Письма в ЖЭТФ, том 114, вып. 5, с. 298 – 303

Особенности возбуждения квантовых систем малоцикловыми аттосекундными световыми импульсами – интерференция площадей огибающей и электрической площади импульса

Р. М. Архипов[+*1)], *М. В. Архипов*[+1)], *И. Бабушкин*[×1)], *А. В. Пахомов*[+1)], *Н. Н. Розанов*[*1)]

[+] *Санкт-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия*

[*] *Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия*

[×] *University of Hannover and Cluster of Excellence PhoenixD (Photonics, Optics, and Engineering – Innovation Across Disciplines), 30167 Hannover, Germany*

Поступила в редакцию 7 августа 2021 г.
После переработки 11 августа 2021 г.
Принята к публикации 11 августа 2021 г.

В заметке рассматриваются различия в возбуждении дискретных уровней квантовой системы при переходе от возбуждающих многоцикловых импульсов к коротким полупериодным. Показано, как при уменьшении числа циклов колебаний поля в импульсе система переходит из режима периодического воздействия к режиму воздействия в виде единственного кратковременного “толчка”. В обоих случаях воздействие зависит от площади импульса, которая, однако, для субциклового импульса равна интегралу по времени от напряженности поля, а для импульса, содержащего несколько циклов, интегралу от огибающей импульса. Обсуждается интерференция площадей огибающей и электрической площади импульсов и ее возможное проявление в экспериментах по возбуждению атомных систем.

DOI: 10.31857/S123456782117002X

Введение. В настоящее время экспериментально получены электромагнитные импульсы аттосекундной длительности [1]. Подобные импульсы активно применяются для изучения динамики волновых пакетов электронов в различных средах, поскольку периоды осцилляций таких пакетов в атомных системах лежат в аттосекундном диапазоне [2, 3].

Получаемые на практике аттосекундные импульсы содержат несколько осцилляций поля. При сокращении числа осцилляций поля и переходе к предельно коротким световым импульсам с длительностью менее периода поля возникают униполярные полупериодные импульсы. Они содержат полуволну поля большой амплитуды [4–8]. Для униполярных импульсов важной характеристикой является электрическая площадь, определяемая в каждой точке пространства как

$$S_E = \int\limits_{t=-\infty}^{+\infty} E(t)dt, \tag{1}$$

где E – напряженность электрического поля и t – время [9, 10].

Наличие мощного униполярного фронта открывает возможности в использовании таких импульсов для эффективного управления динамикой волновых пакетов в веществе и ускорения зарядов [7, 11–18].

Получение униполярных полупериодных импульсов является трудной экспериментальной задачей. Обычно получаются квазиуниполярные полуцикловые импульсы. Они содержат мощную полуволну поля одной полярности и длинный задний фронт противоположной полярности [4–7]. Как было показано в [13], действие таких импульсов часто похоже на действие чисто униполярных импульсов.

Как показывают результаты теоретических и экспериментальных исследований, характер взаимодействия униполярных и квазиуниполярных импульсов с квантовыми системами существенно отличается от ситуации, когда система взаимодействует с длинными многоцикловыми импульсами [4, 7, 11–18]. Это требует расширения сложившихся представлений о взаимодействии предельно коротких импульсов с микрообъектами. В частности, это относится к стандартной теории фотоионизации Келдыша, в которой переход от сильного поля к слабому определяется значением параметра Келдыша [19].

Действительно, теоретические исследования показывают, что электрическая площадь, а не энер-

[1)] e-mail: arkhipovrostislav@gmail.com; m.arkhipov@spbu.ru; babushkin@iqo.uni-hannover.de; antpakhom@gmail.com; nnrosanov@mail.ru

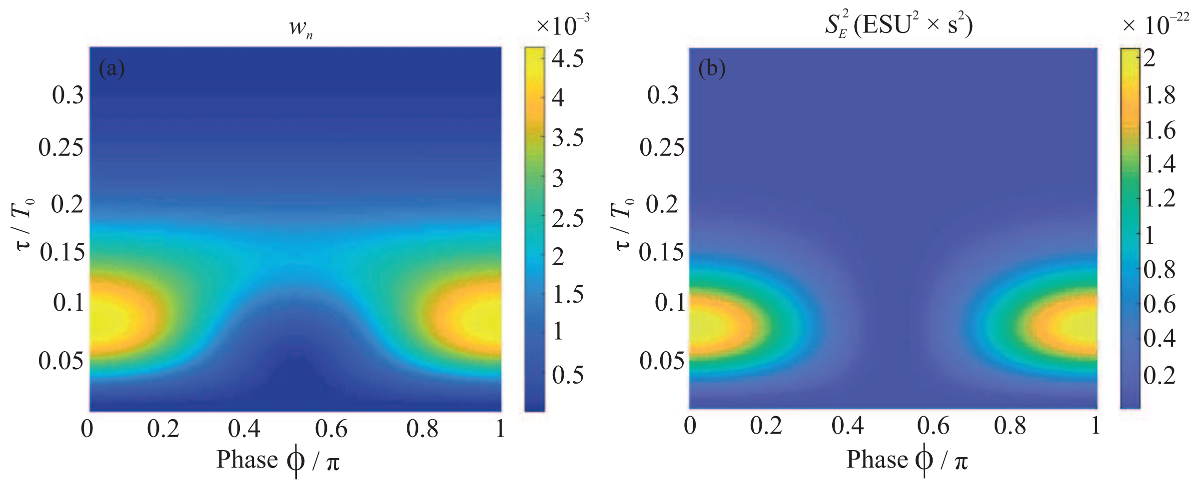

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость населенности возбужденного состояния $w_n(\tau, \phi)$ от фазы импульса ϕ и его длительности τ. (b) – Зависимость квадрата электрической площади импульса S_E^2 от фазы импульса ϕ и его длительности τ

гия импульса определяет воздействие субцикловых квазиуниполярных импульсов на квантовые системы [7, 11–18]. Поэтому для характеристики степени их воздействия на квантовые системы можно вводить новые физические величины. В частности, недавно было предложено ввести такую величину, как "атомная мера электрической площади", которая используется для оценки эффективности действия униполярных и квазиуниполярных импульсов на квантовые системы [20].

В данной работе на основе приближенного решения уравнения Шредингера в приближении слабого поля анализируется вопрос о возбуждении связанных состояний атомных систем в переходном режиме от предельно коротких к длинным импульсам. Рассматривается, какие параметры импульсов возбуждения являются определяющими при возбуждении связанных состояний, а какие несущественны при таком переходе. Показана возможность интерференционного взаимодействия электрической площади и площади огибающей.

Основные формулы. Пусть система возбуждается импульсом с огибающей, которая имеет гауссову форму:

$$E_e(t) = E_0 e^{\frac{-t^2}{\tau^2}} \cos(\Omega t + \phi). \quad (2)$$

Здесь Ω – несущая частота импульса, ϕ – фаза (*carrier envelope phase*, CEP). Электрическая площадь такого импульса $S_E = E_0 \tau \sqrt{\pi} \exp(-\Omega^2 \tau^2 / 4) \cos\phi$.

Пусть система до воздействия импульса находилась в основном состоянии. В первом порядке теории возмущений можно получить следующее выражение для населенности n-го возбужденного состояния квантовой системы w_n в дискретном спектре после воздействия импульса [14]:

$$w_n = 0.5\pi \frac{d_{1n}^2}{\hbar^2} E_0^2 \tau^2 \exp\left[-\frac{(\omega_{1n}^2 + \Omega^2)\tau^2}{2}\right] \times$$
$$\times [\cosh(\omega_{1n}\Omega\tau^2) + \cos 2\phi]. \quad (3)$$

Здесь d_{1n} – дипольный момент перехода.

Рассмотрим предельные случаи предельно коротких и длинных импульсов.

Случай 1. Предельно короткий импульс, $\Omega\tau \ll 1$. Предположим, что частота импульса превосходит собственные частоты переходов квантовой системы, $\Omega \gg \omega_{1n}$. Тогда в первом приближении в показателе первой экспоненты в (3) пренебрежем слагаемым ω_{1n}^2. При $\Omega\tau \ll 1$ и $\omega_{1n}\tau \ll 1$ гиперболический косинус в скобках выражения (3) будет порядка 1. Выражение (3) упрощается и принимает вид:

$$w_n = 0.5\pi \frac{d_{1n}^2}{\hbar^2} E_0^2 \tau^2 \exp\left[-\frac{\Omega^2 \tau^2}{2}\right] [1 + \cos 2\phi] =$$
$$= \frac{d_{1n}^2}{\hbar^2} \pi E_0^2 \tau^2 \exp\left[-\frac{\Omega^2 \tau^2}{2}\right] (\cos\phi)^2 = \frac{d_{1n}^2}{\hbar^2} S_E^2. \quad (4)$$

Видно, что в случае воздействия субциклового импульса его воздействие определяется именно электрической площадью импульса. Аналогичный результат получен ранее в приближении внезапных возмущений, если пренебречь собственным гамильтонианом системы во время действия импульса [11, 12, 20].

Таким образом, в случае предельно коротких импульсов их воздействие определяется электрической площадью импульса.

Рассмотрим численный пример. Возьмем следующие параметры среды: частота перехода: $\omega_{12} = 2.35 \cdot 10^{15}$ рад/с ($\lambda_{12} = 800$ нм), $d_{12} = 5$ Д. Данные значения типичны для атомов щелочных металлов.

Параметры импульса возбуждения: частота $\Omega = 3\omega_{12}$, амплитуда $E_0 = 2 \cdot 10^7$ В/см. Зависимость $w_n(\tau, \phi)$, построенная по общей формуле (2), приведена на рис. 1a. Рисунок 1b иллюстрирует зависимость квадрата электрической площади импульса от τ и ϕ.

Действительно, при малых длительностях импульса, $\Omega\tau \ll 1$, согласно (4), населенности определяются электрической площадью. Рассмотрим область, где длительность импульса мала.

В узком участке коротких длительностей импульса $0.05T_0 < \tau < 0.15T_0$, где T_0 – период резонансного перехода, наблюдается сильная зависимость от фазы импульса. Электрическая площадь имеет максимумы при $\phi = 0, \pi$. В этих областях изменение населенности w_n достигает наибольшего значения. А при $\phi = \pi/2$ w_n остается близким к нулю, так как площадь импульса близка к нулю. При дальнейшем росте длительности импульса населенность стремится к нулю, несмотря на увеличение энергии импульса.

Случай 2. Длинный импульс, $\boldsymbol{\Omega\tau \gg 1}$. В этом случае в скобках (3) при большом значении аргумента косинус гиперболический $\cosh(\omega_{1n}\Omega\tau^2) \gg 1$. Это позволяет пренебречь слагаемым $\cos 2\phi$ по сравнению с $\cosh(\omega_{1n}\Omega\tau^2)$. Тогда (3) упрощается и принимает вид:

$$w_n = 0.5\frac{d_{1n}^2}{\hbar^2}\pi E_0^2\tau^2 \times$$
$$\times \exp\left[-\frac{(\omega_{1n}^2 + \Omega^2)\tau^2}{2}\right]\cosh(\omega_{1n}\Omega\tau^2) =$$
$$= 0.5\Theta^2 \exp\left[-\frac{(\omega_{1n}^2 + \Omega^2)\tau^2}{2}\right]\cosh(\omega_{1n}\Omega\tau^2). \quad (5)$$

Здесь величина $\Theta \equiv \frac{d_{1n}}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty}\varepsilon(t)dt = \frac{d_{1n}}{\hbar}E_0\tau\sqrt{\pi}$ – площадь огибающей импульса, которая впервые была введена для длинных многоцикловых лазерных импульсов в теории эффекта самоиндуцированной прозрачности МакКолом и Ханом [21]. Таким образом, в случае длинных многоцикловых импульсов населенность возбужденных состояний пропорциональна площади огибающей импульса. Это хорошо известный результат.

Рассмотрим теперь зависимость эффективности возбуждения от частоты импульса Ω. Рисунок 2 иллюстрирует зависимость $w_n(\Omega, \tau)$. Для многоцикловых импульсов виден очевидный максимум возбуждения, когда частота импульса совпадает с частотой резонансного перехода. Населенность увеличивается с ростом длительности импульса.

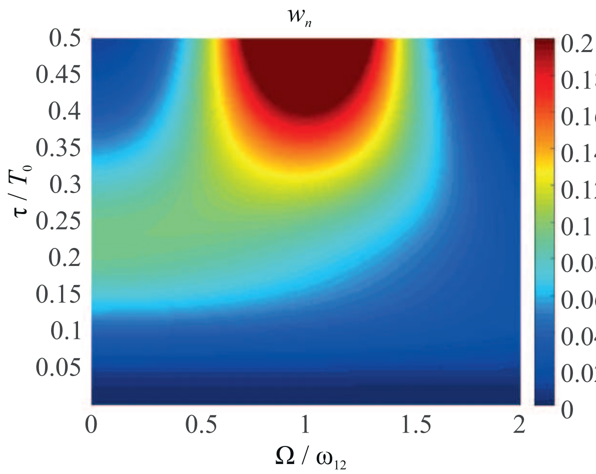

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость населенности возбужденного состояния w_n от частоты импульса Ω и его длительности τ. Частота указана в единицах частоты перехода ω_{12}, а длительность импульса в единицах периода резонансного перехода T_0. Амплитуда поля $E_0 = 3 \cdot 10^7$ В/см. Остальные параметры такие же, как на рис. 1

С другой стороны, по мере уменьшения длительности, наиболее эффективное возбуждение достигается при $\Omega \to 0$. Таким образом, униполярный полуцикловый импульс, содержащий постоянную составляющую поля на нулевой частоте, способен оказывать эффективное нерезонансное воздействие на атомные системы.

3. Промежуточный случай, $\boldsymbol{\Omega\tau \sim 1}$. Предположим также, что $\Omega \gg \omega_{1n}$. В этом случае оба слагаемых в скобках (3), $\cosh(\omega_{1n}\Omega\tau^2)$ и $\cos 2\phi$, сравнимы друг с другом. Нетрудно видеть, что в этом случае выражение (3) можно записать в виде

$$w_n = \frac{1}{2}\Theta^2 \exp\left[-\frac{\Omega^2\tau^2}{2}\right]\cosh(\omega_{1n}\Omega\tau^2) +$$
$$+ \frac{1}{2}\frac{d_{1n}^2}{\hbar^2}S_E^2 - \frac{1}{2}\Theta^2 \exp\left[-\frac{\Omega^2\tau^2}{2}\right]. \quad (6)$$

В данном промежуточном случае важна как площадь огибающей Θ, так и электрическая площадь S_E.

Выражение (6) получено для импульса в форме (2). С увеличением длительности импульса 2 слагаемое с S_E стремится к нулю. И начинает доминировать воздействие за счет площади огибающей.

Рассмотрим иную ситуацию, когда импульс состоит из нескольких циклов колебаний и имеет неисчезающее значение электрической площади S_E. Такой импульс можно представить в виде одиночного короткого, накладывающегося на многоцикловый гладкий импульс с плавной огибающей. Выражение для такого импульса может иметь следующий вид:

$$E(t) = E_{01}e^{-\frac{(t-\Delta t)^2}{\tau_1^2}} + E_{02}e^{-\frac{t^2}{\tau_2^2}} \sin \Omega t. \qquad (7)$$

Напомним, что в случае короткого импульса населенность уровня периодически зависит от фазы импульса ϕ. Аналогичный эффект следует ожидать и в случае возбуждения импульса видом (7) при изменении задержки Δt. Физически это значит, что воздействие униполярного импульса, которое описывается членом, пропорциональным его электрической площади, может быть как усилено, так и скомпенсировано многоцикловой составляющей поля. Таким образом, имеет место своеобразная "интерференция" между площадью огибающей импульса и электрической площадью.

В рамках используемой нами теории возмущений этот эффект можно объяснить следующим образом. Мы имеем дело с линейной суперпозицией двух импульсов. Каждое воздействие можно рассматривать отдельно, а затем их просуммировать. Суммирование будет происходить с учетом фаз состояний волновых функций.

Пример численного расчета, показывающий такую интерференцию, дан на рис. 3.

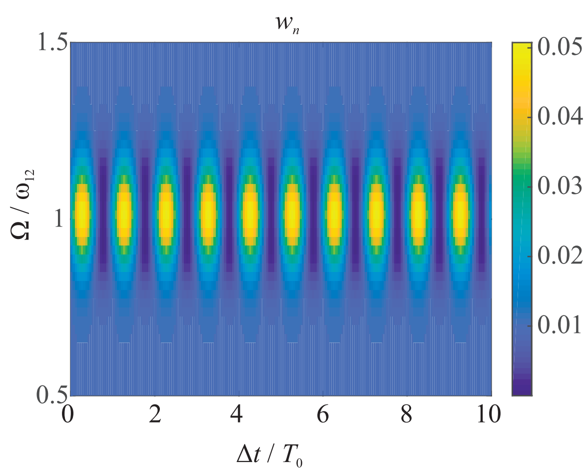

Рис. 3. (Цветной онлайн) Расчет изменения населенности под действием импульса с формой, определяемой (7), при изменении параметра Δt и несущей частоты импульса относительно частоты перехода. Параметры: $E_{01} = 10^7$ В/см, $\tau_1 = T_0/4$, $E_{02} = E_{01}/6$, $\tau_2 = 2T_0$

При данных параметрах имеет место гармоническая модуляция заселения уровня в зависимости от сдвига мощного всплеска поля относительно многоциклового импульса. В рамках используемого приближения оказывается, что даже если короткий импульс находится за пределами многоциклового пьедестала, такая интерференция остается эффективной. Физический механизм "интерференции", обуславливающий исчезновение возбуждения, связан с тем, что один импульс возбуждает, а второй девозбуждает, снимает возбуждение в среде, поскольку в данном примере их воздействие на систему одинаково, но зависит от момента действия. Подобный механизм обеспечивал селективность возбуждения при воздействии пары униполярных импульсов на переходы в квантовой системе [13].

В работе [4] квазиуниполярные импульсы были получены экспериментально при когерентном сложении многочастотного изучения. Результаты этой работы подтверждают эффективность квазиуниполярных импульсов в возбуждении атомных систем по сравнению с многоцикловыми импульсами. Однако, электрическая площадь импульса в таком случае равна нулю, что отличает наш пример с электрической площадью, не равной нулю, от ситуации, которая реализуется в экспериментах, так как пока не удается получить аттосекундные униполярные импульсы с большой электрической площадью.

Пример на рис. 4 показывает, что произойдет, если к выражению для импульса (6) добавить слагаемое $-1/8E_{01}e^{-\frac{t^2}{\tau_2^2}}$. Это слагаемое компенсирует положительный всплеск поля и сделает излучение с ненулевой электрической площадью (рис. 4a) биполярным с нулевой электрической площадью (рис. 4b). Сравнение воздействия на населенности униполярного импульса с нулевой электрической площадью при изменении задержки Δt в случае точного резонанса $\Omega = \omega_{12}$ показывает совпадение результатов их действия.

Пример показывает следующие правила. В импульсе с нулевой электрической площадью всплеск поля можно рассматривать как отдельный униполярный импульс. Если положение всплеска может меняться относительно малоамплитудной многоцикловой части импульса, то, казалось бы, незначительные изменения положения могут приводить к значительным изменениям воздействия излучения на резонансные и квазирезонансные переходы в средах. Это происходит за счет "интерференции" электрической площади и площади огибающей импульса.

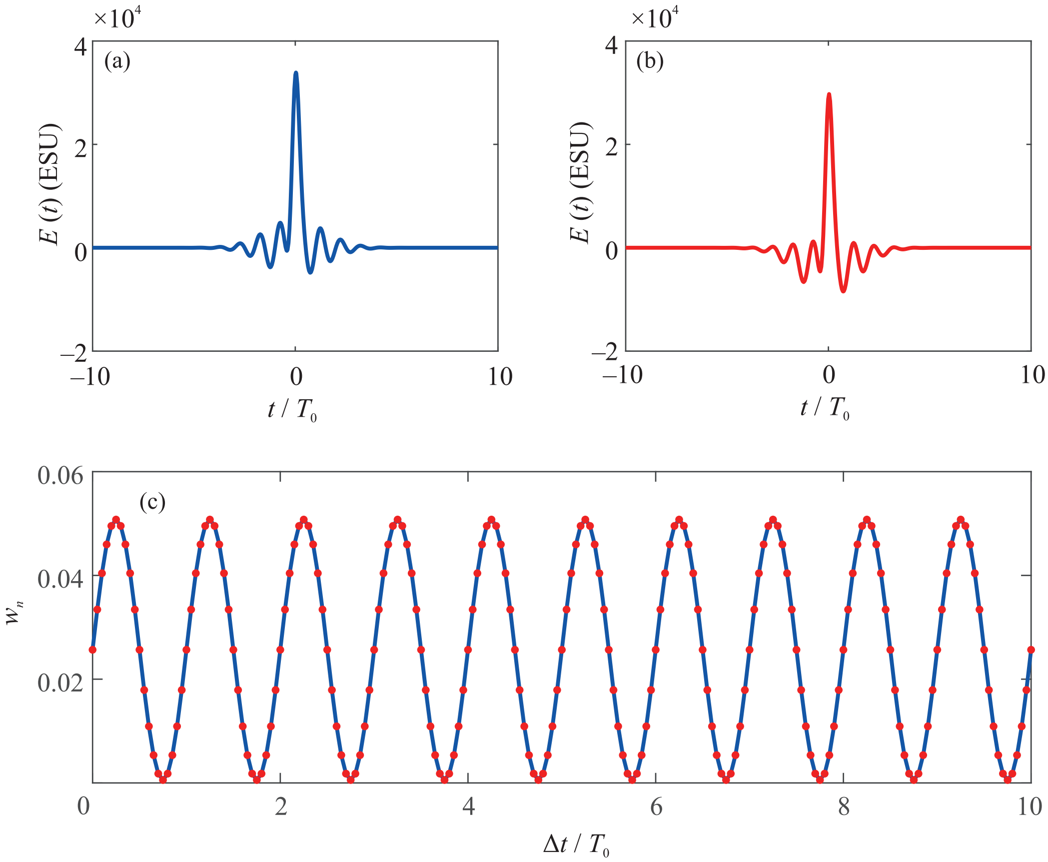

Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Импульс с ненулевой электрической площадью; (b) – импульс с нулевой электрической площадью; (c) – результаты воздействия излучения импульсов с ненулевой (синяя линия) и нулевой электрической площадью (красные точки) в зависимости от задержки Δt в случае точного резонанса $\Omega = \omega_{12}$

Возникновение указанного эффекта "интерференции" возможно в экспериментах, подобных проведенным в упомянутой работе [4]. Получающиеся короткие однополярные всплески поля расположены на подставке, содержащей квазигармонические осцилляции. Если между подставкой и всплеском будут возникать неконтролируемые задержки, то возбуждение переходов, частоты которых близки с частотами осцилляций подставки, будет зависеть от задержки и может пропасть, а возбуждение нерезонансных переходов останется.

Заключение. Таким образом, при нерезонансном возбуждении системы полупериодными импульсами их воздействие определяется электрической площадью импульса и сильно зависит от CEP. А в случае гладких импульсов, содержащих несколько циклов колебаний, возбуждение системы не зависит от CEP и определяется площадью огибающей импульса.

В промежуточной ситуации воздействие определяют как электрическая площадь, так и площадь огибающей.

Если возникают ситуации, когда в многоцикловом квазирезонансном излучении присутствуют короткие интенсивные всплески, то возбуждение описывается выражением, пропорциональным сумме квадратов электрической площади этих всплесков и квадрата площади огибающей. При этом положение всплеска поля в гладком импульсе может как усиливать, так и ослаблять воздействие на изменение населенности состояний квантовой системы. Возникает своеобразная интерференция между воздействием площадей огибающей и электрической площади импульса.

Последнее обстоятельство может влиять на интерпретацию экспериментов по воздействию многоциклового излучения, содержащего интенсивные короткие всплески, и приводить к плохой воспроизводимости их результатов, если положение всплеска меняется относительно многоцикловой части импульса.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 21-72-10028.

1. F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009).
2. F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, and M. Nisoli, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **49**, 062001 (2016).
3. J. Biegert, F. Calegari, N. Dudovich, F. Quéré, and M. Vrakking, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **54**, 070201 (2021).
4. M. T. 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).
5. H.-C. Wu and J. Meyer-ter-Vehn, Nature Photon. **6**, 304 (2012).
6. J. Xu, B. Shen, X. Zhang, Y. Shi, L. Ji, L. Zhang, T. Xu, W. Wang, X. Zhao, and Z. Xu, Sci. Rep. **8**, 2669 (2018).
7. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, Н. Н. Розанов, Квантовая электроника **50**, 801 (2020) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, and N. N. Rosanov, Quantum Electron. **50**, 801 (2020)].
8. С. В. Сазонов, Письма в ЖЭТФ **114**, 160 (2021).
9. Н. Н. Розанов, Оптика и спектроскопия **107**, 761 (2009) [N. N. Rosanov, Optics and Spectroscopy **107**, 721 (2009)].
10. Н. Н. Розанов, Р. М. Архипов, М. В. Архипов, УФН **188**, 1347 (2018) [N. N. Rosanov, R. M. Arkhipov, and M. V. Arkhipov, Phys.-Uspekhi **61**, 1227 (2018)].
11. Н. Н. Розанов, Оптика и спектроскопия **124**, 75 (2018) [N. N. Rosanov, Optics and Spectroscopy **124**, 72 (2018)].
12. R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N. N. Rosanov, Opt. Lett. **44**, 1202 (2019).
13. R. Arkhipov, A. Pakhomov, M. Arkhipov, A. Demircan, U. Morgner, and N. Rosanov, Opt. Express **28**, 17020 (2020).
14. R. Arkhipov, A. Pakhomov, M. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N. Rosanov, Sci. Rep. **11**, 1961 (2021).
15. Р. М. Архипов, Письма в ЖЭТФ **113**, 636 (2021) [R. M. Arkhipov, JETP Lett. **113**, 611 (2021)].
16. Н. Н. Розанов, Н. В. Высотина, ЖЭТФ **157**, 63 (2020) [N. N. Rosanov and N. V. Vysotina, JETP **130**, 52 (2020)].
17. I. A. Aleksandrov, D. A. Tumakov, A. Kudlis, V. M. Shabaev, and N. N. Rosanov, Phys. Rev. A **102**, 0231020 (2020).
18. Н. Н. Розанов, Письма в ЖЭТФ **113**, 157 (2021) [N. N. Rosanov, JETP Lett. **113**, 145 (2021)].
19. А. М. Желтиков, УФН **187**, 1169 (2017) [A. M. Zheltikov, Phys.-Uspekhi **60**, 1087 (2017)].
20. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, Н. Н. Розанов, Письма в ЖЭТФ **114**, 156 (2021) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, A. V. Pakhomov, and N. N. Rosanov, JETP Lett. **114**, 1 (2021)].
21. S. L. McCall and E. L. Hahn, Phys. Rev. **183**(2), 457 (1969).