S.Yu., Shoutova O.A. // Eur. Phys. J. D. 2012. V. 66. Art. No. 16.
14. Stremoukhov S., Andreev A., Vodungbo B. et al. // Phys. Rev. A. 2016. V. 94. Art. No. 013855.
15. Andreev A.V., Stremoukhov S.Yu. // Phys. Rev. A. 2013. V. 87. Art. No. 053416.
16. Andreev A.V., Stremoukhov S.Yu., Shoutova O.A. // J. Opt. Soc. Amer. B. Opt. Phys. 2013. V.30. No. 7. P. 1794.
17. Lvov K.V., Stremoukhov S.Yu., Potemkin F.V. // J. Optics. 2021. V. 23. Art. No. 065502.
18. Stremoukhov S.Yu., Andreev A.V. // Laser Phys. 2018. V. 28. Art. No. 035403.
19. Stremoukhov S.Yu., Andreev A.V. // Laser Phys. Lett. 2015. V. 12. Art. No. 015402.
20. Stremoukhov S., Andreev A. // J. Opt. Soc. Amer. B. Opt. Phys. 2017. V. 34. No. 2. P. 232.
21. Migal E., Stremoukhov S., Potemkin F. // Phys. Rev. A. 2020. V. 101. Art. No. 021401(R).
22. Lambert G., Vodungbo B., Gautier J. et al // Nature Commun. 2015. V. 6. P. 6167.
23. Ganeev R.A., Boltaev G.S., Stremoukhov S.Yu. et al. // Eur. Phys. J. D. 2020. V. 74. Art. No. 199.
24. Ganeev R.A., Stremoukhov S.Yu., Andreev A.V., Alnaser A.S. // Appl. Science. 2019. V. 9. P. 1701.
25. Andreev A.V., Ganeev R.A., Kuroda H. et al. // Eur. Phys. J. D. 2013. V. 67. P. 22.
26. Stremoukhov S.Yu., Ganeev R.A., Andreev A.V. // Spr. Proc. Phys. 2020. V. 241. P. 99.
27. Zhvaniya I.A., Dzhidzhoev M.S., Semenov T.A. et al. // J. Phys. Conf Ser. 2020. V. 1692. Art. No. 012017.
28. Andreev A.V., Angeluts A.A., Balakin A.V. et al. // IEEE Trans. Terahertz. Sci. Technol. 2020. V. 10. No. 1. P. 85.
29. Стрёмухов С.Ю. // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 6. С. 770; *Stremoukhov S.Yu.* // Bull. Rus. Acad. Sci. Phys. 2022. V. 86. No. 6. P. 646.
30. Stremoukhov S.Yu. // J. Opt. Soc. Amer. B. Opt. Phys. 2022. V. 39. No. 4. P. 1203.

Non-perturbative theory of atomic systems interaction with intense laser fields

S. Yu. Stremoukhov^{a, b, *}^aFaculty of Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia^bNational Research Centre "Kurchatov Institute", Moscow, 123182 Russia

*e-mail: sustrem@gmail.com

A brief description of a consistent non-perturbative approach to study the response of an ensemble of atoms to the action of intense multi-component arbitrary polarized laser field is presented. Its application to the study of the generation of high-order harmonics and generation of terahertz radiation in multi-color laser fields is discussed.