Письма в ЖЭТФ, том 106, вып. 10, с. 621 – 626

Селективное возбуждение, когерентное управление и аттосекундная спектрохронография электронных подоболочек атомных систем

Д. В. Мещанкин[+], *А. А. Воронин*[+*], *Е. Е. Серебрянников*[+*], *А. М. Желтиков*[+*#1)]

[+]*Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия*

[*]*Российский квантовый центр, 143025 Сколково, Россия*

[#]*Texas A&M University, College Station TX, 77843 Texas, USA*

Поступила в редакцию 12 октября 2017 г.
После переработки 26 октября 2017 г.

Исследована возможность использования световых импульсов со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой для селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектрохронографии электронных подоболочек многоэлектронных атомных систем. Выполненный анализ эволюции матрицы плотности возбуждаемой сверхкоротким световым импульсом электронной подоболочки атомной системы показывает, что ключевую роль в формировании нелинейно-оптического отклика такой системы играют явления интерференции различных квантовых каналов электронной динамики. На основе выполненного анализа предложена методика когерентного управления аттосекундной динамикой отдельных электронных подоболочек с помощью сверхкоротких лазерных импульсов.

DOI: 10.7868/S0370274X17220052

Стремительное развитие лазерных технологий открывает уникальные возможности исследования сверхбыстрых процессов в веществе с беспрецедентным временны́м разрешением [1]. Разработанные в последние годы источники аттосекундных световых импульсов [2, 3] открывают пути решения одной из фундаментальных задач оптической физики – задачи прямой экспериментальной регистрации аттосекундной электронной динамики и создания на этой основе методов время-разрешенной диагностики процессов взаимодействия излучения с веществом на аттосекундной шкале времени [4–10]. Новые методы характеризации нелинейно-оптических сигналов, возникающих в результате взаимодействия сверхкоротких световых импульсов с электронной подсистемой, позволили реализовать принципиально новые схемы регистрации и диагностики сверхбыстрой электронной динамики в газах [1, 11, 12] и твердом теле [13–16].

Одна из ключевых трудностей аттосекундных методов исследования электронной динамики в сложных атомных и молекулярных системах связана с неселективным характером воздействия широкополосных световых импульсов на квантовую систему. Нелинейно-оптический отклик квантовой системы на такое воздействие является суммой откликов сложной суперпозиции электронных подоболочек, каждая из которых характеризуется своей собственной, трудно разрешаемой в условиях такого воздействия, квантовой динамикой [10].

В настоящей работе обсуждается один из путей решения задачи селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектрохронографии электронных подоболочек многоэлектронных атомных систем на основе использования разработанных в последние годы источников световых импульсов со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой. Представленный далее анализ эволюции матрицы плотности возбуждаемой сверхкоротким световым импульсом электронной подоболочки атомной системы показывает, что ключевую роль в формировании нелинейно-оптического отклика такой системы играют явления интерференции различных квантовых каналов электронной динамики. На основе выполненного анализа предложена методика когерентного управления аттосекундной динамикой отдельных электронных подоболочек с помощью сверхкоротких лазерных импульсов.

Основная идея предлагаемого подхода связана с использованием сверхкоротких световых импульсов со сверхшироким спектром для селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектрохронографии электронных подоболочек

1)e-mail: zheltikov@physics.msu.ru

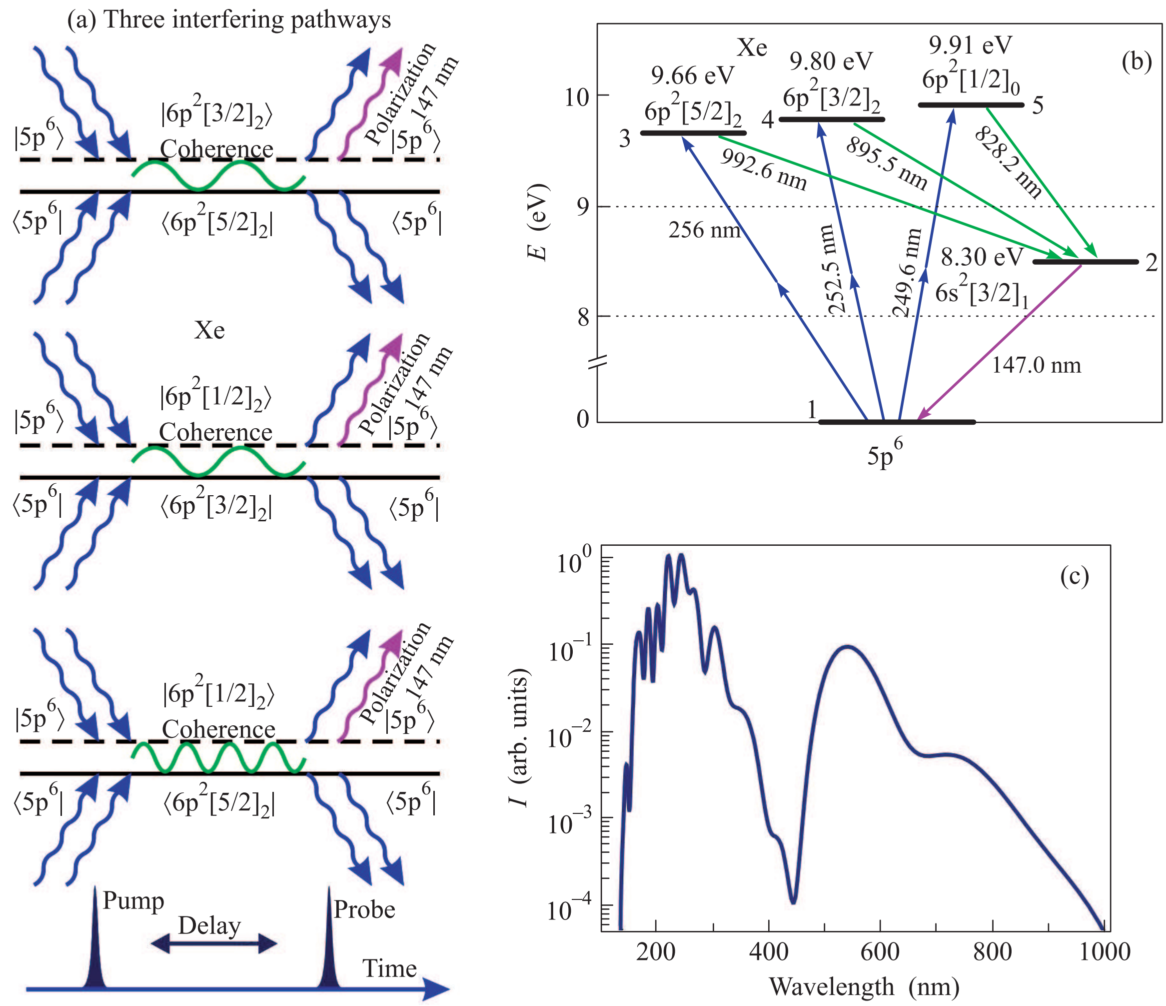

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Диаграммы Фейнмана трех интерферирующих каналов электронной динамики 6p-подоболочки атома ксенона. (b) – Диаграмма электронных уровней ксенона. (c) – Спектр светового импульса, используемого для возбуждения и зондирования атомарной системы

многоэлектронного атома. В качестве примера такой атомарной системы рассмотрен атом ксенона. На рис. 1 представлена диаграмма селективно возбуждаемых электронных уровней 6p-подоболочки атома ксенона, а также диаграммы Фейнмана, показывающие основные интерферирующие квантовые каналы лазерного возбуждения электронов 6p-подоболочки. Спектр светового импульса, используемого для селективного возбуждения и разрешаемого во времени зондирования атомной системы, определен таким образом (рис. 1c), чтобы соответствовать реальному спектру сверхкоротких импульсов, получаемых на основе технологии когерентного сложения спектрально уширенных сверхкоротких импульсов со смещенной центральной частотой [9]. Спектр светового импульса перекрывает диапазон длин волн от 140 до 1000 нм (рис. 1c).

На представленных (см. рис. 1a) диаграммах Фейнмана показаны основные интерферирующие квантовые каналы, дающие вклад в процесс селективного возбуждения 6p-подоболочки атома ксенона. Четыре фотона импульса накачки (слева) приводят к когерентному возбуждению электронных состояний $6p^2[1/2]_0$, $6p^2[3/2]_0$, $6p^2[5/2]_0$. Зондирующий лазерный импульс (справа) приводит к возникновению нелинейной поляризации и наведенного поглощения на частоте перехода 5p-6s (розовые стрелки на рис. 1a, b). Возникающие в результате интерференции трех квантовых каналов (каналы 1–3–2, 1–4–2 и 1–5–2 на рис. 1b) осцилляции нелинейной поляризации приводят к осциллирующей зависимости наведенного поглощения в функции времени задержки между зондирующим и возбуждающим лазерными импульсами.

Анализ динамики наводимой полем когерентности и населенности возбуждаемых полем электронных состояний основан на решении решения уравнения Лиувиля для статистического оператора (матрицы плотности) ρ:

$$\mathrm{i}h\frac{\partial\rho}{\partial t} = [H_0, \rho(t)] - E(t)[d, \rho(t)] - \rho(t)/\tau_{\mathrm{r}}. \quad (1)$$

Здесь H_0 – гамильтониан в отсутствие поля, d – оператор дипольного момента, $E(t)$ – электрическое поле, $[\cdot]$ – скобки Пуассона, τ_{r} – время дефазировки.

Матрица плотности записывается в виде ряда теории возмущений:

$$\rho(t) = \sum_n \rho^{(n)}(t), \quad (2)$$

где каждое слагаемое $\rho^{(n)}(t)$ находится из решения системы уравнений

$$\mathrm{i}h\frac{\partial\rho^{(n)}}{\partial t} =$$
$$= [H_0, \rho^{(n-1)}(t)] - E(t)[d, \rho(t)^{(n-1)}] - \rho(t)^{(n-1)}/\tau_{\mathrm{r}}. \quad (3)$$

Индуцируемая полем нелинейная поляризация $P^{(n)}(t)$ и соответствующее этой поляризации наведенное поглощение $\sigma(\omega)$ вычисляются согласно следующим формулам:

$$P^{(n)}(t) = N\,\mathrm{Tr}\lfloor\rho^{(n)}(t), d\rfloor, \quad (4)$$

$$\sigma(\omega) = 4\pi\frac{\omega}{cN}\mathrm{Im}\left[\frac{\sum_{n=2}^{6}\tilde{P}^{(2n+1)}(\omega)}{\varepsilon_0\tilde{E}(\omega)}\right]. \quad (5)$$

Здесь $\tilde{P}^{(n)}(\omega)$ и $\tilde{E}(\omega)$ – фурье-образы функций $P^{(n)}(t)$ и $E(t)$, N – плотность атомов.

На рис. 1b представлена диаграмма пяти электронных уровней атома ксенона, включенных в модель. Лазерный импульс накачки приводит к возникновению когерентности на переходах между электронными состояниями $6\mathrm{p}^2[1/2]_0$, $6\mathrm{p}^2[3/2]_0$, $6\mathrm{p}^2[5/2]_0$ атома ксенона. В наведение когерентности проявляется квантовая интерференция трех двухфотонных переходов (переходы 1–3, 1–4, 1–5 на рис. 1b). Поле зондирующего импульса индуцирует поляризацию и поглощение на частоте 5p–6s перехода (2–1 на рис. 1b), которая вычисляется по формулам (4) и (5). Интерференция трех квантовых каналов, показанных на рис. 1a, проявляется в осцилляциях зависимости поляризации и наведенного на частоте зондирующего импульса поглощения от времени задержки между импульсом накачки и зондирующим импульсом. Картина возникающих осцилляций позволяет восстановить динамику электронной плотности 6p-подоболочки.

Воспользуемся следующим выражением для электронной плотности, создаваемой на 6p-подоболочке атома ксенона широкополосным лазерным импульсом:

$$Q(r,\theta) = \sum_{k,k'} \rho_{kk'}\varphi_k^*\varphi_{k'}. \quad (6)$$

Суммирование в выражении (6) проводится по всем состояниям 6p-подоболочки ксенона, одноэлектронные волновые функции которых имеют вид:

$$\varphi^e_{n,l,m_l,j_c,m_{jc},m_S} = \frac{R_{n,l}(r)}{r}\psi^e_{n,l,m_l,j_c,m_{jc},m_S}(\theta,\phi), \quad (7)$$

где r, θ, φ – радиальная и угловые координаты, n, l – главное и орбитальное квантовые числа, j_c – полный угловой момент, m_l, m_S, m_{jc} – магнитные квантовые числа.

Радиальная часть волновой функции $R_{n,l}(r)/r$ находится путем решения уравнения Шредингера,

$$\left\{-\frac{1}{2}\frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} + V_{\mathrm{HS}}(r)\right\} R_{n,l}(r) = W_{n,l}R_{n,l}(r), \quad (8)$$

где $V_{\mathrm{HS}}(r)$ – потенциал внешнего электрона в поле ядра и остальных электронов, вычисляемый методом Хартри–Фока–Слэтера, удовлетворяющий условиям $V_{\mathrm{HS}}(r) \to -Z/r$ при $r \to 0$ и $V_{\mathrm{HS}}(r) \to 1/r$ при $r \to \infty$ для ядра с зарядом Z, $W_{n,l}$ – собственное значение энергии.

Угловая часть волновой функции $\psi^e_{n,l,m_l,j_c,m_S}(\theta,\phi)$ выражается через сферические функции, индексы которых определяются станлартными правилами сложения угловых моментов. Для возбужденных состояний 6p-подоболочки атома ксенона имеем $l = 1$, $S = 0.5$, $j_c = 1.5$, $m = 0$.

На рис. 2 представлены результаты расчетов для диагональных (кривые *2*, *3*, *4* на рис. 2a) и недиагональных (кривые *1*, *2*, *3* на рис. 2b) элементов матрицы плотности $\rho(\omega)$ электронной подоболочки 6p атома ксенона, выполненные с использованием уравнений (2) и (3). Кривой *1* на рис. 2a показана времена́я зависимость напряженности электрического поля светового импульса, соответствующая спектру импульса, представленному на рис. 1c. Во временóй зависимости недиагональных элементов матрицы плотности, описывающих наводимую полем когерентность, проявляются характерные осцилляции с периодом $T_{kk'}$, определяемым разностью энергий уровней k и k' (рис. 1b) В частности, для когерентности ρ_{34}, соответствующей переходам между уровнями $6\mathrm{p}^2[5/2]_0$ и $6\mathrm{p}^2[3/2]_0$, этот период составляет $T_{34} = 29.5$ фс. Для когерентностей ρ_{45} и ρ_{35} имеем $T_{45} = 37.5$ фс и $T_{35} = 16.5$ фс.

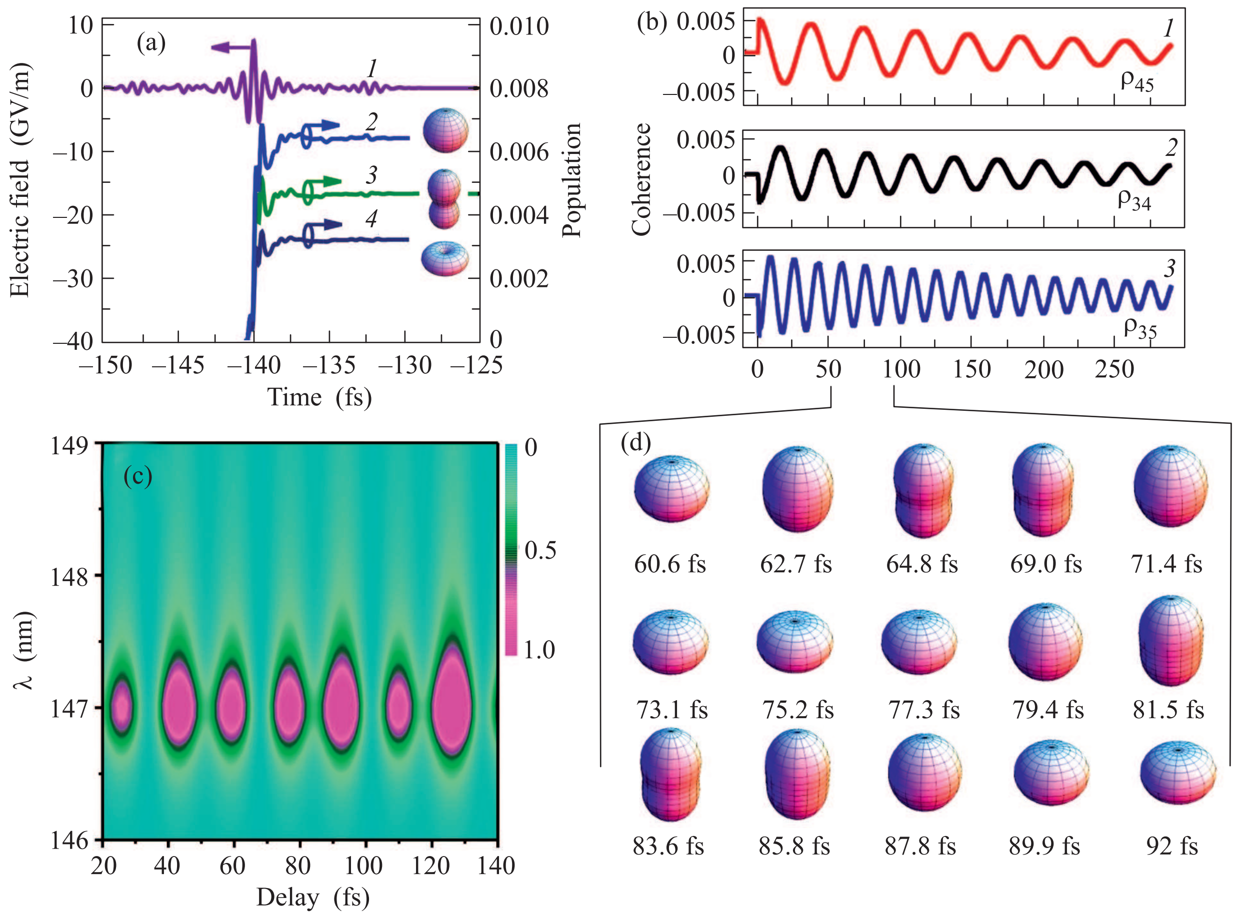

Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Динамика населенностей и угловые зависимости волновых функций состояний $6p^2[1/2]_0$ (кривая *2*), $6p^2[5/2]_0$ (кривая *3*), $6p^2[3/2]_0$ (кривая *4*) атома ксенона. Поле импульса накачки показано кривой *1*. (b) – Динамика когерентностей, наводимых на электронных переходах $6p^2[3/2]_0 - 6p^2[1/2]_0$ (кривая *1*), $6p^2[5/2]_0 - 6p^2[3/2]_0$ (кривая *2*), $6p^2[5/2]_0 - 6p^2[1/2]_0$ (кривая *3*) атома ксенона. (c) – Зависимость дифференциального поглощения $\Delta\sigma(\omega,\tau)$ от времени задержки τ между зондирующим импульсом и импульсом накачки. (d) – Динамика угловой зависимости электронной плотности 6p-подоболочки атома ксенона

На рис. 2c изображена зависимость дифференциального поглощения $\Delta\sigma(\omega,\tau) = \sigma(\omega) - \sigma_0(\omega)$, испытываемого зондирующим импульсом ($\sigma(\omega)$ и $\sigma_0(\omega)$ – спектры поглощения зондирующего импульса в присутствии и в отсутствие импульса накачки), от времени задержки τ между зондирующим импульсом и импульсом накачки. В зависимости $\Delta\sigma(\omega,\tau)$ наблюдаются ярко выраженные осцилляции (рис. 2c). На рис. 3 представлены результаты фурье-анализа одномерного среза этих осцилляций на длине волны перехода 6s–5p (147 нм).

В спектре фурье-образа функции $\Delta\sigma(\tau)$ проявляются ярко выраженные максимумы, наблюдаемые на частотах переходов между уровнями 6p-подоболочки атома ксенона. В частности, энергиям $W_{45} = 0.11$ эВ, $W_{34} = 0.14$ эВ, $W_{35} = 0.25$ эВ соответствуют переходы между уровнями $6p^2[1/2]_0$ и $6p^2[3/2]_0$, $6p^2[3/2]_0$ и $6p_2[5/2]_0$, а также $6p^2[1/2]_0$ и $6p^2[5/2]_0$. Указанные переходы и приводят к осцилляциям функции $\Delta\sigma(\omega)$ с периодами $T_{45} = 37.5$ фс, $T_{34} = 29.5$ фс и $T_{35} = 16.5$ фс фурье-образа. На рис. 2d представлена динамика угловой зависимости волновой функции 6p-подоболочки атома ксенона, рассчитанная с использованием выражений (6) и (7). Динамика угловой зависимости электронной плотности, восстанавливаемая на основе анализа спектра $\Delta\sigma(\omega,\tau)$, отражает картину интерференции между квантовыми каналами, приводящими к возбуждению электронных состояний исследуемой подоболочки.

Таким образом, световые импульсы со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой обеспечивают возможность селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектрохронографии электронных подоболочек многоэлек-

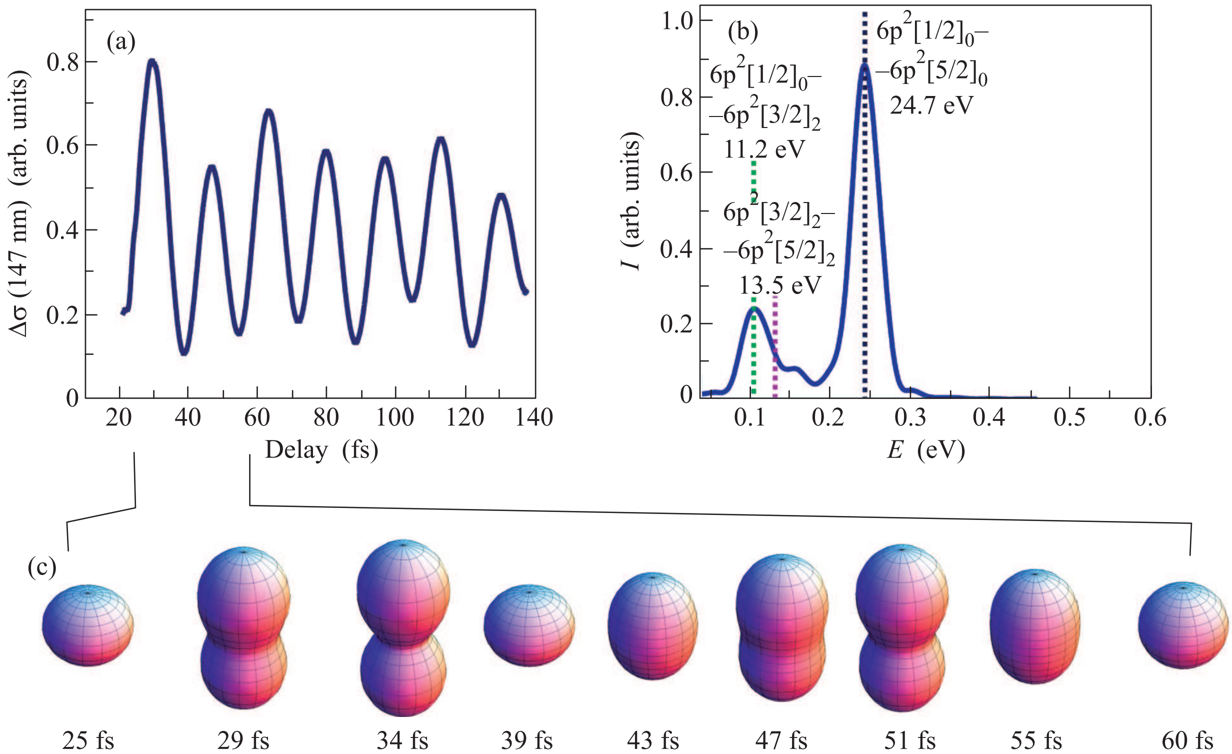

Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость дифференциального поглощения $\Delta\sigma(\tau)$ от времени задержки τ между зондирующим импульсом и импульсом накачки. (b) – Фурье-образ функции $\Delta\sigma(\omega)$. (c) – Динамика угловой зависимости электронной плотности 6p-подоболочки атома ксенона в диапазоне времени задержки $\tau = 25\ldots60$ фс

тронных атомных систем. Выполненный в настоящей работе анализ показывает, что использование сверхкоротких световых импульсов с непрерывным спектром, перекрывающим диапазон длин волн от 140 до 970 нм, позволяет реализовать селективное возбуждение, когерентное управление и спектрохронографический анализ аттосекундной электронной динамики 6p-подоболочки атома ксенона.

Работа выполнена при поддержке грантами 16-02-00843, 16-32-60164, 17-02-01131, 16-52-00190, 17-52-53092 РФФИ, грантом A-1801 Фонда Роберта Уелча и проектом 211 от 16.03.2013 программы "5-100" Министерства образования и науки России. Исследования в области аттосекундной спектрохронографии выполнены при поддержке Российского научного фонда (грант 17-12-01533). Исследования А.А.В. дополнительно поддержаны совместным грантом МГУ им. М.В. Ломоносова и фонда Иннопрактика.

---

1. P.B. Corkum and F. Krausz, Nature Phys. **3**, 381 (2007).
2. G. Sansone, L. Poletto, and M. Nisoli, Nature Photonics **5**, 655 (2011).
3. E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V.S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A.L. Aquila, E.M. Gullikson, D.T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Kleineberg, Science **320**, 1614 (2008).
4. R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, Nature **427**, 817 (2004).
5. E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, Science **305**, 1267 (2004).
6. M.F. Kling, Ch. Siedschlag, A.J. Verhoef, J.I. Khan, M. Schultze, Th. Uphues, Y. Ni, M. Uiberacker, M. Drescher, F. Krausz, and M.J.J. Vrakking, Science **312**, 246 (2006).
7. G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, and M. Nisoli, Science **314**, 443 (2006).
8. A.L. Cavalieri, N. Müller, Th. Uphues, V.S. Yakovlev, A. Baltuška, B. Horvath, B. Schmidt, L. Blümel, R. Holzwarth, S. Hendel, M. Drescher, U. Kleineberg, P.M. Echenique, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Heinzmann, Nature **449**, 1029 (2007).

9. E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, A. L. Cavalieri, M. Uiberacker, V. Pervak, A. Apolonski, R. Kienberger, U. Kleineberg, and F. Krausz, Science **317**, 769 (2007).
10. M. Th. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, O. Raskazovskaya, P. Zhokhov, M. Garg, N. Karpowicz, A. M. Zheltikov, V. Pervak, F. Krausz, and E. Goulielmakis, Nature **530**, 66 (2016).
11. A. J. Verhoef, A. V. Mitrofanov, E. E. Serebryannikov, D. V. Kartashov, A. M. Zheltikov, and A. Baltuška, Phys. Rev. Lett. **104**, 163904 (2010).
12. F. Reiter, U. Graf, E. E. Serebryannikov, W. Schweinberger, M. Fiess, M. Schultze, A. M. Azzeer, R. Kienberger, F. Krausz, A. M. Zheltikov, and E. Goulielmakis, Phys. Rev. Lett. **105**, 243902 (2010).
13. A. V. Mitrofanov, A. J. Verhoef, E. E. Serebryannikov, J. Lumeau, L. Glebov, A. M. Zheltikov, and A. Baltuška, Phys. Rev. Lett. **106**, 147401 (2011).
14. A. A. Lanin, E. A. Stepanov, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, Optica **4**, 516 (2017).
15. S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, Nature Phys. **7**, 138 (2011).
16. G. Vampa, T. J. Hammong, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, and P. B. Corkum, Nature **25**, 462 (2015).