

Нелинейный поляризационный отклик атомарной газовой среды в поле высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного импульса

Е. А. Волкова, А. М. Попов¹⁾, О. В. Тихонова

Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына, МГУ им. М.В. Ломоносова
119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 28 июля 2011 г.

После переработки 22 августа 2011 г.

Методом прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера исследуется поляризационный отклик, возникающий в парах серебра в поле высокоинтенсивного фемтосекундного титан-сапфирового лазера. Определены области применимости теории возмущений и разложения поляризации по степеням поля. Вычислен вклад электронов в континууме в величину отклика на частоте воздействующего поля, возникающий как результат процесса фотоионизации, и ограничивающий эффект Керра. Продемонстрирован важный вклад возбужденных в процессе лазерного воздействия атомных состояний в нелинейные атомные отклики нейтральных атомов.

Создание лазерных источников излучения полвека назад [1] и последующая реализация режима модуляции добротности сделали достижимыми в оптическом диапазоне интенсивности 10^{10} – 10^{12} Вт/см², на несколько порядков превышающие доступные для экспериментаторов интенсивности в долазерную эпоху. Освоение указанного диапазона интенсивностей привело к обнаружению широкого круга новых явлений (генерация гармоник воздействующего излучения, нелинейная ионизация атомов лазерным излучением, эффект самофокусировки излучения и др.), которые легли в основу новой области физики – нелинейной оптики. Обычно количественное описание эффектов нелинейной оптики основано на разложении поляризации среды P в ряд по амплитуде электрического поля волны. При этом для достаточно разреженной газовой среды поляризационный отклик среды определяется как $P = N\langle d \rangle$, N – концентрация атомов среды, а $\langle d \rangle$ – средний по квантовому состоянию дипольный момент отдельного атома. Функционал $P(E)$ при разложении в ряд, помимо линейного, содержит еще квадратичное и кубичное по полю слагаемые, а также слагаемые высших порядков, характеризующиеся нелинейными восприимчивостями соответствующих порядков [2, 3]. Применимость указанного подхода ограничена областью не слишком сильных полей и основана на квантовомеханической теории возмущений как методе описания атомного отклика на внешнее воздействие. При этом в первом порядке теории возмущений возникает линейное по полю слагаемое, описывающее задачи линейной оптики, во втором – квадратичное, в третьем – кубич-

ное и т.д. Например, для описания самофокусировки излучения, возникающей в результате нелинейной по полю поляризации на частоте воздействующего поля, необходимо учитывать все нелинейные восприимчивости нечетных порядков на частоте воздействующего поля. При этом в рамках описанного выше подхода основной вклад в нелинейный отклик дает кубическая восприимчивость среды. Дополнительный (малый) вклад в нелинейную поляризуемость на частоте воздействующего поля дают также нелинейные восприимчивости 5-го, 7-го и более высоких нечетных порядков. В рамках описанного подхода атомный отклик на частоте поля можно представить в виде ряда

$$d_{\omega} = \chi^{(1)}(\omega)E_{\omega} + \chi^{(3)}(\omega)E_{\omega}^3 + \dots, \quad (1)$$

где $\chi^{(1)}(\omega)$ – линейная, а $\chi^{(3)}(\omega)$ – кубическая нелинейная атомная восприимчивость на частоте поля. Аналогично для атомного отклика на утроенной частоте запишем

$$d_{3\omega} = \chi^{(3)}(3\omega)E_{\omega}^3 + \chi^{(5)}(3\omega)E_{\omega}^5 + \dots, \quad (2)$$

где $\chi^{(3)}(3\omega)$ – кубическая нелинейная атомная восприимчивость на утроенной частоте поля, а $\chi^{(5)}(3\omega)$ – восприимчивость пятого порядка на частоте 3ω .

При этом в пределах справедливости квантовомеханической теории возмущений обычно полагается, что каждый последующий член разложения дает все меньший вклад в атомный отклик, что позволяет рассматривать нелинейный эффект в низшем порядке теории возмущений.

С другой стороны, появление мощных тераваттных лазеров дало возможность получать импульсы

¹⁾ e-mail: alexander.m.popov@gmail.com

генерации в фемтосекундном диапазоне, напряженность электрического поля волны в которых сопоставима с внутриатомными значениями, и даже превышает их. В этих условиях теория возмущений уже оказывается неприменимой, а разложение по степеням поля для вычисления атомного отклика – некорректным. Косвенным подтверждением справедливости этих слов являются недавние эксперименты [4, 5]. В них было обнаружено, что в области интенсивностей излучения в несколько десятков ТВт/см² нелинейный отклик на частоте воздействующего поля не может быть описан в рамках стандартного пертурбативного подхода. Сделана попытка объяснить процесс филаментации лазерного излучения [6–8] за счет преобладающего вклада в отклик нелинейностей высших порядков при отсутствии образования плазмы.

Кроме того, следует отметить, что в настоящее время имеется большая совокупность экспериментальных и теоретических данных по динамике атомов и молекул в лазерных полях высокой интенсивности, которые носят существенно непертурбативный характер. Прежде всего, это явления стабилизации относительно процесса ионизации и удержание значительной части атомной населенности в высоковозбужденных ридберговских состояниях [9–15]. Эти явления в первую очередь необходимо учитывать при анализе поляризационного отклика, что невозможно в рамках стандартно используемого подхода разложения поляризации по степеням поля. В частности, в сильных полях происходят кардинальная перестройка атомного спектра и формирование атома, “одетого” полем, свойства которого могут существенно отличаться от свойств свободного атома [9–11]. На необходимость учета новых свойств атомной системы в задаче о распространении мощных оптических импульсов в веществе впервые обращалось внимание в [16].

Одним из возможных способов рассмотрения нелинейных свойств среды за рамками теории возмущений является прямой квантовомеханический расчет нелинейной поляризации, основанный на численном интегрировании нестационарного уравнения Шредингера с последующим вычислением нелинейного отклика и показателя преломления в зависимости от лазерной интенсивности. Такой подход реализован в данной работе. В качестве объекта исследования выбран атом серебра, одноэлектронная модель которого детально рассмотрена в [15, 17]. На основе прямого численного интегрирования уравнения Шредингера для атома серебра в поле излучения Ti-Sa-лазера с линейной поляризацией развит общий

подход, позволяющий определять поляризационные отклики системы на частоте воздействующего поля и кратных гармониках. В рамках этого подхода определена область применимости разложения поляризации по степеням поля и вычислен вклад электронов в континууме в величину отклика на частоте воздействующего поля, возникающий как результат процесса фотоионизации. Продемонстрирована существенная роль возбуждения в процессе лазерного воздействия высоколежащих атомных состояний, приводящего к резким немонотонностям поляризационного отклика нейтральных атомов в зависимости от интенсивности и лежащего за рамками пертурбативного описания явления.

Отметим, что использованная в данных расчетах одноэлектронная модель атома серебра как качественно, так и количественно правильно описывает структуру его энергетического спектра, включая ридберговскую серию, динамическую поляризуемость основного состояния, а также значение матричного элемента дипольного оператора, связывающего основное и нижнее возбужденное состояния.

Анализ поляризационного отклика атомной системы на внешнее электромагнитное поле проводился на основе численного решения нестационарного уравнения Шредингера²⁾:

$$i \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\frac{1}{2} \nabla^2 \Psi(\mathbf{r}, t) + V(r) \Psi(\mathbf{r}, t) + V_{\text{int}}(\mathbf{r}, t) \Psi(\mathbf{r}, t). \quad (3)$$

Здесь $V(r)$ – одноэлектронный потенциал атома серебра, $V_{\text{int}}(\mathbf{r}, t)$ – энергия взаимодействия с полем электромагнитной волны, которая в дипольном приближении имеет вид

$$V_{\text{int}} = r \cos \theta \cdot E(t), \quad (4)$$

где $E(t)$ – напряженность электрического поля волны, а θ – угол между радиус-вектором электрона \mathbf{r} и вектором $\mathbf{E}(t)$. При этом в дальнейших расчетах ось квантования орбитального момента электрона направлена вдоль вектора \mathbf{E} (ось OZ). Предполагалось, что в начальный момент атом находится в основном состоянии, а лазерный импульс имеет энергию кванта $\hbar\omega = 1.5 \text{ эВ}$, что примерно соответствует частоте излучения Ti-Sa-лазера, и характеризуется сглаженной трапециевидальной формой с длительностями фронтов $T_f = 2T$ и плато $t_p = 10T$ ($T = 2\pi/\omega$ – оптический период). Более подробно способ задания лазерного импульса обсуждается в [15]. Методика решения подробно обсуждается в [17].

²⁾Здесь и далее используется атомная система единиц.

Расчет дипольного момента атомной системы может быть проведен по волновой функции системы, полученной в результате интегрирования уравнения (3):

$$\langle d_z(t) \rangle = \int r \cos(\theta) |\Psi(\mathbf{r}, t)|^2 d^3r. \quad (5)$$

Отметим, что в наших условиях возникающий дипольный момент направлен вдоль направления вектора поляризации излучения.

Разложение функций $E(t)$ и $\langle d_z(t) \rangle$ в интеграл Фурье:

$$d_\Omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int \langle d_z(t) \rangle \exp(-i\Omega t) dt, \quad (6)$$

$$E_\Omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int E(t) \exp(-i\Omega t) dt, \quad (7)$$

позволяет определить спектральный состав поляризационного отклика в зависимости от спектральной компоненты электрического поля $d_\Omega(E_\Omega)$. В частности, оно позволяет из первых принципов определить нелинейные восприимчивости различных порядков, а также область применимости расчета нелинейного отклика методом разложения по степеням поля.

На практике, однако, оказывается значительно удобнее, используя теорему Эренфеста, провести вычисления средней величины ускорения (а не дипольного момента):

$$\langle a_z(t) \rangle = E(t) - \langle \partial V / \partial z \rangle, \quad (8)$$

а затем получить фурье-компоненту дипольного момента d_Ω с учетом соотношения $d_\Omega = -a_\Omega / \Omega^2$.

Проанализируем динамику исследуемой атомной системы в широком диапазоне параметров воздействующего излучения. Остановимся на анализе результатов расчета вероятностей ионизации и возбуждения атома серебра в зависимости от интенсивности излучения титан-сапфирового лазера. В слабых полях, когда штарковским сдвигом атомных уровней и границы континуума можно пренебречь, ионизация является шестифотонной. Рассчитанные вероятности ионизации $w_i(P)$ и возбуждения³⁾ $w^*(P)$ атомных состояний к концу лазерного воздействия приведены на рис.1. В области интенсивностей $P \leq 5 \cdot 10^{12}$ Вт/см² полученные зависимости являются степенными и соответствуют низшему порядку теории возмущений. В области более сильных полей

³⁾ Под вероятностью возбуждения понимается суммарная вероятность заселения всех связанных состояний, кроме начального (основного).

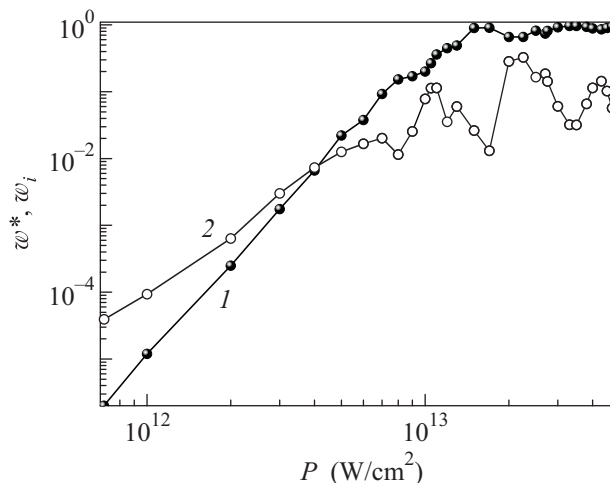


Рис. 1. Зависимости вероятности ионизации (1) и возбуждения (2) атомов серебра за импульс от интенсивности излучения титан-сапфирового лазера.

($P \geq 10^{13}$ Вт/см²) полученные зависимости являются немонотонными, что особенно наглядно проявляется на кривой $w^*(P)$. Вероятность обнаружить атом в возбужденном состоянии оказалась осциллирующей функцией интенсивности. При этом в диапазоне интенсивностей $(1-5) \cdot 10^{13}$ Вт/см² значение w^* изменяется в пределах от 0.02 до 0.3. В [15] было показано, что в основе наблюдаемого эффекта лежит многофотонный резонанс между основным состоянием и группой возбужденных (ридберговских) состояний, приводящий к их заселению и последующему когерентному перезаселению рамановскими переходами Λ -типа. В результате имеет место удержание атомов в возбужденных ридберговских состояниях, характеризующихся повышенной устойчивостью к ионизации сильным полем, напрямую связанной с эффектом интерференционной стабилизации [9]. Он не может быть описан в рамках теории возмущений, но оказывает существенное влияние на величину нелинейных атомных восприимчивостей.

Для анализа нелинейного атомного отклика по волновой функции системы $\Psi(\mathbf{r}, t)$ с использованием (8) для различных значений лазерной интенсивности были рассчитаны функции $\langle a_z(t) \rangle$. Результаты спектрального разложения этой функции для трех значений интенсивности излучения приведены на рис. 2. Как видно, полученные разложения характеризуются ярко выраженными пиками на нечетных гармониках частоты лазерного импульса, $\Omega_{2n+1} = (2n + 1)\omega$ ($n = 0, 1, 2, \dots$). Это обстоятельство позволяет из первых принципов вычислить возникающие поляризации на частотах Ω_{2n+1} с учетом процесса ионизации и возбуждения различных атомных

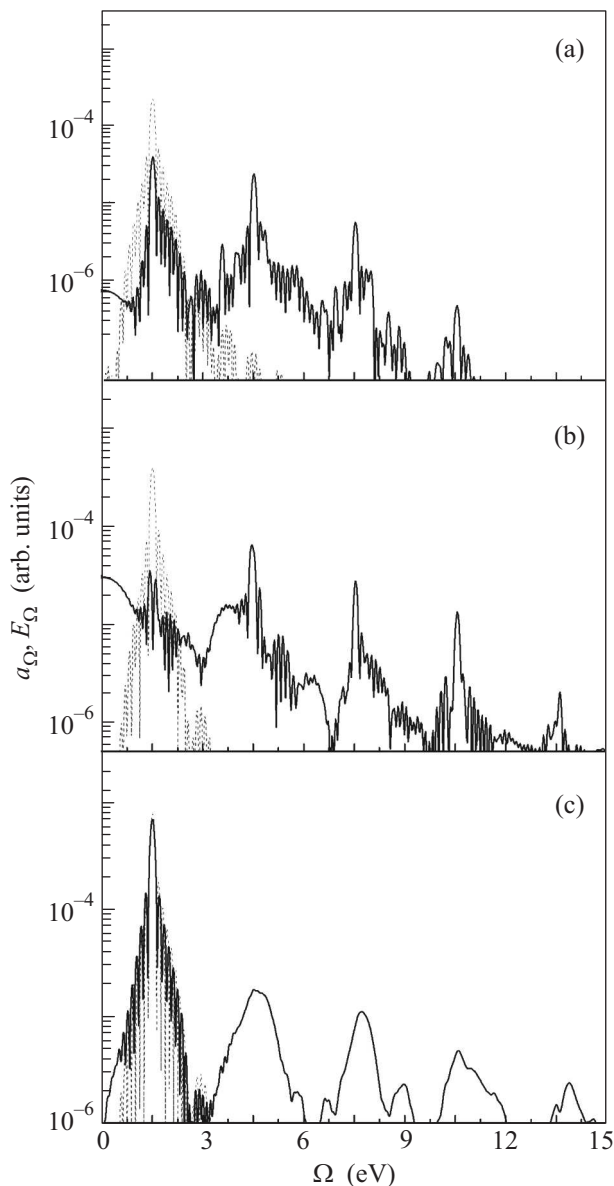


Рис. 2. Спектральные разложения ускорения электрона в лазерных импульсах с интенсивностью (Вт/см²): $3 \cdot 10^{12}$ (а), $1.5 \cdot 10^{13}$ (б), $4 \cdot 10^{13}$ (в). Штриховой кривой показан спектральный состав лазерного импульса

состояний, а также определить диапазон интенсивностей, в котором возможно разложение поляризационного отклика по степеням поля.

Рассчитанная зависимость поляризационного отклика на частоте лазерного поля d_{ω} от спектрального значения напряженности электрического поля волны E_{ω} приведена на рис. 3. В слабых полях ($P \leq 3 \cdot 10^{12}$ Вт/см²) полученная зависимость действительно описывается выражением (1), причем $\chi^{(1)}(\omega) \approx 56$ ат. ед., а $\chi^{(3)}(\omega) \approx 0.06$ ат. ед. Как и следовало ожидать, полученное значение $\chi^{(1)}(\omega)$

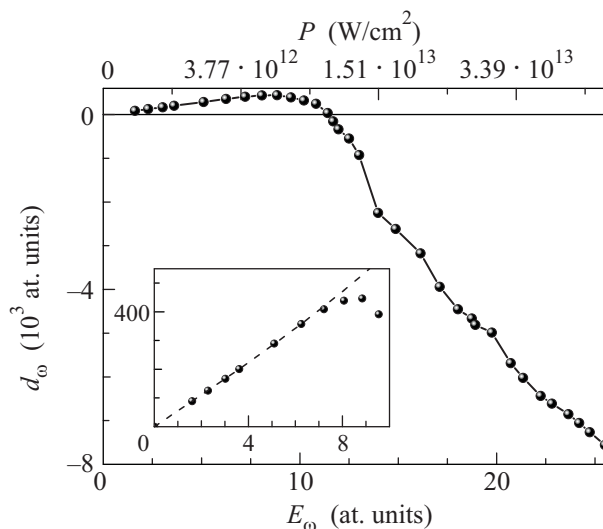


Рис. 3. Зависимость поляризационного отклика на частоте поля от спектрального значения напряженности электрического поля волны (или от интенсивности излучения). На вставке приведена та же зависимость в области слабых полей, позволяющая определить область применимости разложения поляризации по степеням поля. Штриховой кривой показана зависимость $d_{\omega} = \chi^{(1)}(\omega)E_{\omega} + \chi^{(3)}(\omega)E_{\omega}^3$ для значений линейной и нелинейной восприимчивостей, приведенных в тексте статьи

близко к статическому значению поляризуемости основного состояния атома серебра, равному 66 ат. ед. [18]. В более сильных полях сначала наблюдается насыщение поляризационного отклика системы. Затем величина его меняет знак и становится отрицательной. Такая зависимость $d_{\omega}(E_{\omega})$ теоретически может быть обусловлена вкладом нелинейностей высших порядков в выражении (1), как это предполагается в работах [4, 5]. С другой стороны, эффект насыщения поляризационного отклика системы с ростом поля, последующее его убывание, а затем и смена знака величины d_{ω} могут быть обусловлены процессом фотоионизации и образованием электронной компоненты плазмы. Действительно, восприимчивость свободного электронного газа определяется выражением $\chi_e(\omega) = -1/\omega^2$. Для величины кванта $\hbar\omega = 1.5$ эВ оно дает величину $\chi_e \approx 330$ ат. ед., примерно в пять-шесть раз превышающую величину $\chi^{(1)}(\omega)$. Это означает, что уже при степени ионизации газа, превышающей 15–20%, вклад в поляризуемость среды свободных электронов в континууме должен быть существенным. При этом в области интенсивностей $P \geq 3 \cdot 10^{13}$ Вт/см² оказывается, что $d_{\omega} \approx \chi_e(\omega)E_{\omega}$, где $\chi_e(\omega)$ – восприимчивость свободного электронного газа. Для более детального изуче-

ния вклада в поляризационный отклик электронной компоненты плазмы и нелинейностей высших порядков нами был проведен дополнительный анализ зависимости $d_\omega(E_\omega)$, представленной на рис. 3. Вычитая вклад электронной компоненты, определяемый выражением $d_\omega^e = -w_i E_\omega / \omega^2$ (w_i – вероятность ионизации), получим выражение для вклада в отклик, вносимого нейтральными атомами:

$$d_\omega^{\text{neutral}} = d_\omega + w_i E_\omega / \omega^2. \quad (9)$$

Полученная таким образом зависимость $d_\omega^{\text{neutral}}$ представлена на рис. 4. На этом же рисунке приведены за-

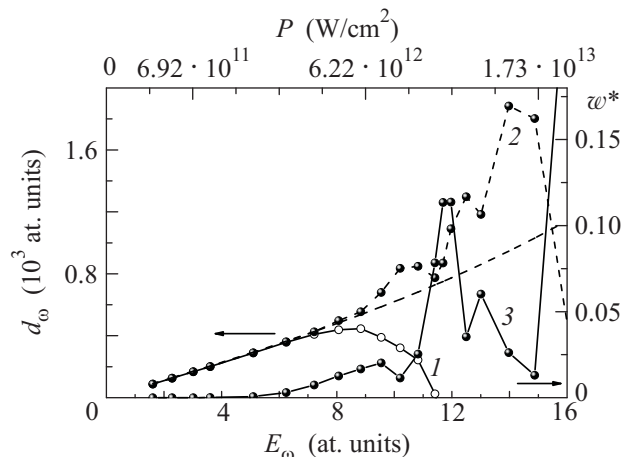


Рис. 4. Зависимости поляризационного отклика на частоте поля (1) и вклада в него, вносимого нейтральными атомами (2), от спектрального значения напряженности электрического поля волны (или интенсивности излучения). Штриховой кривой показана аппроксимирующая их зависимость, учитывающая вклады $\chi^{(1)}(\omega)$ и $\chi^{(3)}(\omega)$. Кривая 3 – зависимость вероятности возбуждения атомных состояний от интенсивности излучения

висимость $d_\omega(E_\omega)$, аппроксимирующая ее кривая и зависимость вероятности возбуждения атомных состояний от интенсивности излучения. Представленные данные убедительно показывают, что в условиях наших расчетов за насыщение и смену знака отклика отвечает именно образование плазмы. С другой стороны, как видно из рис. 4, важную роль играет также отклик нейтральных, в том числе возбужденных атомов. Однако в диапазоне интенсивностей вплоть до $2 \cdot 10^{13}$ Вт/см² отклик нейтральных атомов оказывается положительным, т.е. усиливающим фокусирующие свойства среды. Важно также отметить, что в области интенсивностей $P > 10^{13}$ Вт/см² нелинейный отклик оказывается немонотонной функцией интенсивности излучения. При этом минимумы на зависимости 2, представленной на рис. 4, соответствуют максимумам вероятности возбуждения

ридберговских состояний атомов. Поэтому можно утверждать, что обнаруженная немонотонная зависимость $d_\omega(E_\omega)$ обусловлена резонансным многофотонным возбуждением ридберговских состояний атомов и вкладом этих состояний в атомную восприимчивость. Влияние эффективного возбуждения атомных состояний на поляризационный отклик требует, несомненно, дополнительного изучения. Однако можно утверждать, что обнаруженная нами немонотонная зависимость отклика нейтральных атомов не может быть получена в рамках подхода, основанного на квантовомеханической теории возмущений. Полученные данные также свидетельствуют в пользу того, что в нашей модели именно ионизация газа и образование плазмы могут быть ответственны за образование филаментов. Для пересмотра существующей парадигмы филаментации фемтосекундных лазерных импульсов [19, 20] в условиях наших расчетов существенных оснований нет.

Еще одним важным результатом является поведение атомного отклика на частоте третьей гармо-

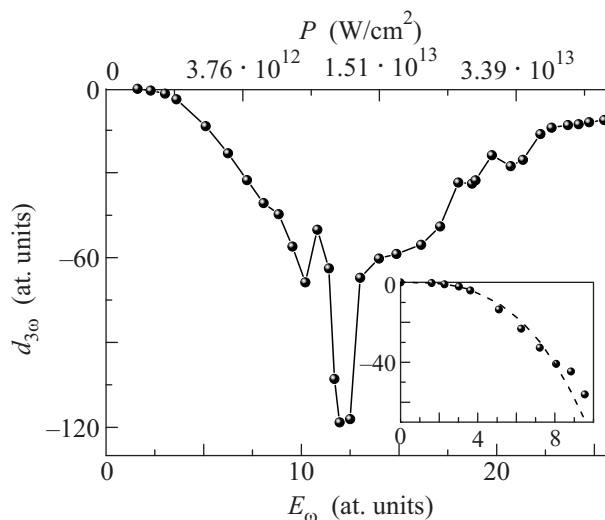


Рис. 5. Зависимость поляризационного отклика на частоте третьей гармоники от спектрального значения напряженности электрического поля волны (или от интенсивности излучения). На вставке приведена та же зависимость в области слабых полей, позволяющая определить область применимости разложения поляризации по степеням поля. Штриховой кривой показана зависимость $d_{3\omega} = \chi^{(3)}(3\omega) E_\omega^3$ для значения нелинейной восприимчивости, приведенного в тексте статьи

ники, $d_{3\omega}(E_\omega)$. Соответствующая зависимость представлена на рис. 5. В области слабых полей ($P \leq 10^{12}$ Вт/см²) полученная зависимость является кубической $d_{3\omega} \sim E_\omega^3$, что позволяет ввести величину нелинейной восприимчивости третьего поряд-

ка, входящую в выражение (2), причем $\chi^{(3)}(3\omega) \approx -0.09$ ат. ед. Однако в полях, превышающих $3 \cdot 10^{12}$ Вт/см², разложение по степеням поля оказывается неприменимым. Более того, величина поляризационного отклика на частоте третьей гармоники оказывается немонотонной функцией лазерной интенсивности и демонстрирует наличие резкого максимума в области значений $\approx 1.1 \cdot 10^{13}$ Вт/см². Отметим, что именно это значение интенсивности соответствует первому максимуму на зависимости вероятности возбуждения атома от интенсивности (см. рис. 1), обусловленному пятифотонным резонансом между основным состоянием и группой ридберговских состояний в условиях реализации режима интерференционной стабилизации [9, 15, 21]. При этом существенно, что свободные электроны, возникающие при ионизации, не вносят вклада в отклик. Вместе с тем важным параметром является концентрация нейтральных атомов. При значении интенсивности $\approx 1.1 \cdot 10^{13}$ Вт/см² она составляет ≈ 0.65 . При дальнейшем увеличении лазерной интенсивности величина отклика $d_{3\omega}(E_\omega)$, оставаясь немонотонной функцией, убывает по абсолютному значению, что обусловлено ионизацией большей части атомов среды и, как следствие, уменьшением концентрации нейтральных атомов. Однако величина отклика $d_{3\omega}(E_\omega)$ остается значительной вплоть до интенсивностей излучения $\approx 5 \cdot 10^{13}$ Вт/см².

Таким образом, численные расчеты поляризационного отклика в газовой среде, состоящей из атомов серебра, показывают ограниченность обычно используемого подхода, основанного на разложении отклика по степеням электрического поля и введении нелинейных восприимчивостей различных порядков, уже при значении интенсивностей порядка $3 \cdot 10^{12}$ Вт/см². В более сильных полях электронная динамика в атомах носит существенно непертурбативный характер и не может быть описана в рамках квантовой механической теории возмущений, лежащей в основе вышеупомянутого метода. В частности, наиболее важным эффектом при расчете отклика на частоте воздействующего поля волны является процесс нелинейной атомной ионизации, приводящий к образованию плазмы и ответственный за филаментацию мощных лазерных импульсов в различных средах. Обнаружено, что важную роль при анализе поляризационного отклика на частоте воздействующего излучения и на нечетных гармониках играет явление стабилизации и удержания населенности в ридберговских состояниях атомов.

Авторы выражают благодарность С.И. Кудряшовой и Л.В. Селезневу за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты # 09-02-00317, 10-02-01477), гранта Президента РФ # НШ-3322.2010.2 и Министерства образования и науки Российской Федерации. Расчеты проводились на суперкомпьютере СКИФ МГУ “Чебышев”.

1. Т. Н. Maiman, *Nature* **187**, 493 (1960).
2. С. А. Ахманов, С. Ю. Никитин, *Физическая оптика*, М.: МГУ, 1998.
3. Ю. А. Ильинский, Л. В. Келдыш, *Взаимодействие электромагнитного излучения с веществом*, М.: МГУ, 1989.
4. V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, *Optics Express* **17**, 13429 (2009).
5. P. Be'jot, J. Kasparian, S. Henin et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 103903 (2010).
6. A. Braun, G. Korn, X. Liu et al., *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995).
7. A. Brouder, C. Y. Chien, F. A. Ilkov et al., *Opt. Lett.* **22**, 304 (1997).
8. J. Kasparian, R. Sauerbrey, and S. L. Chin, *Appl. Phys. B* **71**, 877 (2000).
9. M. V. Fedorov, *Atomic and Free Electrons in a Strong Light Field*, World Scientific, 1997.
10. M. Gavrila, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **35**, R147, (2002).
11. А. М. Попов, О. В. Тихонова, and Е. А. Волкова, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **36**, R125, (2003).
12. I. A. Burenkov, А. М. Попов, О. В. Тихонова, and Е. А. Волкова, *Laser Phys. Lett.* **7**, 409, (2010).
13. T. Nubbemeyer, K. Gorling, A. Saenz et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 233001 (2008).
14. A. Talebpour, C-Y. Chien, and S. L. Chin, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, 5725 (1996).
15. Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова, *ЖЭТФ* **140**, 450 (2011).
16. M. V. Fedorov, *Laser Phys.* **16**, 948 (2006).
17. А. М. Попов, О. В. Тихонова, and Е. А. Волкова, *Laser Phys.* **21**, 1593 (2011).
18. А. А. Радциг, Б. М. Смирнов, *Параметры атомов и атомарных Ионов*, М.: Энергоатомиздат, 1986.
19. M. Kolesnik, E. M. Wright, and J. V. Moloney *Opt. Lett.* **35**, 2550 (2010).
20. C. Bree, A. Demircan, and G. Steinmeyer, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 183902 (2011).
21. Ю. В. Дубровский, М. Ю. Иванов, М. В. Федоров, *ЖЭТФ* **99**, 411 (1991).