

НЕЛИНЕЙНЫЙ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫЙ ОТКЛИК ГАЗОВОЙ СРЕДЫ В РЕЖИМЕ СТАБИЛИЗАЦИИ АТОМОВ В СИЛЬНОМ ПОЛЕ ИЗЛУЧЕНИЯ

Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова*

*Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119234, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 сентября 2012 г.

Методом прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера исследуется нелинейный поляризационный отклик квантовой системы, моделирующей атом серебра, в поле высокоинтенсивного излучения ИК- и УФ-диапазонов частот. Определены области применимости теории возмущений и разложения поляризации по степеням поля. Анализируется вклад возбужденных атомов и электронов в континууме в величину отклика на частоте воздействующего поля, возникающий как результат процессов возбуждения и фотоионизации. Рассматриваются особенности нелинейного отклика на внешнее поле в условиях реализации режима стабилизации атома.

DOI: 10.7868/S0044451013030036

1. ВВЕДЕНИЕ

Определение величины поляризационного отклика среды на воздействие внешнего высокоинтенсивного электромагнитного поля является одной из важнейших задач современной нелинейной оптики и атомной физики. Например, для описания явления самофокусировки электромагнитного излучения необходимо вычислять величину отклика на частоте воздействующего поля, процесс генерации гармоник воздействующего излучения определяется величиной отклика на частотах, кратных частоте воздействующего излучения.

Создание лазерных источников более полувека назад и реализация режима модуляции добротности позволили получить интенсивности 10^{10} – 10^{12} Вт/см² в оптическом диапазоне частот и наблюдать упомянутые выше нелинейные эффекты [1, 2]. Существенно отметить, что напряженность электрического поля в электромагнитной волне с интенсивностью 10^{10} – 10^{12} Вт/см² на два-три порядка меньше внутриатомного значения E_{at} ($E/E_{at} \ll 1$, E — напряженность электрического поля в волне). Поэтому при теоретическом анализе

атомного отклика на внешнее воздействие оказывается возможным использовать разложение отклика по степеням поля [3], основанное на квантовой механической теории возмущений. При этом в первом порядке теории возмущений возникает линейное по полю слагаемое, описывающее задачи линейной оптики, во втором — квадратичное, в третьем — кубическое и т. д. Например, для описания эффекта самофокусировки излучения необходимо учитывать нелинейные восприимчивости всех нечетных порядков (кроме первого) 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 пятого и более высоких нечетных порядков. Другими словами, в рамках описанного подхода атомный отклик на частоте поля можно представить в виде ряда

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

где $\chi^{(1)}(\omega)$ — линейная, а $\chi^{(3)}(\omega)$ — кубическая нелинейная восприимчивость среды на частоте поля. Аналогично, при анализе генерации третьей гармоники для отклика на утроенной частоте поля имеем

*E-mail: alexander.m.popov@gmail.com

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

Здесь $\chi^{(3)}(3\omega)$, $\chi^{(5)}(3\omega)$ — соответственно кубическая восприимчивость и восприимчивость пятого порядка на частоте третьей гармоники излучения. В предположении, что в начальный момент времени атом находился в основном состоянии $|g\rangle$, квантово-механические расчеты восприимчивостей дают

$$\chi_g^{(1)}(\omega) = \sum_n |d_{ng}|^2 \frac{2\omega_{ng}}{\omega_{ng}^2 - \omega^2},$$

$$\chi_g^{(3)}(\omega) \sim \sum_{n,m,k} \frac{d_{ng}d_{nk}d_{km}d_{mg}}{(\omega_{mg} - \omega)(\omega_{kg} - 2\omega)(\omega_{ng} - \omega)} + \sum_{n,m,k} \frac{d_{ng}d_{nk}d_{km}d_{mg}}{(\omega_{mg} - \omega)\omega_{kg}(\omega_{ng} - \omega)},$$

$$\chi_g^{(3)}(3\omega) \sim \sum_{n,m,k} \frac{d_{ng}d_{nk}d_{km}d_{mg}}{(\omega_{mg} - \omega)(\omega_{kg} - 2\omega)(\omega_{ng} - 3\omega)},$$

где ω_{nk} — частота перехода, d_{nk} — матричный элемент дипольного оператора, связывающий n -е и k -е стационарные состояния атома, а при выполнении суммирования предполагается в том числе и интегрирование по непрерывному спектру квантовой системы.

Появление мощных тераваттных лазеров, позволяющих получать импульсы, напряженность электрического поля волны в которых сопоставима с внутриатомными значениями и даже превышает их, а длительность составляет несколько десятков фемтосекунд, делает актуальным исследование нелинейных процессов в этом новом диапазоне параметров лазерного излучения. В таких условиях квантовомеханическая теория возмущений для описания атомной динамики в поле лазерного импульса оказывается неприменимой, а следовательно, разложение по степеням поля для вычисления атомных восприимчивостей — некорректным. С другой стороны, в импульсах длительностью несколько десятков фемтосекунд столкновения в газе между частицами практически полностью отсутствуют. Это означает, что поляризационный отклик среды может быть рассчитан на основе изучения динамики в поле высокоинтенсивного ультракороткого импульса одного из атомов, образующих газовую среду. Такая задача в настоящее время может быть решена численно из первых принципов на основе интегрирования нестационарного уравнения Шредингера, описывающего эволюцию атома (молекулы) в поле электромагнитной волны [4].

Актуальность такого подхода в настоящее время исключительно велика. Например, в работах [5–7] было высказано предположение, что в процессе самофокусировки и филаментации излучения наряду с образованием плазмы могут играть важную роль керровские нелинейности высших порядков (НОКЕ — High Order Kerr Effect), дающие отрицательный вклад в показатель преломления. Действительно, в такой ситуации при определенных условиях ограничение пространственного размера, в который сжимается лазерный пучок при филаментации излучения, теоретически может проходить даже в отсутствие ионизации. Подтверждением справедливости этих слов являются недавние экспериментальные работы [8, 9], в которых сделана попытка объяснить процесс филаментации лазерного излучения в области интенсивностей в несколько десятков ТВт/см² преобладающим вкладом в отклик нелинейностей высших порядков при отсутствии образования плазмы. За последние два года был опубликован целый ряд работ (см., например, [10–13]) как поддерживающих новую точку зрения на роль НОКЕ в процессе филаментации лазерного излучения, так и отвергающих ее (см. [14–22]). Не вдаваясь в подробности дискуссии между двумя группами авторов, выступающих «за» и «против» НОКЕ, следует признать, что в настоящее время убедительных экспериментальных данных в пользу той или иной точки зрения не существует. Убедительный ответ на вопрос о вкладе НОКЕ в величину поляризационного отклика атома в ультракоротких лазерных импульсах был получен в работе [4]. В этой работе на примере расчета поляризационного отклика атомов серебра в поле излучения титан-сапфирового лазера было показано, что именно ионизация атомов и образование электронов в континууме отвечают за насыщение и смену знака поляризационного отклика, приводящего к филаментации излучения, при этом керровскими нелинейностями высших порядков можно пренебречь.

Однако важно иметь в виду следующее обстоятельство. Само понятие атомной восприимчивости n -го порядка вводится в рамках квантовомеханической теории возмущений в предположении, что амплитуды заселения всех состояний (и дискретного спектра, и континуума) малы по сравнению с амплитудой заселения начального (как правило, основного) состояния. Поэтому в достаточно сильных полях, когда волновая функция может быть представлена в виде когерентной суперпозиции большого числа стационарных атомных состояний дискретного спектра и континуума с сопоставимыми значениями ам-

плитуд, описание отклика системы в терминах восприимчивостей различных порядков, вообще говоря, невозможно. В этом смысле попытка использовать восприимчивости высших порядков для описания явления насыщения поляризационного отклика и филаментации излучения представляется некорректной.

Следует отметить также и другое обстоятельство. В сильных лазерных полях в непертурбативном режиме ионизации в течение лазерного воздействия говорить о заселении конкретных атомных состояний можно достаточно условно, в предположении о конкретном базисе атомных состояний дискретного и непрерывного спектров. При этом использовать базис состояний свободного атома, вообще говоря, некорректно, поскольку в сильном поле излучения происходит существенная перестройка атомных состояний и формирование атома, «одетого» полем. Например, при определенных условиях такими состояниями «одетого» атома, являются состояния атома Крамерса–Хеннебергера (КХ) [23, 24]. При этом состояния дискретного спектра в потенциале КХ могут соответствовать состояниям континуума в базисе состояний свободного атома и, наоборот, состояниям континуума КХ потенциала могут соответствовать состояниям дискретного спектра свободного атома. Поэтому вычисление вклада различных атомных состояний и, в том числе состояний континуума в величину отклика, возможно лишь в рамках конкретной модели, описывающей структуру спектра «одетого» атома и временную динамику населенностей перестроенных в поле состояний.

В данной работе метод прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера для атомной системы, находящейся в поле излучения ИК- или УФ-диапазонов частот, используется для нахождения поляризационного отклика и нелинейных атомных восприимчивостей на частоте воздействующего поля и частоте третьей гармоники. Особое внимание уделяется случаю сильных полей, когда интенсивность излучения близка к порогу стабилизации или превышает его. Проанализирован вклад различных атомных состояний дискретного и непрерывного спектров в величину восприимчивостей в зависимости от частоты излучения.

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

В данной работе численные расчеты проводились для одноэлектронных атомов с потенциалом

ионизации $I = 7.58$ эВ, что соответствует потенциалу ионизации атома серебра. Одноэлектронная модель атома серебра подробно обсуждается в работе [25].

Эволюция атома во внешнем электромагнитном поле анализировалась на основе численного решения нестационарного уравнения Шредингера (в атомных единицах):

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

Здесь $V(r)$ — одноэлектронный потенциал исследуемого атома, $V_{int}(\mathbf{r}, t)$ — энергия взаимодействия с полем электромагнитной волны. Поле электромагнитной волны полагалось линейно поляризованным, а его взаимодействие с атомом рассматривалось в дипольном приближении:

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

где $E(t)$ — напряженность электрического поля волны, а θ — угол между радиус-вектором электрона \mathbf{r} и вектором $\mathbf{E}(t)$, направленным вдоль оси z . Предполагалось, что в начальный момент атом находится в основном состоянии $|g\rangle$. Лазерный импульс характеризовался сглаженной трапецеидальной формой с длительностями фронтов t_f и плато t_p . При этом электрическое поле задавалось через векторный потенциал:

$$E(t) = -\frac{1}{c} \frac{dA}{dt},$$

$$A(t) = A_0(t) \sin \omega t,$$

где огибающая $A_0(t)$ выбиралась как

$$A_0(t) = \begin{cases} A_0 \sin^2 \frac{\pi t}{2t_f}, & t \leq t_f, \\ A_0, & t_f \leq t \leq t_f + t_p, \\ A_0 \cos^2 \frac{\pi [t - (t_f + t_p)]}{2t_f}, & t_f + t_p \leq t \leq 2t_f + t_p. \end{cases} \quad (5)$$

Амплитудное значение векторного потенциала связано с интенсивностью излучения на «плато» импульса соотношением $P = \omega^2 A_0^2 / 8\pi c$.

При расчетах энергия кванта выбиралась равной $\hbar\omega = 1.5$ эВ (ИК-излучение) и $\hbar\omega = 9$ эВ (УФ-излучение). В последнем случае все состояния дискретного спектра атома связаны с континуумом однофотонными переходами, в то время как для

ИК-излучения ионизация основного состояния атома возможна лишь в многофотонном режиме. Использовались две различные формы лазерного импульса: для ИК-излучения параметры t_f и t_p составляли $t_f = 2T$ и $t_p = 10T$ ($T = 2\pi/\omega$ — период оптических колебаний), в случае УФ-импульса полагалось, что $t_f = 5T$ и $t_p = 10T$.

Методика численного интегрирования уравнения (3) подробно обсуждается в работе [26].

Поскольку в процессе лазерного воздействия рассматриваемая нами квантовая система характеризуется аксиальной симметрией, наведенный атомный дипольный момент направлен вдоль вектора электрического поля волны и может быть вычислен по волновой функции системы, полученной в результате интегрирования уравнения (3):

$$\langle d_z(t) \rangle = - \int r \cos \theta |\psi(\mathbf{r}, t)|^2 d^3r. \quad (6)$$

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

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

$$d_\Omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int \langle d_z(t) \rangle \exp(-i\Omega t) dt, \quad (8)$$

позволяет определить спектральный состав поляриционного отклика $d_\Omega(E_\Omega)$, вычислить из первых принципов нелинейные восприимчивости на различных частотах, найти область применимости расчета отклика методом разложения по степеням поля, а также проанализировать вклад различных состояний дискретного спектра и континуума в области сильных полей, когда разложение отклика по степеням поля заведомо несправедливо.

На практике часто оказывается удобнее провести соответствующие вычисления для ускорения $\langle a_z(t) \rangle$ с использованием теоремы Эренфеста

$$\langle a_z(t) \rangle = -E(t) - \left\langle \frac{\partial V}{\partial z} \right\rangle, \quad (9)$$

заметив, что фурье-образы дипольного момента d_Ω и ускорения a_Ω связаны соотношением $d_\Omega = a_\Omega/\Omega^2$.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Остановимся, прежде всего, на анализе расчетов нелинейной восприимчивости атомов серебра для излучения с энергией кванта $\hbar\omega = 1.5$ эВ, примерно соответствующей излучению титан-сапфирового лазера. С этой целью по волновой функции системы

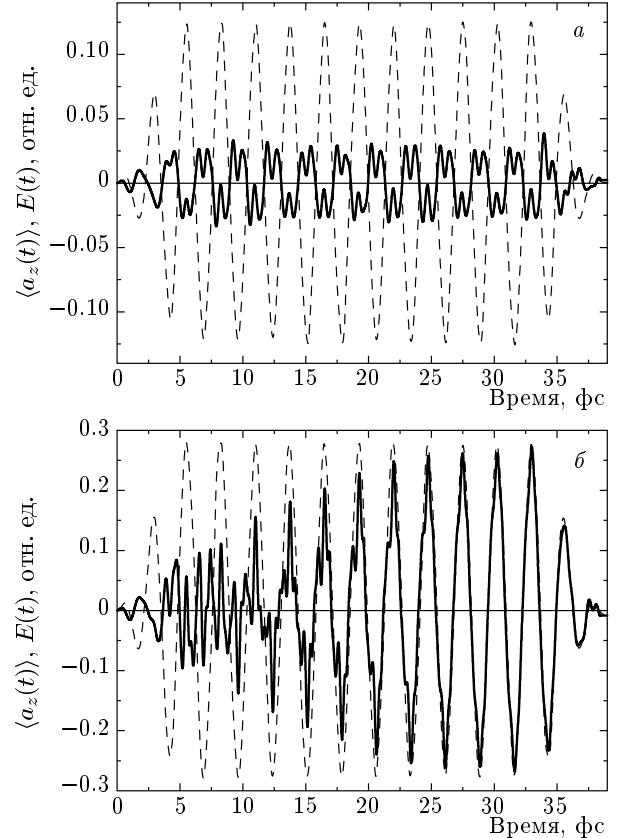


Рис. 1. Зависимости от времени средней по квантовому состоянию величины $\langle a_z \rangle$ (сплошные кривые) для излучения с $\hbar\omega = 1.5$ эВ и интенсивностью $3 \cdot 10^{12}$ (а), $1.5 \cdot 10^{13}$ (б) Вт/см². Штриховые кривые — напряженность электрического поля в зависимости от времени

$\psi(\mathbf{r}, t)$, полученной путем численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера (3), с использованием (6) и (9) для различных значений лазерной интенсивности были рассчитаны функции $\langle a_z(t) \rangle$. Типичные результаты расчетов этих функций для двух различных значений интенсивности излучения приведены на рис. 1. Отметим, что в случае интенсивности $3 \cdot 10^{12}$ Вт/см² фактически реализуется режим теории возмущений, вероятности ионизации и возбуждения малы (их расчетные значения к концу импульса составляют соответственно 0.003 и 0.00175), а атом преимущественно находится в основном состоянии. Другая ситуация реализуется для интенсивности $1.5 \cdot 10^{13}$ Вт/см². В этом случае вероятность ионизации в процессе лазерного воздействия увеличивается до 0.90, в результате чего амплитуда ускорения $\langle a_z \rangle$ возрастает во времени, а использование теории возмущений для расчета поляриционного отклика оказывается невозможным.

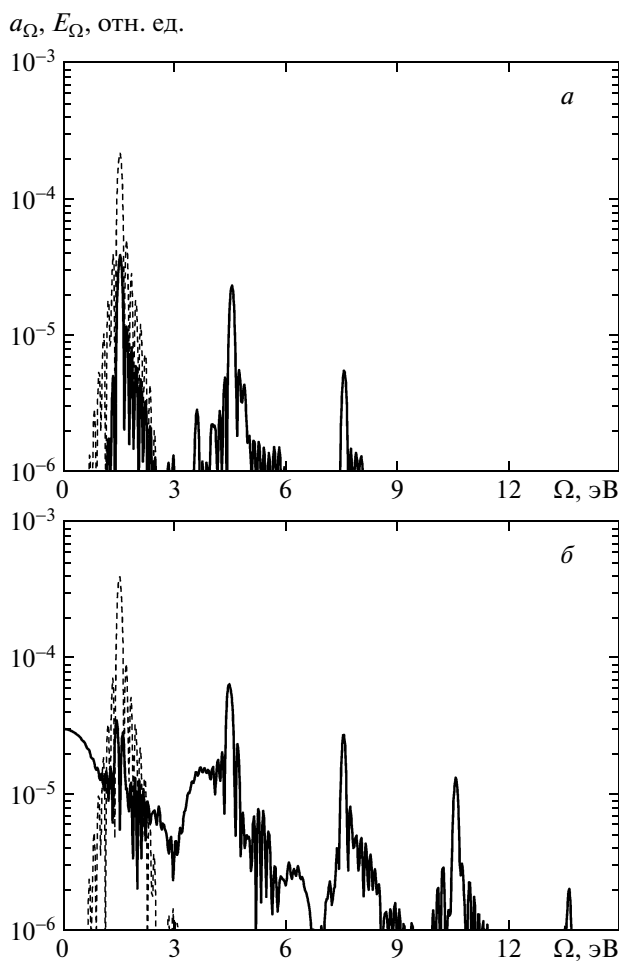


Рис. 2. Спектральные разложения ускорения электрона $\langle a_z(t) \rangle$ (сплошные кривые) в лазерных импульсах интенсивностью $3 \cdot 10^{12}$ (а), $1.5 \cdot 10^{13}$ (б) Вт/см². Пунктирные кривые — спектральный состав лазерного импульса

Зависимости $\langle a_z(t) \rangle$ затем раскладывались в интеграл Фурье. Полученные спектральные разложения для тех же значений интенсивности излучения приведены на рис. 2. Эти разложения характеризуются ярко выраженными максимумами на частотах, соответствующих нечетным гармоникам частоты лазерного импульса $\Omega_{2n+1} = (2n + 1)\omega$, $n = 0, 1, 2, \dots$, что позволяет из первых принципов вычислить поляризационные отклики на частотах Ω_{2n+1} с учетом процессов ионизации и возбуждения различных атомных состояний, а также определить условия, при выполнении которых нелинейные восприимчивости можно вычислять в рамках квантовомеханической теории возмущений.

Рассчитанные зависимости поляризационного от-

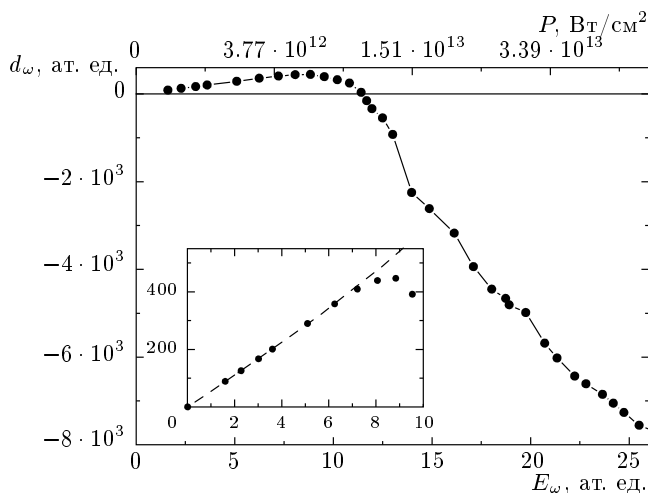


Рис. 3. Зависимость поляризационного отклика на частоте поля от спектрального значения напряженности электрического поля волны (или от интенсивности излучения) для атомов серебра. На вставке приведена та же зависимость в области слабых полей, позволяющая определить область применимости разложения поляризации по степеням поля. Штриховой линией обозначена зависимость (1), учитывающая линейное и кубическое по полю слагаемые

клика на частоте лазерного поля d_{ω} от спектрального значения напряженности электрического поля волны E_{ω} (или интенсивности излучения) приведены на рис. 3. В относительно слабых полях, когда в процессе лазерного воздействия атом преимущественно остается в основном состоянии, полученные зависимости действительно описываются выражением вида (1), учитывающим линейное по полю и кубическое слагаемые, причем $\chi^{(1)}(\omega) \approx 56$ ат. ед., $\chi^{(3)}(\omega) \approx 0.06$ ат. ед. Как и следовало ожидать, полученное значение $\chi^{(1)}(\omega)$ близко к статическому значению поляризуемости основного состояния атома серебра, равному 66 ат. ед. Однако при повышении интенсивности выше значения $5 \cdot 10^{12}$ Вт/см² наблюдается замедление роста поляризационного отклика, затем его уменьшение, а при дальнейшем увеличении интенсивности его величина меняет знак и становится отрицательной. Фактически это означает, что с увеличением интенсивности излучения фокусирующие свойства среды меняются на дефокусирующие, что на практике приводит к филаментации излучения.

Для детального анализа вклада различных процессов в величину нелинейной атомной восприимчивости $\chi(\omega, E_{\omega})$, представленной на рис. 4 (кривая 1),

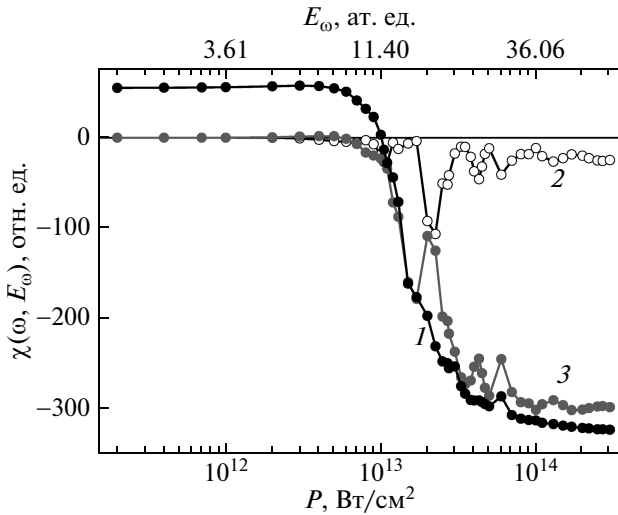


Рис. 4. Зависимости восприимчивости модельных атомов серебра $\chi(\omega, E_\omega) = d_\omega(E_\omega)/E_\omega$ на частоте поля (1), вкладов в нее, вносимых ридберговскими атомами (2), электронами в континууме и низколежащими возбужденными атомными состояниями (3), от спектрального значения напряженности электрического поля волны (или интенсивности излучения)

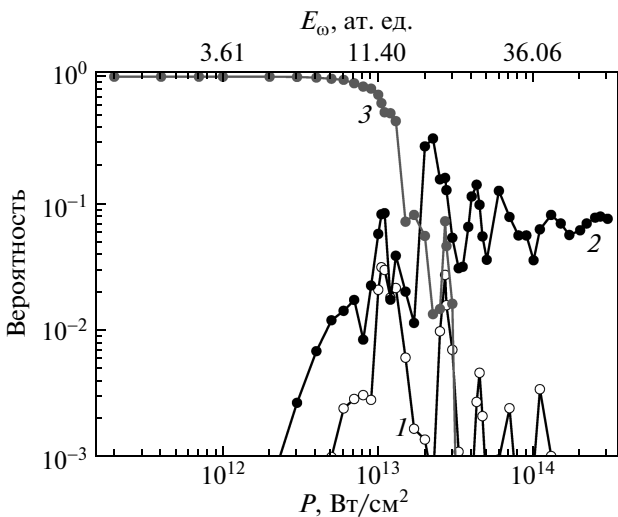


Рис. 5. Зависимости вероятности возбуждения низколежащих (1) и ридберговских (2) состояний атома серебра от спектрального значения напряженности электрического поля волны (или интенсивности излучения). Кривая 3 соответствует вероятности обнаружить атом в основном состоянии

более подробно остановимся на результатах расчетов вероятностей возбуждения различных атомных состояний и вероятности ионизации в зависимости от интенсивности излучения (см. рис. 5). Как видно из представленных данных, в условиях наших расчетов в области интенсивностей, больших или равных 10^{13} Вт/см², возникает режим стабилизации атома, приводящий к тому, что значительная часть остаточной населенности связанных состояний устойчиво удерживается в высоковозбужденных ридберговских состояниях вблизи границы континуума. Детальный анализ причин возникновения стабилизации системы проведен в работе [25]. В частности, было показано, что в области интенсивностей меньших 10^{14} Вт/см² реализуется интерференционный механизм стабилизации [23], причем заселение высоковозбужденных (ридберговских) состояний обусловлено возникновением многофотонного резонанса между начальным (основным) состоянием и группой ридберговских состояний вблизи границы континуума. При сверхатомных значениях напряженности электрического поля волны ($P > 10^{14}$ Вт/см²) происходит существенная перестройка атомного потенциала и формирование «одетого» атома в форме атома КХ, причем удержание населенности происходит в возбужденных состояниях атома КХ, формируемых на переднем фронте лазерного импульса.

Для последующих рассуждений важно, что заселение возбужденных состояний происходит на переднем фронте импульса генерации и в дальнейшем удерживается на примерно постоянном уровне (см. [25], рис. 10) в течение лазерного импульса. Для состояний, энергия связи которых ε_i много меньше энергии кванта, т. е. $\varepsilon_i \ll \omega$, поляризуемость определяется выражением $\chi(\omega) = -1/\omega^2$ [27], что совпадает с поляризуемостью свободных электронов. Поэтому вклад в атомный отклик возбужденных (ридберговских) состояний, связанных с континуумом однофотонными переходами, может быть оценен как $d_\omega^{(Rydb)} = -w^{(Rydb)} E_\omega / \omega^2$, где $w^{(Rydb)}$ — вероятность возбуждения ридберговских состояний атома (см. рис. 4, кривая 2).

Учтем теперь вклад в восприимчивость нейтральных атомов, находящихся в основном состоянии. Отметим прежде всего, что в области значений интенсивности излучения, превышающих 10^{13} Вт/см², концентрация невозбужденных атомов мала и не дает существенного вклада в суммарную величину восприимчивости. С другой стороны, при указанном значении интенсивности 10^{13} Вт/см² кубический член в выражении для атомного отклика (1) составляет порядка 10% от вклада линейного

слагаемого, а следовательно, вклад более высоких членов разложения (НОКЕ) при данной интенсивности пренебрежимо мал. Поэтому в области интенсивностей излучения, меньших 10^{13} Вт/см², соответствующей режиму теории возмущений, вклад атомов, находящихся в основном состоянии, в суммарную величину восприимчивости можно рассчитать, используя разложение по степеням поля с учетом лишь линейной $\chi_g^{(1)}(\omega)$ и кубической $\chi_g^{(3)}(\omega)$ восприимчивостей, т. е.

$$\chi_g(\omega, E_\omega) = w_g \left(\chi_g^{(1)}(\omega) + \chi_g^{(3)}(\omega) E_\omega^2 \right),$$

где w_g — вероятность обнаружить атом в основном состоянии. При этом в сильных полях ($P > 10^{13}$ Вт/см²) концентрация атомов, находящихся в основном состоянии, и их вклад в восприимчивость пренебрежимо малы.

Наличие низколежащих¹⁾ возбужденных состояний атома серебра приводит к возможности их эффективного заселения в результате процессов трех- и четырехфотонного поглощения при совпадении разности энергий основного и возбужденного состояний (с учетом их штарковского сдвига) с энергией целого числа квантов поля. Как видно из данных, представленных на рис. 5, практически во всем диапазоне интенсивностей излучения вероятность возбуждения (высоких) ридберговских состояний доминирует по сравнению с вероятностью возбуждения низколежащих состояний. Возбуждение низколежащих атомных состояний происходит лишь в узком диапазоне интенсивностей вблизи 10^{13} Вт/см² и $2.7 \cdot 10^{13}$ Вт/см², что обусловлено возникновением трех- и четырехфотонных резонансов в возбуждении нижних p - или s - и d -состояний. Именно необходимость учета вклада низколежащих возбужденных атомных состояний, вообще говоря, представляет собой дополнительную проблему при анализе вклада различных процессов в величину поляризационного отклика. Действительно, вблизи резонанса восприимчивость этих состояний может быть как положительной, так и отрицательной, причем величина восприимчивости возбужденного атома может быть существенно больше, чем у атома, находящегося в основном состоянии.

Вычитая из полной атомной восприимчивости, полученной в численных расчетах, вклад в восприимчивость, вносимый ридберговскими атомами

¹⁾ Под низколежащими возбужденными состояниями в данном случае понимаются состояния, связанные с континуумом неоднотонными переходами.

($\chi^{(Rydb)}(\omega) = -w^{(Rydb)}/\omega^2$), а также вклад основного атомного состояния ($\chi_g(\omega, E_\omega)$), получаем величину восприимчивости, создаваемую суммарно электронами в континууме и низколежащими возбужденными атомными состояниями. Полученная зависимость $\tilde{\chi}(\omega, E_\omega)$, имеющая вид

$$\tilde{\chi}(\omega, E_\omega) = \chi(\omega, E_\omega) + w^{(Rydb)}(E_\omega)/\omega^2 - w_g(E_\omega)\chi_g(\omega, E_\omega), \quad (10)$$

также представлена на рис. 4 (кривая 3).

В условиях наших расчетов, однако, вклад низколежащих возбужденных состояний является малым при любых значениях интенсивности излучения. Этот вывод следует из того факта, что в области интенсивностей, соответствующих пикам резонансного заселения низколежащих состояний, никаких особенностей на кривой $\tilde{\chi}(\omega, E_\omega)$ не наблюдается. В то же время положения максимумов и минимумов на зависимости $\tilde{\chi}(\omega, E_\omega)$ в точности совпадают с положениями максимумов и минимумов на кривой, описывающей вероятность ионизации. Можно утверждать, что в рассматриваемых условиях вклад низколежащих возбужденных состояний в величину восприимчивости является несущественным, а величина $\tilde{\chi}(\omega, E_\omega)$ фактически описывает вклад электронной компоненты плазмы. Поэтому для атомов серебра насыщение отклика и смена его знака, безусловно, связаны с процессом фотоионизации и стабилизацией высоковозбужденных атомных состояний. При этом, какой из механизмов удержания атомов в высоковозбужденных состояниях (интерференционная стабилизация или стабилизация КХ) реализуется в конкретной физической ситуации, не имеет существенного значения. Важно, что находясь в высоковозбужденном состоянии, нейтральные атомы дают вклад в восприимчивость как континуум.

Перейдем теперь к анализу атомного отклика для излучения УФ-диапазона частот ($\hbar\omega = 9.0$ эВ, $\tau_f = 5T$, $\tau_p = 10T$), когда основное и все возбужденные состояния атома связаны с континуумом одноквантовыми переходами. Для этого случая вероятность ионизации как функция интенсивности излучения $w_i(P)$ представлена на рис. 6а, а возбуждением состояний дискретного спектра практически можно пренебречь. Существенной особенностью полученной зависимости также является наличие диапазона интенсивностей излучения ($P > P^* \approx 4 \cdot 10^{15}$ Вт/см²), соответствующих режиму стабилизации квантовой системы относительно процесса ионизации. В этом случае явление стабилизации

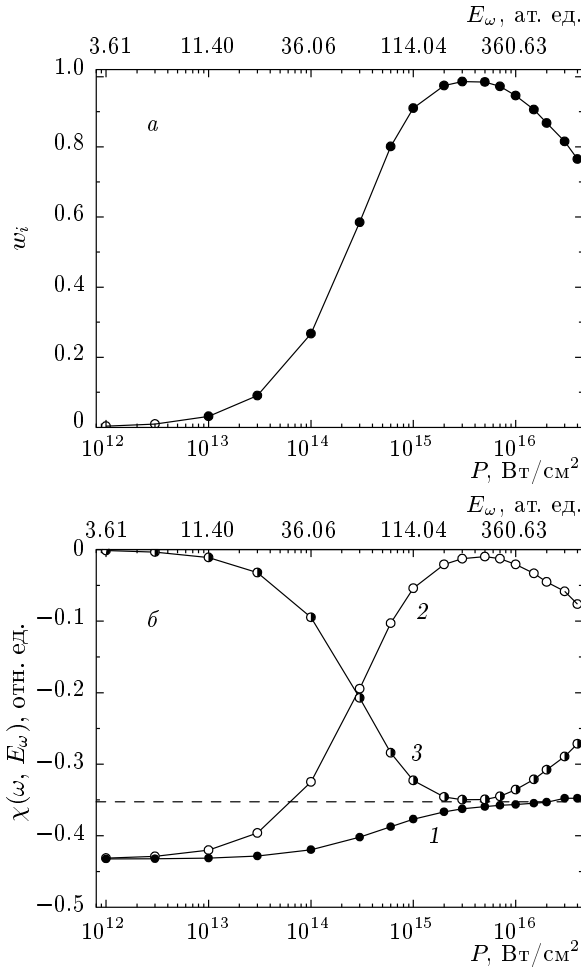


Рис. 6. Зависимости от интенсивности излучения вероятности ионизации (а) и восприимчивости (б) на частоте поля (1), вклада в нее, вносимого нейтральными атомами (2) и электронами в континууме (3) для излучения УФ-диапазона частот с энергией кванта $\hbar\omega = 9.0$ эВ. Штриховой линией обозначен уровень, определяемый восприимчивостью свободных электронов

может быть понято в рамках формализма КХ [24], а порог режима определен из условия $E/\omega^2 > a$ ($a = 3-4$ — характерный размер атома серебра). При этом до 20% населенности оказывается в связанном основном состоянии. Результаты расчета суммарной атомной восприимчивости $\chi(\omega, E_\omega)$, а также вклада в нее нейтральных атомов и свободных электронов для рассматриваемого случая представлены на рис. 6б. Существенной особенностью рассчитанной зависимости $\chi(\omega, E_\omega)$ является то, что величина атомной восприимчивости является отрицательной даже в слабых полях, причем ее абсолютное значение оказывается даже больше, чем восприимчивость

свободного электрона. Действительно, в случае одnofотонной связи основного состояния с континуумом величина линейной атомной восприимчивости $\chi_g^{(1)}(\omega)$ может быть записана в виде

$$\chi_g^{(1)}(\omega) \approx \int |d_{\varepsilon g}|^2 \frac{2(\varepsilon - \varepsilon_g)}{(\varepsilon - \varepsilon_g)^2 - \omega^2} d\varepsilon, \quad (11)$$

где $\varepsilon_g < 0$ — энергия основного состояния атома, ε — энергия электрона в континууме. Нетрудно увидеть, что основной вклад в искомую величину дает узкий диапазон энергий вблизи $\varepsilon = \varepsilon^* = \omega - |\varepsilon_g|$. Поскольку для случая кулоновского спектра квадрат модуля матричного элемента дипольного оператора $|d_{\varepsilon g}|^2$ является монотонно убывающей функцией энергии, значение интеграла в (11) оказывается отрицательным, т. е. $\chi_g^{(1)}(\omega) < 0$. Подробный анализ величины восприимчивости (11) для случая водородоподобной системы приведен в работе [28]. В частности, в интересующем нас случае начального s -состояния в высокочастотном пределе $\omega \gg |\varepsilon_g|$ из (11) можно получить

$$\chi_g^{(1)} = -\frac{1}{\omega^2} - \frac{4}{3n^3\omega^4} + \dots, \quad (12)$$

где n — главное квантовое число начального состояния. Здесь первое слагаемое оказывается равным восприимчивости свободного электрона, а второе описывает добавку, также отрицательную по величине и быстро уменьшающуюся по абсолютной величине с возрастанием частоты излучения и номера главного квантового числа начального состояния.

В связи со сказанным выше в рассматриваемом случае образование свободных электронов в результате процесса ионизации атомов должно приводить к увеличению восприимчивости с ростом интенсивности излучения, что и наблюдается в наших расчетах (см. рис. 6). При этом в области стабилизации атома ($P > P^* \approx 4 \cdot 10^{15}$ Вт/см^2), когда вероятность ионизации убывает с ростом интенсивности излучения, величина восприимчивости продолжает возрастать, приближаясь к значению, соответствующему восприимчивости свободных электронов. Это означает, что восприимчивость нейтральных атомов при интенсивностях излучения, существенно превышающих порог стабилизации, практически совпадает с восприимчивостью свободных электронов. Понять такое поведение атомной восприимчивости можно в рамках формализма КХ. Действительно, в области интенсивностей $P > P^*$ потенциал «одетого» атома (атома КХ) приобретает характерную дихотомическую структуру, размер которой определяется амплитудой колебаний свободного электрона в по-

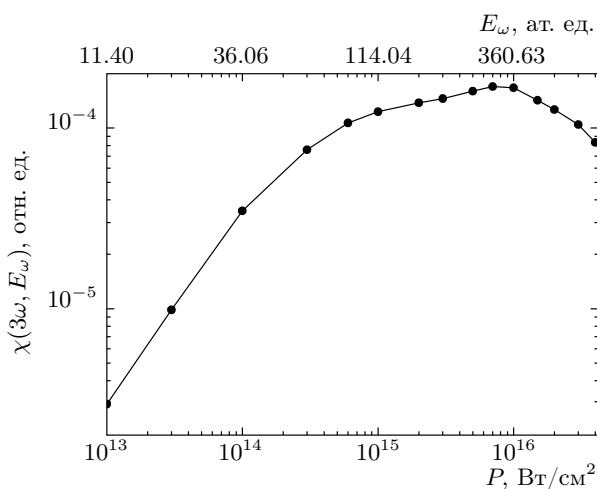


Рис. 7. Зависимость восприимчивости атомов серебра $\chi(3\omega, E_\omega) = d_{3\omega}(E_\omega)/E_\omega$ на частоте третьей гармоники воздействующего поля от интенсивности излучения (спектрального значения напряженности электрического поля волны) для излучения с $\hbar\omega = 9.0$ эВ

ле электромагнитной волны $a_e = E/\omega^2$. Пространственный размер этой структуры возрастает с увеличением интенсивности излучения, что приводит к убыванию потенциала ионизации «одетого» атома, который становится существенно меньше энергии кванта излучения. В результате колебания атомного электрона оказываются квазисвободными. Поляризуемость «одетого» атома водорода в формализме КХ анализировалась также в работе [29]. Результаты этой работы подтверждают утверждение о том, что в первом приближении поляризуемость атома КХ совпадает с поляризуемостью свободного электрона.

Коротко остановимся на обсуждении процесса распространения электромагнитного излучения в среде в случае, когда энергия кванта превышает потенциал ионизации. В линейном приближении в этом случае показатель преломления оказывается меньше единицы. Учет нелинейных эффектов, обусловленных процессом фотоионизации и перестройкой атомного потенциала, как мы видели, приводит к увеличению восприимчивости и показателя преломления, т. е. к формированию собирающей линзы в области сильного поля. Таким образом, в рассматриваемом случае образование электронов в континууме может приводить к фокусировке излучения.

В заключение обсудим результаты расчетов поляризационного отклика исследуемой квантовой системы на частоте третьей гармоники для обеих рас-

считываемых частот излучения. Начнем со случая УФ-излучения с частотой $\hbar\omega = 9.0$ эВ (см. рис. 7). Как и следовало ожидать, анализ показывает, что в области слабых полей ($P < 10^{14}$ Вт/см²) $\chi(3\omega, E_\omega) = d_{3\omega}/E_\omega \sim E_\omega^2$, т. е. среду можно характеризовать кубической нелинейной восприимчивостью $\chi^{(3)}(3\omega)$. Однако в более сильных полях, когда атомная динамика носит непертурбативный характер, темп возрастания восприимчивости $\chi(3\omega, E_\omega)$ замедляется, что обусловлено, на наш взгляд, уменьшением числа нейтральных атомов и увеличением числа электронов в континууме, восприимчивость которых на частотах гармоник падающего излучения близка к нулю²). Более удивительным на первый взгляд кажется тот факт, что в режиме КХ стабилизации атома, когда происходит увеличение концентрации нейтральных атомов с ростом поля, тем не менее наблюдается быстрое уменьшение восприимчивости. Причина такого поведения восприимчивости обусловлена тем, что в режиме стабилизации состояния атома оказываются сильно перестроены и являются состояниями атома КХ. Как уже отмечалось, в этих состояниях электрон совершает квазисвободные колебания, а атомная восприимчивость тем ближе к восприимчивости свободного электрона, чем больший пространственный размер имеет потенциал КХ.

В случае частоты титан-сапфирового лазера ($\hbar\omega = 1.5$ эВ) в области слабых полей ($P < 3 \cdot 10^{12}$ Вт/см²), соответствующих режиму теории возмущений, среду также можно характеризовать кубической нелинейной восприимчивостью $\chi^{(3)}(3\omega)$ (см. рис. 8). Однако в более сильных полях, когда атомная динамика носит непертурбативный характер, зависимость $\chi(3\omega, E_\omega)$ оказывается немонотонной, причем положение максимумов коррелирует с резонансами на кривой, описывающей зависимость вероятности возбуждения низколежащих состояний от интенсивности (см. рис. 5). При этом в целом в области $P > 2 \cdot 10^{13}$ Вт/см² величина восприимчивости $\chi(3\omega, E_\omega)$ убывает с ростом интенсивности. Это обусловлено убыванием числа атомов в основном и низколежащих возбужденных состояниях, а также тем фактом, что в сильных (сверхатомных) полях даже в низкочастотном пределе «одетые» полем атомные состояния есть состояния атома КХ, нелинейные восприимчивости которых, как уже отмечалось, на частотах, кратных

²) В дипольном приближении свободный электрон является линейной системой и характеризуется поляризационным откликом только на частоте воздействующего поля.

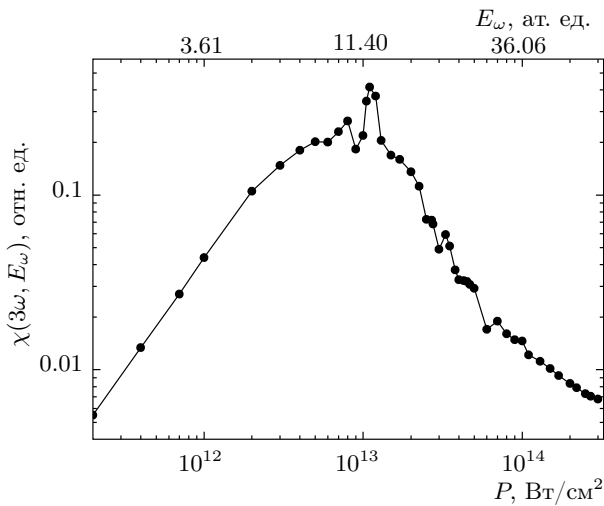


Рис. 8. Зависимость восприимчивости атомов серебра $\chi(3\omega, E_\omega) = d_{3\omega}(E_\omega)/E_\omega$ на частоте третьей гармоники воздействующего поля от интенсивности излучения (спектрального значения напряженности электрического поля волны) для излучения с $\hbar\omega = 1.5$ эВ

частоте воздействующего поля, убывают по мере возрастания интенсивности излучения.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, численные расчеты поляризационного отклика модельных атомов серебра в поле высокоинтенсивного лазерного импульса фемтосекундной длительности показывают ограниченность обычно используемого подхода, основанного на разложении отклика по степеням электрического поля и введении нелинейных восприимчивостей различных порядков. В случае ИК-излучения уже при интенсивностях излучения, превышающих $3 \cdot 10^{12}$ Вт/см², электронная динамика в атомах носит существенно непертурбативный характер и не может быть описана в рамках квантовомеханической теории возмущений, лежащей в основе упомянутого выше метода. В частности, в полях, соответствующих непертурбативному режиму, наиболее важным эффектом при расчете отклика на частоте воздействующего поля волны являются процессы перехода электронов в континуум и заселения высоколежащих (ридберговских) состояний, обуславливающие смену знака атомного отклика и ответственные за филаментацию мощных ультракоротких лазерных импульсов в различных средах. При этом, в связи с тем, что поляризуемости ридберговских состояний атомов и свободных электронов имеют

близкие значения, с экспериментальной точки зрения выявить вклады процессов ионизации и возбуждения ридберговских состояний, по-видимому, чрезвычайно сложно. Показано, что в непертурбативном режиме взаимодействия атома с полем излучения в отклике на частоте третьей гармоники воздействующего поля $\chi^{(3)}(3\omega)$ возникают резонансы, обусловленные заселением низколежащих возбужденных состояний, которые приводят к существенному увеличению отклика по сравнению с моделью, основанной на теории возмущений. В области более сильных полей, когда резонансное заселение низколежащих состояний отсутствует, величина отклика $\chi(3\omega, E_\omega)$ убывает с возрастанием поля, что обусловлено уменьшением концентрации нейтральных атомов в основном и низколежащих возбужденных состояниях.

В условиях воздействия на атомы излучения УФ-диапазона (обеспечивающего однофотонную связь связанных состояний и континуума) резонансы, обусловленные возбуждением состояний дискретного спектра, отсутствуют. Поэтому кривые отклика $\chi(\omega, E_\omega)$ и $\chi(3\omega, E_\omega)$ являются плавными функциями величины воздействующего поля. При этом оказывается, что образование электронов в континууме приводит к увеличению восприимчивости квантовой системы, т. е. к формированию фокусирующих свойств среды. В непертурбативном режиме задачу особенно удобно рассматривать в базисе состояний «одетого» атома, которые являются состояниями атома КХ. Использование именно этого базиса делает особо понятным некоторую условность деления атомных состояний на состояния континуума и дискретного спектра, поскольку в сильных полях в условиях формирования дихотомического потенциала «одетого» атома электрон совершает квазисвободные колебания как в состояниях дискретного спектра КХ-потенциала, так и в КХ-континууме.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 12-02-00064) и Министерства образования и науки РФ. Численное интегрирование уравнения Шредингера выполнялось на суперкомпьютерах СКИФ-МГУ «Чебышев» и «Ломоносов».

ЛИТЕРАТУРА

1. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
2. Н. Ф. Пилипецкий, А. Р. Рустемов, Письма в ЖЭТФ **2**, 88 (1965).

3. С. А. Ахманов, С. Ю. Никитин, *Физическая оптика*, Изд-во Московского ун-ва, Москва (1988).
4. Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова, Письма в ЖЭТФ **94**, 559 (2011).
5. A. L. Gaeta and F. Wise, Phys. Rev. Lett. **87**, 229401 (2001).
6. I. G. Koprnikov, A. Suda, P. Wang, and K. Midorikawa, Phys. Rev. Lett. **84**, 3847 (2000).
7. I. G. Koprnikov, A. Suda, P. Wang, and K. Midorikawa, Phys. Rev. Lett. **87**, 229402 (2001).
8. V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, Opt. Express **17**, 13429 (2009).
9. P. Be'jot, J. Kasparian, S. Henin et al., Phys. Rev. Lett. **104**, 103903 (2010).
10. V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, Opt. Express **18**, 3011 (2010).
11. P. Be'jot, E. Hertz, J. Kasparian, B. Lavorel, J.-P. Wolf, and O. Faucher, Phys. Rev. Lett. **106**, 243902 (2011).
12. P. Be'jot, E. Hertz, B. Lavorel, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and O. Faucher, Opt. Lett. **36**, 828 (2011).
13. C. Bree, A. Demircan, and G. Steinmeyer, Phys. Rev. Lett. **106**, 183902 (2011).
14. M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, Opt. Lett. **35**, 2550 (2010).
15. A. Teleki, E. M. Wright, and M. Kolesik, Phys. Rev. A **82**, 065801 (2010).
16. P. Polynkin, M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, Phys. Rev. Lett. **106**, 153902 (2011).
17. O. Kosareva, J.-F. Daigle, N. Panov, T. Wang, S. Hosseini, S. Yuan, G. Roy, V. Makarov, and S. L. Chin, Opt. Lett. **36**, 1035 (2011).
18. Z. Wang, C. Zhang, J. Liu, R. Li, and Z. Xu, Opt. Lett. **36**, 2336 (2011).
19. J. K. Wahlstrand, Y.-H. Cheng, Y.-H. Chen, and H. M. Milchberg, Phys. Rev. Lett. **107**, 103901 (2011).
20. Jielei Ni, Jinping Yao, Bin Zeng et al., Phys. Rev. A **84**, 063846 (2011).
21. J. M. Brown, E. M. Wright, J. V. Moloney et al., Opt. Lett. **37**, 1604 (2012).
22. G. O. Ariunbold, P. Polynkin, and J. V. Moloney, Opt. Express **20**, 1662 (2012).
23. M. V. Fedorov, *Atomic and Free Electrons in a Strong Light Field*, World Sci., Singapore (1997).
24. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, J. Phys. B **36**, R125 (2003).
25. Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова, ЖЭТФ **140**, 450 (2011).
26. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, Laser Phys. **21**, 1593 (2011).
27. N. B. Delone and V. P. Krainov, *Multiphoton Processes in Atoms*, Springer-Verlag, Berlin (1993), sec. 2.4.
28. A. A. Krylovetsky, N. L. Manakov, and S. I. Marmo, Laser Phys. **7**, 781 (1997).
29. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, Laser Phys. **10**, 188 (2000).