

ОБЗОР АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Атом в интенсивных лазерных полях: от генерации когерентного коротковолнового излучения к нелинейным свойствам газовой среды

К.В. Львов, С.Ю. Стремоухов

Взаимодействие интенсивных лазерных полей с веществом сопровождается множеством явлений: от генерации когерентного излучения различных спектральных диапазонов (от терагерцового до мягкого рентгеновского) до создания пучков ускоренных заряженных частиц и микромодификации объёма и поверхности различных образцов. Для описания такого многообразия явлений к настоящему времени развит ряд теоретических подходов, которые, используя различные приближения к описанию данной сложной нелинейной задачи, позволяют объяснять некоторые конкретные аспекты такого взаимодействия. Разработанные теоретические подходы рассматривают его как на микроскопическом уровне, изучая особенности взаимодействия одиночных атомов с лазерными полями, так и на макроскопическом, при котором анализируются нелинейные восприимчивости, описывающие нелинейную поляризацию среды при распространении лазерного излучения в ней. В настоящей работе представлен обзор некоторых, наиболее часто применяющихся теоретических подходов к описанию отклика среды на микроскопическом (квантово-механическом) уровне, а также различные методы управления свойствами генерируемого когерентного излучения. Описана модель газовой среды, которая, с одной стороны, учитывает особенности отклика одиночных атомов, а с другой стороны, позволяет учесть эффекты фазового и квазифазового согласования при генерации излучения. Проанализировано влияние параметров среды на эффективность генерации и поляризационные свойства генерируемого излучения как в условиях фазового, так и квазифазового согласования. Представлено детальное описание аналитического метода расчёта нелинейной восприимчивости газовой среды. Полученные значения нелинейной восприимчивости среды произвольного порядка могут быть полезными при численном расчёте распространения лазерного излучения в веществе. Проанализированы различные каналы генерации излучения при вариации параметров лазерного поля.

Ключевые слова: взаимодействие интенсивного лазерного излучения с веществом, генерация гармоник высокого порядка, фазовый синхронизм, непертурбативная теория, нелинейная восприимчивость среды

PACS numbers: 42.25.Ja, 42.65.Ky, 42.65.Re, **42.65. – k**DOI: <https://doi.org/10.3367/UFN.2025.09.040041>

Содержание

1. Введение (334).
2. Основные теоретические подходы к описанию взаимодействия атома с лазерным полем (336).

К.В. Львов^(1,2), С.Ю. Стремоухов^(1,2,3,*)

⁽¹⁾ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет, Ленинские горы 1, стр. 2, 119991 Москва, Российская Федерация

⁽²⁾ Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт", пл. Академика Курчатова 1, 123182 Москва, Российская Федерация

⁽³⁾ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Ленинский просп. 53, 119991 Москва, Российская Федерация
E-mail: (*) sustrem@gmail.com

Статья поступила 11 июля 2025 г.,
после доработки 23 сентября 2025 г.

- 2.1. Аналитические методы. 2.2. Полуклассический метод. 2.3. Методы численного решения. 2.4. Непертурбативный подход.
 3. Генерация гармоник в газах — отклик атома в дальней зоне (343). 3.1. Возбуждение одночастотным лазерным полем. 3.2. Возбуждение двухчастотным линейно поляризованным лазерным полем. 3.3. Возбуждение двухчастотным циркулярно поляризованным лазерным полем. 3.4. Генерация гармоник высокого порядка в двухчастотных скрещенных полях. 3.5. Интерференционная модель отклика среды. 3.6. Фазовое согласование излучения гармоник высокого порядка. 3.7. Квазифазовое согласование излучения гармоник высокого порядка.
 4. Нелинейность среды — отклик атома в ближней зоне (360). 4.1. Аналитическое вычисление нелинейной восприимчивости газовой среды. 4.2. Особенности нелинейных восприимчивостей и генерации гармоник в аргоне.
 5. Заключение (365).
- Список литературы (366).

1. Введение

С развитием методов генерации интенсивных лазерных импульсов [1] учёные получили возможность экспериментального изучения нелинейного режима взаимодействия излучения с веществом, что создало мощный импульс к исследованию этой области физики. Пиковая напряжённость лазерного поля таких импульсов перестаёт быть малой величиной по сравнению с внутриатомной напряжённостью ($E_{at} = e/a_B^2 \simeq 5 \times 10^9$ В см⁻¹), отклик среды становится существенно нелинейным, и нелинейная поляризация уже не может рассматриваться как малое возмущение.

Совершенствование способов синхронизации мод привело к получению ультракоротких (фемтосекундных, аттосекундных) и предельно коротких (одноцикловых и полумикроволновых) лазерных импульсов, которые заметно расширили практическое применение лазерной физики, положив начало аттосекундной спектроскопии атомов, молекул и твёрдых тел [2], петагерцовой электронике [3], созданию в среде динамических решёток и микрорезонаторов [4]. Переход к ультракоротким и предельно коротким лазерным импульсам требует отказа от традиционно используемого метода медленно меняющихся амплитуд и фаз поля [5], расчёта эволюции в среде самого поля, а не его огибающей, и учёта многоуровневой структуры среды. Спектр явлений и эффектов, которые необходимо учитывать при разработке современного теоретического аппарата, оказывается чрезвычайно богатым [6–10].

Предельно-короткие лазерные импульсы могут иметь интенсивности, сравнимые с внутриатомными значениями. Поэтому возникла необходимость в развитии новых методов описания взаимодействия такого излучения с веществом, которые бы учитывали как сильную дисперсию среды, так и существенно нелинейный режим взаимодействия. Большое распространение получили квантово-механические непертурбативные методы, рассматривающие взаимодействие излучения с веществом на микроскопическом уровне [7, 8, 11–13].

Подходы к описанию области перехода от слабых световых полей к экстремально сильным мало изучены теоретически, однако создание такого подхода представляет интерес с нескольких точек зрения. Во-первых, он позволит создать единое понимание явлений, происходящих в атоме при его взаимодействии с электромагнитным полем. Во-вторых, он позволит достичь качественного понимания экспериментально наблюдаемых эффектов, которые не находят объяснения с помощью теоретических подходов, хорошо зарекомендовавших себя при описании взаимодействия со слабыми и экстремально сильными полями. В связи с этим, интерес к исследованию взаимодействия атома с околоатомными лазерными полями не исчезает на протяжении нескольких десятилетий. За это время было опубликовано огромное количество работ. Их систематизация ведётся непрерывно (см. например, книги [12, 13, 14–21] и обзоры [22–27]).

Среди явлений, сопровождающих взаимодействие вещества с интенсивными лазерными полями, наиболее интенсивно исследуемыми являются генерация терагерцового излучения [28–35] и генерация гармоник высокого порядка [36–45]. Интерес к исследованию этих явлений обусловлен не только их фундаментальностью, но и

возможностью создания компактных и более доступных (по сравнению с такими установками класса "мега-сайенс", как источники синхротронного излучения, лазеры на свободных электронах) источников когерентного излучения в ТГц, ультрафиолетовой и рентгеновской областях спектра. Возможность контроля за состоянием поляризации (от линейной до циркулярной) излучения таких источников открывает дополнительную "степень свободы" при его применении. Так, с использованием циркулярно поляризованного излучения можно изучать хиральные свойства молекул и наночастиц, магнитные свойства вещества и др. [46–48].

Впервые генерация гармоник высокого порядка была обнаружена в плотной лазерной плазме, возникающей при фокусировке мощного лазерного излучения пико- и наносекундной длительности на лазерную мишень [49–51]. Генерация гармоник высокого порядка возможна в разных средах, каждая из которых с точки зрения эффективности процесса имеет свои достоинства и недостатки. Классической и продолжающей оставаться популярной средой является инертный газ [40, 52, 53]. Недостатком генерации в газовых средах можно назвать низкую эффективность преобразования из-за невысокой концентрации атомов в газе, а несомненным преимуществом — относительно простую постановку экспериментов. Другой перспективной средой является плазма, особым образом подготовленная из твёрдых веществ [41, 54, 55]. В ряде работ, представленных в обзоре [55], мишень предварительно разогревается лазерным импульсом (метод лазерной абляции), над мишенью образуется плазменный столб, через который пропускают управляющее лазерное излучение. Более высокая концентрация частиц в плазме по сравнению с газом повышает эффективность генерации гармоник. Однако сложность управления параметрами плазмы делает этот метод более трудоёмким с точки зрения эксперимента. Ещё один способ — это генерация гармоник в объёме твёрдых тел [56, 57] и на их поверхности [58]. Впервые генерацию в объёме кристалла вплоть до 25-й гармоники удалось пронаблюдать в 2010 г. в кристалле ZnO под действием фемтосекундных лазерных импульсов среднего ИК-диапазона [56]. Особенностью генерации в кристаллах является то, что частота отсечки зависит от величины напряжённости поля не квадратично, а линейно [56]. По сравнению с газами концентрация атомов существенно выше, что увеличивает эффективность генерации гармоник. Однако преимущества перекрываются серьёзным недостатком — сильным поглощением генерируемого излучения, а также ограничением на величину используемой интенсивности лазерного излучения, которую может выдержать кристалл без разрушения. Потому генерация в газовых средах и плазме представляется наиболее перспективной.

Развитие методов увеличения ширины спектра гармоник высокого порядка открывает новые области применения такого излучения для исследования структуры вещества. Так, для изучения внутренних оболочек важных в промышленности материалов (Fe, Co, Ni) необходимо использовать рентгеновское излучение с энергией фотона ~ 1 кэВ [59]. Для его получения методом генерации гармоник высокого порядка необходимо использование лазерных систем с меньшей частотой излучения (например, среднего ИК-диапазона [60]), что повышает частоту отсечки за счёт увеличения максимальной пондеромо-

торной энергии, которая пропорциональна квадрату длины волны лазерного источника. Однако при этом сильно падает эффективность процесса генерации гармоник, которая масштабируется с длиной волны лазерного источника (λ) как $\lambda^{-5.5}$ [61–63]. Кроме того, при использовании лазерных источников среднего и дальнего ИК диапазона существенным становится влияние магнитного поля за счёт снижения величины релятивистской интенсивности, что также ограничивает эффективность генерации гармоник высокого порядка [24, 64–68].

Добавление к основной частоте лазера её второй гармоники позволяет улучшить эффективность генерации — появляется второй набор изменяемых параметров (поляризация, длительность и интенсивность второй гармоники), а также задержка между импульсами и угол между векторами их поляризаций. Например, было показано, что подбор временной задержки между импульсами основной и второй гармоник может увеличить интенсивность генерируемых гармоник более чем на порядок [69]. Использование ионных и атомных резонансов [41, 70, 71], дополнительных лазерных полей [72] и фокусировка лазерного пучка в точку, немного смещённую от центра струи [73, 74], также позволяет увеличить эффективность генерации.

Эффективность генерации гармоник высокого порядка может быть повышена и с помощью квазифазового согласования, когда для фазового синхронизма используется периодическая структура в среде. Эффекты квазифазового согласования активно изучались в волноводах [75], последовательности газов [76], газовых смесях [77], протяжённом газе с градиентами давления [78] и газовых струях [79, 80]. Некоторые недавние достижения в этой области систематизированы в обзоре [81].

Генерация гармоник с произвольной, в том числе круговой, поляризацией представляет интерес не только с фундаментальной, но и с практической точек зрения. Например, для метода рентгеновского магнитного кругового дихроизма (XMCD), позволяющего измерять магнитные моменты атомных элементов и фиксировать динамику намагничивания отдельных компонентов вещества, необходимо циркулярно поляризованное излучение рентгеновского диапазона [82, 83]. Изучение динамики намагничивания также возможно с помощью линейно поляризованного ВУФ или мягкого рентгеновского излучения гармоник с использованием резонансного эффекта Фарадея [84]. Это стимулировало развитие методов генерации гармоник высокого порядка в эллиптически поляризованных лазерных полях и управления поляризационными характеристиками генерируемого излучения с помощью регулировки степени эллиптичности лазерного поля, как в одноатомных инертных газах [85, 86], так и в молекулах [87, 88], и в твёрдых телах [89]. Зависимость эффективности генерации гармоник от величины эллиптичности лазерного поля достаточно много изучалась различными исследователями [90–95]. Как правило, эта зависимость имеет схожий характер вне зависимости от номера гармоники [90–92]. Хотя есть и исключения из этого правила, проявляющиеся в обнаружении аномальной зависимости для конкретных гармоник [93–95].

Другим поднаправлением, более важным с прикладной точки зрения, является стабильное получение гармоник с высокой степенью эллиптичности. На данный момент существует несколько эффективных схем для полу-

чения интенсивных гармоник с высокой степенью эллиптичности [82, 96, 97]. В первой схеме применяются двухчастотные эллиптически поляризованные поля с противоположной спиральностью (векторы поляризации компонент двухчастотного поля вращаются навстречу друг другу) [96]. Схема отличается полным контролем над поляризацией излучения гармоник и позволяет генерировать даже циркулярно поляризованные гармоники. Ещё один подход, задействующий атомные и континуальные резонансы в одночастотном эллиптически поляризованном поле, даёт возможность производить квазициркулярные гармоники низкого порядка, однако не имеет столь хорошего контроля над поляризацией, как в первой схеме, и к тому же требует использования только определённых газов для получения высокой эллиптичности [97]. Третий метод оперирует двухчастотным лазерным полем с несущей частотой лазера и её второй гармоникой, имеющими линейные поляризации, ортогонально ориентированные по отношению друг к другу [82]. Он является более простым с точки зрения эксперимента, так как не требует использования большого количества оптических элементов.

Рассмотрение процесса взаимодействия лазерного излучения с веществом, вообще говоря, является неполным до тех пор, пока не будут описаны также эффекты распространения излучения в веществе. При этом нелинейные свойства среды задаются тензорами нелинейной восприимчивости различных рангов, которые являются разложением нелинейной поляризации по степеням лазерного поля. Например, генерация третьей гармоники является процессом четырёхволнового смешения:

$$P_i(3\omega) = \chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(\omega).$$

Нелинейная восприимчивость среды определяется, как правило, феноменологически, путём согласования теоретической модели с полученными экспериментальными данными. Так, в работах [98–100] приведены значения нелинейной восприимчивости третьего порядка атомарного водорода, благородных газов и двухатомных молекул в различных спектральных диапазонах, полученные путём измерения сигнала третьей гармоники, спектрального уширения основной гармоники и другими экспериментальными техниками.

Помимо чисто экспериментальных методов определения нелинейной восприимчивости, разработано также несколько теоретических подходов. Модель классического ангармонического осциллятора применялась в ранних фундаментальных работах [101–103]. Однако её использование требует также определения каким-либо другим способом таких параметров как время релаксации и сила осциллятора. Схожая идея ангармонического осциллятора использована в работе [103], в которой проводится расчёт безынерционного нелинейного отклика диэлектрических сред в приближении трёхуровневой и четырёхуровневой энергетической структуры среды, приводится закон дисперсии нелинейного показателя преломления, а также собраны многочисленные экспериментальные данные по измерению нелинейного показателя преломления различных диэлектрических сред. В терагерцовом спектральном диапазоне теоретически предсказаны и экспериментально зарегистрированы экстремально высокие колебательные вклады молекул в нелинейный показатель преломления [104, 105].

Путём измерения двухфотонного поглощения и использования соотношений Крамерса–Кронига удаётся определить дисперсию нелинейного показателя преломления [106], находящуюся в полном соответствии с указанными выше экспериментальными данными.

Большое распространение получил метод расчёта нелинейной восприимчивости свободных атомов с помощью теории возмущения, где в качестве возмущения рассматривается внешнее электрическое поле. Расчётанные по теории возмущений дисперсионные зависимости для H и He приведены в работах [107] и [108] соответственно. Однако, как правило, границы применимости такого подхода и условия сходимости теории возмущений остаются за рамками исследований.

Более того, при интенсивности лазерного излучения, сравнимой с атомной интенсивностью, разложение нелинейной поляризации в ряд по степеням поля, справедливость которого была обусловлена малостью лазерного поля, может быть поставлено под сомнение. Так, в работе [109] проведён расчёт нелинейной восприимчивости с помощью теории возмущения и путём численного решения нестационарного уравнения Шрёдингера. Существенно непертурбативный режим формирования нелинейной восприимчивости наблюдался при интенсивностях лазерного излучения выше $1-10 \text{ ТВт см}^{-2}$ (для атома водорода). При интенсивностях лазерного излучения более 40 ТВт см^{-2} (для атома водорода) наблюдается сначала насыщение, а затем уменьшение нелинейной восприимчивости, что подтверждается экспериментальными данными [106]. Данный факт свидетельствует о необходимости отказа от разложения нелинейной поляризации по степеням лазерного поля и использования более точных подходов.

В разделе 2 более детально представлены основные, часто используемые теоретические подходы к описанию взаимодействия атомов с лазерным полем, развитые к настоящему времени. Обсуждаются их достоинства, недостатки и границы применимости. В разделе 3 представлены результаты исследования особенностей генерации гармоник высокого порядка в газовых средах, полученные с помощью непертурбативного подхода. При этом описываются свойства излучения (спектр, поляризация), генерируемого как одним атомом, так и набором газовых струй, где реализуется режим квазифазового согласования излучения гармоник. В разделе 4 приведены результаты по применению непертурбативной теории отклика одиночного атома на лазерное поле к аналитическому расчёту нелинейной восприимчивости газовой среды. Получены аналитические формулы для расчёта нелинейной восприимчивости произвольного порядка и значения интенсивности лазерного поля, при котором разложение нелинейной поляризации в ряд по степеням лазерного поля становится некорректным.

2. Основные теоретические подходы к описанию взаимодействия атома с лазерным полем

Следуя многочисленным работам, будем рассматривать задачу о взаимодействии атома с лазерным полем в одноэлектронном приближении и интересоваться поиском волновой функции одного (валентного) электрона, находящегося в кулоновском поле атомного остова, а также во внешнем (заданном) лазерном поле. Рассмот-

рим газовые среды, в которых влиянием остальных атомов можно пренебречь в силу их большого удаления от рассматриваемого электрона. Волновая функция ψ валентного электрона в атоме, находящемся в лазерном поле, является решением нестационарного уравнения Шрёдингера:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi = \hat{H}\psi = \left[\frac{1}{2m} \left(\hat{\mathbf{p}} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right)^2 + q\varphi + V \right] \psi, \quad (1)$$

где \hat{H} — оператор Гамильтона, V — потенциал поля атомного остова, $\mathbf{p} = -i\hbar \nabla$ — оператор импульса, \hbar — постоянная Планка, c — скорость света в вакууме, q и m — заряд и масса электрона соответственно, \mathbf{A} и φ — векторный и скалярный потенциалы лазерного поля $\{\mathbf{E}, \mathbf{B}\}$.

Векторный и скалярный потенциалы задаются неоднозначно, поскольку удовлетворяют равенствам:

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A} - \nabla\varphi, \quad \mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad (2)$$

и потому могут быть одновременно изменены следующим образом:

$$\mathbf{A} \rightarrow \mathbf{A}' = \mathbf{A} + \nabla A(\mathbf{r}, t), \quad \varphi \rightarrow \varphi' = \varphi - \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} A(\mathbf{r}, t), \quad (3)$$

где $A(\mathbf{r}, t)$ — произвольная функция координат и времени.

При преобразовании (3) волновая функция, удовлетворяющая (1), изменяется соответствующим образом:

$$\psi \rightarrow \psi' = \hat{U}\psi, \quad \hat{U} = \exp\left(\frac{iqA(\mathbf{r}, t)}{\hbar c}\right). \quad (4)$$

Как правило, при решении уравнения Шрёдингера (1) полный гамильтониан задачи представляют в виде суммы гамильтониана задачи в отсутствие лазерного поля и гамильтониана взаимодействия:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}}, \quad \hat{H}_0 = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V, \\ \hat{H}_{\text{int}} = \frac{1}{2m} \left(-\frac{q}{c} (\hat{\mathbf{p}}\mathbf{A} + \mathbf{A}\hat{\mathbf{p}}) + \frac{q^2}{c^2} A^2 \right) + q\varphi. \quad (5)$$

Наиболее часто используются две различные калибровки потенциалов лазерного поля. В калибровке длины (LG) полагаются $\mathbf{A} = 0$, а в калибровке скорости (VG) — $\varphi = 0$, и поэтому

$$\hat{H}_{\text{int}}^{\text{LG}} = q\varphi, \quad \hat{H}_{\text{int}}^{\text{VG}} = \frac{1}{2m} \left(-\frac{q}{c} (\hat{\mathbf{p}}\mathbf{A} + \mathbf{A}\hat{\mathbf{p}}) + \frac{q^2}{c^2} A^2 \right). \quad (6)$$

Оператор полной механической энергии $\hat{E} = (1/2m)(\hat{\mathbf{p}} - (q/c)\mathbf{A})^2 + V$, в отличие от гамильтониана \hat{H} , является наблюдаемой величиной, поскольку этот оператор инвариантен относительно выбора калибровки. Также наблюдаемыми величинами являются полный механический импульс $\hat{\mathbf{p}} - (q/c)\mathbf{A}$ и радиус-вектор \mathbf{r} .

Волновую функцию ψ , задаваемую уравнением (1), можно определить в каждый момент времени через оператор эволюции \hat{U} : $\psi(t) = \hat{U}(t, t')\psi(t')$. В длинноволновом приближении (векторный потенциал является только функцией времени $\mathbf{A} = \mathbf{A}(t)$) существует формальное неявное решение для оператора эволюции [110], которое

проверяется прямой подстановкой в уравнение (1):

$$\hat{U}(t, t') = \hat{U}_1(t, t') - \frac{i}{\hbar} \int_{t'}^t dt \hat{U}(t, \tau) q \left(\varphi(\tau) + \frac{\mathbf{r}}{c} \frac{\partial \mathbf{A}(\tau)}{\partial \tau} \right) \hat{U}_1(\tau, t'), \tag{7}$$

где $\hat{U}_1(\tau, t')$ — оператор эволюции, задаваемый уравнением:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{U}_1(t, t') = \left(\hat{E}(t) - \frac{q\mathbf{r}}{c} \frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t} \right) \hat{U}_1(t, t'). \tag{8}$$

Решение, задаваемое формулой (7), использует только длинноволновое и одноэлектронное приближения, и оно инвариантно относительно калибровки потенциалов лазерного поля. Отметим, что в калибровке длины (6) гамильтониан взаимодействия представляется в виде $\hat{H}_{\text{int}}^{\text{LG}} = -q\mathbf{r}\mathbf{E}(t)$, что означает учёт взаимодействия атома с полем в дипольном приближении. Именно так и обстоит дело, когда используется длинноволновое приближение, которое означает однородность поля по пространству и полное отсутствие каких бы то ни было мультипольных моментов. Аналогично и в калибровке скорости, задача взаимодействия атома с лазерным полем решается в дипольном приближении как только применяется длинноволновое приближение. Подробнее с применением различных калибровок и приближений можно ознакомиться в работе [111]. Различия в результатах, получаемых в различных калибровках, объясняются только тем, что применяются дополнительные приближения, разрушающие инвариантность выражения (7).

Выбор той или иной калибровки диктуется удобством решения поставленной задачи. Например, при исследовании свойств генерируемого атомом излучения рассчитывается микроскопическая плотность тока, выражение для которой выглядит проще в калибровке скорости: $\mathbf{j} = q/m(\dot{\mathbf{p}} - (q/c)\mathbf{A})$. Напротив, при вычислении, например, вероятности ионизации атома удобнее использовать калибровку длины, поскольку в этом случае выражения (7) и (8) существенно упрощаются. При численном решении нестационарного уравнения Шрёдингера (1) помимо удобства аналитического вида уравнений оказывается важным также вычислительная эффективность применяемых численных методов. В работе [112] было показано, что при большой интенсивности лазерного излучения (более 3×10^{14} Вт см⁻²) с точки зрения затрат вычислительных ресурсов эффективнее использовать калибровку скорости, а при низких интенсивностях обе калибровки сравнимы между собой (рис. 1).

Представим ниже краткое изложение основных методов расчёта взаимодействия лазерного поля с атомом и применяемых при этом приближений. Отметим, что все описанные ниже подходы являются нерелятивистскими, поэтому пренебрегается влиянием внешнего магнитного поля на атом. Вместе с тем, стоит отметить, что переход от нерелятивистского режима к релятивистскому задаётся величиной $I\lambda^2$ [мкМ]/ $1,3 \times 10^{18}$ Вт см⁻² (I — интенсивность излучения, λ — длина волны в микронах), которая в нерелятивистском режиме должна быть существенно меньше 1. Поэтому увеличение длины волны лазерного излучения может заметно снижать предел по интенсивности излучения, при которой будет требоваться релятивистское рассмотрение задачи.

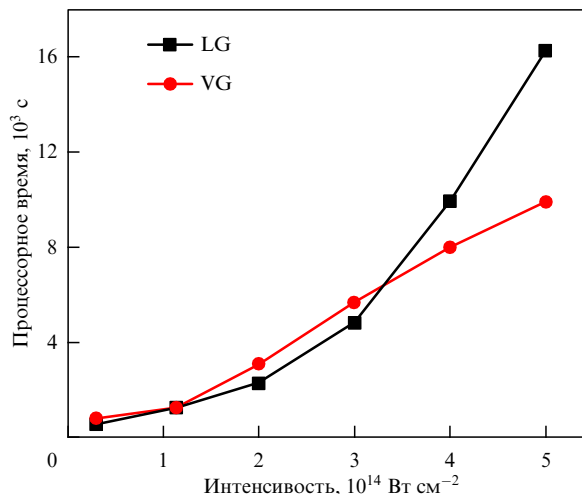


Рис. 1. Процессорное время, необходимое для расчёта отклика атома на лазерное поле различной интенсивности при использовании калибровки длины (чёрная кривая с квадратами) и калибровки скорости (красная кривая с кружками) [112].

2.1. Аналитические методы

Одним из самых важных и изучаемых на протяжении многих десятилетий процессов, которые происходят при взаимодействии одиночного атома с лазерным полем является фотоионизация. Именно поэтому её теоретическому и экспериментальному исследованию посвящено множество работ. Пионерские работы в этой области были посвящены в основном изучению вероятности туннелирования через потенциальный барьер: как в атомах [113, 114], так и в полупроводниках [115–117], а также вопросам многофотонной ионизации [118–120]. В работе 1964 г. [120] Л.В. Келдышу удалось объединить в рамках единой теории туннельный и многофотонный механизм фотоионизации.

В рамках теории Келдыша, рассматривается ионизация атома из основного водородоподобного состояния

$$\psi_0(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\pi a_B^3}} \exp\left(-\frac{r}{a}\right), \tag{9}$$

где $a_B = \hbar^2/me^2$ — боровский радиус, в свободное состояние, промодулированное гармоническим электрическим полем (волковское состояние [121])

$$\psi_{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t) = \exp\left[\frac{i\mathbf{r}}{\hbar}\left(\mathbf{p} - \frac{q}{c}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)\right) - \frac{i}{2m\hbar} \int_0^t \left(\mathbf{p} - \frac{q}{c}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t')\right)^2 dt'\right]. \tag{10}$$

Взаимодействие поля с атомом описывается в дипольном приближении в калибровке длины $\hat{H}_{\text{int}} = q\mathbf{r}\mathbf{E}_0 \cos(\omega t)$. Выражение для скорости фотоионизации $w_{\mathbf{p}}(t) = \int \psi_{\mathbf{p}}^*(\mathbf{r}, t) \hat{H}_{\text{int}} \psi_0(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$ усредняется по периоду поля и по импульсу свободного электрона, в результате чего получается выражение:

$$w_{\mathbf{K}} = \frac{2\pi}{\hbar} \int |L(\mathbf{p})|^2 \sum_n \delta\left(I_0 + \frac{p^2}{2m} + \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} - n\hbar\omega\right) \frac{d\mathbf{p}}{(2\pi\hbar)^3}, \tag{11}$$

где I_0 — потенциал ионизации атома, δ — дельта-функция,

$$L(\mathbf{p}) = \frac{1}{2\pi} \oint dx W\left(\mathbf{p} + \frac{q\mathbf{E}_0}{\omega} x\right) \times \exp\left[\frac{i}{\hbar\omega} \int_0^x \left(I_0 + \frac{1}{2m} \left(\mathbf{p} + \frac{q\mathbf{E}_0}{\omega} u\right)^2\right) \frac{du}{\sqrt{1-u^2}}\right], \quad (12)$$

$$W(\mathbf{s}) = \frac{q}{\sqrt{\pi a^3}} \int \mathbf{r} \mathbf{E} \exp\left(-\frac{r}{a} - \frac{i\mathbf{s}\mathbf{r}}{\hbar}\right) d\mathbf{r}, \quad (13)$$

а интеграл в $L(\mathbf{p})$ берётся по замкнутому контуру, окружающему отрезок $[-1, 1]$.

Так как $L(\mathbf{p})$ содержит быстро осциллирующую экспоненту, то основной вклад в интеграл в выражении (11) дают точки перевала, определяемые уравнением:

$$I_0 + \frac{1}{2m} \left(\mathbf{p} + \frac{q\mathbf{E}_0}{\omega} \sin(\omega t)\right)^2 = 0. \quad (14)$$

Вычисляя интеграл (12) методом перевала, получаем формулу Келдыша для скорости фотоионизации:

$$w_K = Q(\gamma, I_0, \omega) \exp[-\Phi(\gamma, I_0, \omega)], \quad (15)$$

где Q — множитель (предэкспоненциальный фактор),

$$\Phi(\gamma, I_0, \omega) = \frac{2I_0}{\hbar\omega} \left(1 + \frac{1}{2\gamma^2}\right) \left(\sinh^{-1}\gamma - \gamma \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{1+2\gamma^2}\right), \quad (16)$$

$$\gamma = \frac{\omega\sqrt{2mI_0}}{qE_0}. \quad (17)$$

Параметр Келдыша γ определяет характерный режим фотоионизации: при $\gamma \gg 1$ преобладает многофотонная ионизация, при $\gamma \ll 1$ — туннельная. Он также одновременно является и мерой адиабатичности процесса фотоионизации [27] и по сути является отношением времени подбарьерного прохождения $\tau = d/v$ ($d = I_0/qE_0$ — характерная ширина барьера, $v = \sqrt{2I_0/m}$ — скорость частицы) к периоду электрического поля $T = 2\pi/\omega$.

Теория Келдыша нашла широкое применение для описания результатов экспериментов по взаимодействию атома с лазерными импульсами. Однако в ней учитывается только ионизация с основного уровня, а влиянием возбуждённых дискретных уровней пренебрегается. К тому же не учитывается влияние кулоновского потенциала на волновую функцию свободного состояния. Поэтому на протяжении многих лет проводилась экспериментальная проверка предэкспоненциального фактора и обсуждались границы применимости формулы Келдыша [122–125]. Ещё одно естественное ограничение применимости формулы Келдыша связано с длительностью лазерного импульса. Поскольку при выводе формулы проводилось усреднение по периоду лазерного поля, то необходимо, чтобы импульс содержал много периодов поля.

В дальнейшем в работах Никишова и Ритуса [126], Переломова, Попова и Терентьева [127–129], Аммосова, Делоне и Крайнова [130] были получены аналитические выражения для энергетического и импульсного спектра фотоэлектронов, а также точный вид предэкспонен-

циального фактора. Представленные в работах результаты справедливы для произвольных значений параметра Келдыша γ и относятся к ионизации состояния, связанного короткодействующим потенциалом (например, в случае ионизации однозарядных отрицательных ионов). Например, для режима туннельной ионизации ($\gamma \ll 1$) было получено следующее выражение для предэкспоненциального фактора при ионизации линейно поляризованным излучением состояния с орбитальным моментом l и проекцией m :

$$Q = \frac{2I_0}{\hbar} \sqrt{\frac{3}{\pi}} (2l+1) \frac{(l+m)!}{2^m m!(l-m)!} C_{kl}^2 2^{2n^*-m} \times \left(\frac{q\hbar}{\sqrt{m(2I_0)^3}} E_0\right)^{m+1,5-2n^*}, \quad (18)$$

$$C_{kl}^2 = \frac{2^{2n^*-2}}{n^*(n^*+l)!(n^*-l-1)!}, \quad (19)$$

где $n^* = Z\sqrt{mq^4/2I_0\hbar^2}$ — эффективное главное квантовое число, Z — заряд атомного или ионного остова.

Дальнейшее развитие теории ионизации атома сильным электромагнитным полем было связано с учётом множества состояний валентного электрона, относящихся к дискретному спектру, а не просто ионизации лишь с основного состояния, а также отказом от метода перевала при расчёте вероятности перехода со связанного состояния в свободное — метод Келдыша–Файсала–Риса (KFR) в приближении сильного поля [131–133]. При этом в точном решении, задаваемом формулой (7), делается приближение, что волновая функция свободного состояния является волковской волновой функцией (10), что нарушает калибровочную инвариантность решения. В калибровке длины получается простое выражение для вероятности фотоионизации:

$$w_{KFR} = iq \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \int \psi_{\mathbf{p}}^*(\mathbf{r}, \tau) \mathbf{r} \mathbf{E}(\tau) \psi_0(\mathbf{r}, \tau) d\mathbf{r}. \quad (20)$$

Развитие теории Келдыша на случай ультракоротких лазерных импульсов проводится в работе [27], в которой проводится интегрирование по импульсам выражения для скорости фотоионизации в рамках теории Келдыша, но не проводится усреднение по периоду лазерного поля. Вероятность ионизации в случае ультракоротких лазерных импульсов длительностью в несколько полупериодов представлена в работе [134].

2.2. Полуклассический метод

При воздействии на атом (или газовую среду) лазерного излучения высокой интенсивности (более 10^{12} – 10^{13} Вт см $^{-2}$) ярко проявляются два нелинейных эффекта — генерация гармоник высокого порядка (ГВП) и надпороговая ионизация. Оба эффекта связаны с поглощением атомом большого числа фотонов лазерного излучения. В первом эффекте поглощённая энергия высвобождается в виде кванта излучения гармоники, во втором происходит ионизация атома. Полуклассическая модель генерации ГВП была предложена в работах [36, 37, 39, 70, 135] и получила впоследствии название трёхступенчатой. На первом этапе происходит ионизация атома, т.е. отрыв валентного электрона, под дейст-

вием лазерного излучения. На втором этапе происходит ускорение свободного электрона лазерным полем. Наконец, на третьем этапе происходит рекомбинация электрона с излучением ГВП.

Максимальная энергия испускаемого фотона $\hbar\omega_{\text{ГВП}}$ равна при этом сумме максимальной кинетической энергии K_{max} , которой будет обладать при столкновении с родительским ионом электрон, ускоренный осциллирующим лазерным полем $E(t) = E_0 \sin(\omega_0 t)$, и потенциала ионизации атома I_0 : $\hbar\omega_{\text{ГВП}} = K_{\text{max}} + I_0$.

Рассмотрим электрон, который находился изначально в связанном состоянии в атоме, а в момент времени t_i перешёл в свободное состояние с нулевыми значениями координаты и скорости. Дальнейшая траектория движения электрона находится путём решения классического уравнения Ньютона для свободного электрона:

$$x(t) = \frac{qE_0}{m\omega_0^2} (\sin \omega_0(t - t_i) - \omega_0(t - t_i)). \quad (21)$$

Траектория движения электрона ключевым образом зависит от фазы лазерного поля $\phi = \omega_0 t_i$, при которой произошла ионизация атома. Если $0 \leq \phi \leq \pi/2$ или $\pi \leq \phi \leq 3\pi/2$, то электрон никогда не пройдет через начальную координату, т.е. не достигнет родительского иона, а при $\pi/2 \leq \phi \leq \pi$ или $3\pi/2 \leq \phi \leq 2\pi$ электрону один или несколько раз возвращается к родительскому иону (рис. 2а). При этом момент возврата t_r и время свободного движения $\tau = t_r - t_i$ связаны соотношением [26]:

$$\tan \phi = \frac{\omega_0 \tau - \sin(\omega_0 \tau)}{\cos(\omega_0 \tau) - 1}, \quad (22)$$

а кинетическая энергия электрона в момент возврата равна:

$$K = 2U_p \frac{C^2 \omega_0 \tau}{\omega_0 \tau - \sin(\omega_0 \tau) - C}, \quad (23)$$

где $U_p = q^2 E_0^2 / 4m\omega_0^2$ — пондеромоторная (осцилляторная) энергия, а $C = \sin(\omega_0 \tau) - 2(1 - \cos(\omega_0 \tau)) / \omega_0 \tau$. Максимальная величина кинетической энергии (23) составляет $K_{\text{max}} \approx 3,17U_p$, что соответствует значениям $\phi = 1,88$, $\omega_0 \tau = 4,09$. Поэтому максимальная энергия фотона ГВП составляет:

$$\hbar\omega_{\text{ГВП}} = I_0 + 3,17U_p, \quad (24)$$

что согласуется с многочисленными экспериментальными данными по генерации ГВП в газовых средах [26, 39, 52, 53]. В периодическом лазерном поле описанный выше трёхступенчатый процесс повторяется на каждом полупериоде поля, поэтому спектр ГВП является дискретным, причём присутствуют только нечётные гармоники.

Трёхступенчатая модель стала уникальной платформой развития целого спектра полуклассических теорий генерации гармоник высокого порядка. Одной из первых подобных теорий стала теория, развитая Левенштейном с соавторами [137]. Основной вклад в генерацию ГВП вносят переходы электронов между свободным и связанными состояниями, при этом пренебрегается вкладом промежуточных связанных состояний, что оправдано в

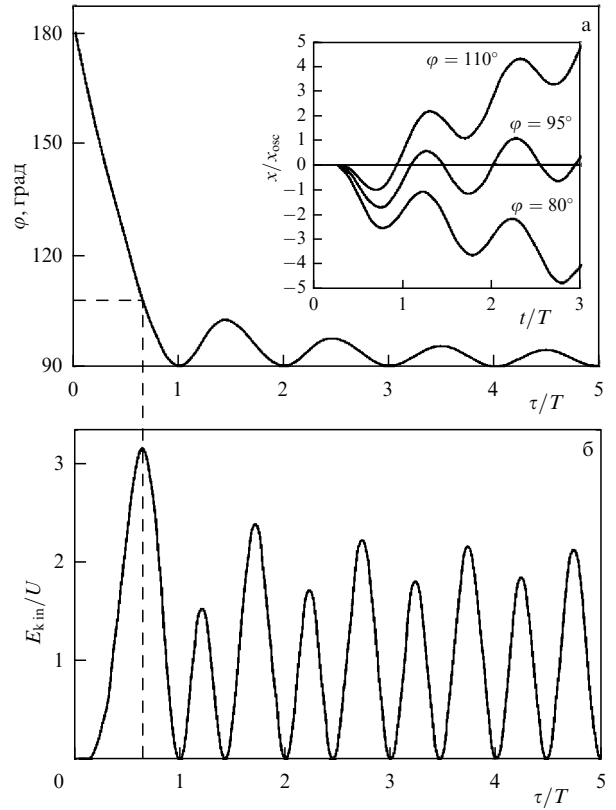


Рис. 2. (а) Связь между фазой поля в момент отрыва электрона и временем его свободного движения до возврата к родительскому иону. На вставке — траектории электронов, начавших свободное движение при различных фазах поля. (б) Зависимость кинетической энергии электрона при возврате к родительскому иону от времени его свободного движения. (Рисунок взят из работы [136].)

режиме туннельной ионизации. Волновая функция электрона представляется в виде суперпозиции основного связанного состояния ψ_0 и множества свободных состояний ψ_p :

$$\psi(\mathbf{r}, t) = (a(t)\psi_0(\mathbf{r}) + \int b(\mathbf{p}, t)\psi_p(\mathbf{r}) d\mathbf{p}) \exp(iI_0 t), \quad (25)$$

при этом амплитуда основного состояния считается приблизительно равной единице $a(t) \approx 1$ (рассматривается случай слабой ионизации), а свободные состояния записываются в приближении плоских волн. В указанных приближениях было получено следующее выражение для дипольного момента атома [137]:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mu}(t) = & i \int_0^t dt' \int d\mathbf{p} \mathbf{E}(t') \mathbf{d} \left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t') \right) \times \\ & \times \exp \left(-\frac{iS(\mathbf{p}, t, t')}{\hbar} \right) \mathbf{d}^* \left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t') \right) + \text{c.c.}, \end{aligned} \quad (26)$$

где $\mathbf{d}(\mathbf{p}) = -q \int \psi_p^* \mathbf{r} \psi_0 d\mathbf{r}$ — дипольный момент перехода между связанным и свободным состояниями, а $S(\mathbf{p}, t, t')$ — квазиклассическое действие:

$$S(\mathbf{p}, t, t') = \int_{t'}^t \left[\frac{1}{2m} \left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t'') \right)^2 + I_0 \right] dt''. \quad (27)$$

Наибольший вклад в интеграл (27) дают стационарные точки действия, для которых $\nabla_{\mathbf{p}}S(\mathbf{p}, t, t') = 0$. Как несложно заметить, это условие означает равенство начальной и конечной координаты электрона, т.е. его возвращение к родительскому иону. Поэтому, как и в полуклассической теории, получается, что наибольший вклад в генерацию ГВП дают электроны, которые после туннельного отрыва от атома и движения в осциллирующем лазерном поле возвращаются к родительскому иону.

Представленный квантово-механический подход позволяет также проанализировать фазовый синхронизм генерируемых гармоник. Для достаточно большого номера гармоники основной вклад в сигнал гармоники дают всего две траектории, называемые "короткой" (время возврата электрона $\tau_1 < 0,65T$, где T — период лазерного поля) и "длинной" (время возврата электрона $\tau_1 > 0,65T$) [138]. При этом, как показывают детальные квантово-механические расчёты спектра дипольного момента (26), например, в работах [139, 140], фаза сигнала, вносимого n -й траекторией, называемая часто "атомной фазой", пропорциональна интенсивности I лазерного излучения:

$$\Phi_n = -\alpha_n I. \quad (28)$$

При этом эта зависимость атомной фазы от интенсивности лазерного излучения в несколько десятков раз более сильная для "длинной" траектории по сравнению с "короткой": $\alpha_2/\alpha_1 \approx 27$ [139].

Метод стационарной фазы применялся и в других работах, в которых развивались схожие квантово-механические подходы [26, 36, 85, 141–143]. Отклик атома на данной частоте складывается из разных слагаемых, каждое из которых имеет смысл квантовой траектории (квантовой орбиты) электрона из начального состояния в конечное. Расчёт спектра ГВП проводился также в терминах фейнмановских интегралов по траекториям [144]. Вероятность перехода электрона из начального состояния в конечное представляется в виде суммы:

$$M = \sum_n a_n \exp \left[\frac{iS(\mathbf{r}_n(t))}{\hbar} \right], \quad (29)$$

где $\mathbf{r}_n(t)$ — n -ая классическая траектория электрона, a_n — амплитуды траекторий, S — полное действие, состоящее из суммы действия начального связанного состояния $S_{i,n} = -I_0 t_i$ (где I_0 — энергия этого состояния), действия свободного состояния $S_{f,n}$ (27) и действия конечного связанного состояния $S_{r,n} = (\hbar\omega_s + I_0)t_r$ (где s — номер гармоники). При этом величины t_i , \mathbf{p} и t_r определяются методом перевала, т.е. путём решения следующих уравнений:

$$\left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t_i) \right)^2 = 2mI_0, \quad (30a)$$

$$\mathbf{p}(t_r - t_i) = \frac{q}{c} \int_{t_i}^{t_r} \mathbf{A}(t') dt', \quad (30б)$$

$$\left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t_r) \right)^2 = 2m(\hbar\omega_s + I_0). \quad (30в)$$

Трёхступенчатая модель получила своё развитие в [145] в виде четырёхступенчатой модели, предлагающей разделить этап рекомбинации электрона на две ступени. На первой из них предполагается, что электрон захватывается автоионизационным состоянием иона. На второй происходит переход этого электрона в основное состояние с испусканием света на частоте гармоники. Тем не менее, на "шаге" движения электрона в поле лазерного импульса по-прежнему используются классические уравнения.

2.3. Методы численного решения

Впервые метод прямого численного решения (*ab initio*) нестационарного уравнения Шрёдингера был использован в работе [146] для исследования многофотонной ионизации атома водорода низкочастотным лазерным полем. В этой работе учитывалось лишь основное состояние дискретного спектра и использовалась цилиндрическая симметрия гамильтониана, поэтому размерность численной задачи была равна $2D + 1$ (два пространственных измерения и время). В дальнейшем метод прямого численного решения нестационарного уравнения Шрёдингера был развит для решения трёхмерных задач и использовался для изучения ионизации различных квантовых систем (атомов, ионов и т.д.) при их взаимодействии с полями как линейной [147, 148], так и круговой поляризации [149]. Последующие работы были направлены на изучение физики процессов взаимодействия атомов и ионов с интенсивными лазерными полями: генерация гармоник высокого порядка молекулярным ионом водорода [150–152], генерация гармоник литием и рубидием в поле эллиптически поляризованного излучения [153]; а также на усовершенствование численных схем: подавление отражений на границе расчётной сетки [154].

Большое распространение получил метод, в котором волновая функция электрона в атоме представляется в виде разложения по некоторому базису волновых функций:

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n(t) \psi_n(\mathbf{r}). \quad (31)$$

Полученное разложение подставляется в нестационарное уравнение Шрёдингера (1), в результате чего задача сводится к решению системы уравнений относительно коэффициентов разложения $a_n(t)$.

Среди базисов для разложения использовались различные аналитические базисы, такие как базис Рутана–Хартри–Фока [155], рассчитанный для атомов и ионов химических элементов от Н до Хе, или базис на основе В-сплайнов [156], который был успешно применен для расчёта надпороговой ионизации [157]. Помимо этого, большое распространение получили численные базисы, которые рассчитываются в результате предварительного численного решения задачи на собственные значения невозмущенного полем оператора Гамильтона. При этом, как подчеркивается в работе [158], одним из преимуществ численного базиса является возможность учёта сильно возбуждённых связанных состояний атома.

Во всех вышеперечисленных работах использовался кулоновский потенциал взаимодействия электрона с ядром. Это накладывало определённое ограничение на пространственный шаг численной сетки как в окрестности $r = 0$, так и при больших значениях r . Для того, чтобы

преодолеть эти ограничения, в [159–161] использовался сглаженный кулоновский потенциал $U(r) = -q/\sqrt{a^2 + r^2}$, что позволило исследовать процессы фотоионизации как ридберговских состояний атома [161], так и эффекты стабилизации ионизации [160].

Приведённые в предыдущих разделах аналитические методы зачастую рассматривают гамильтониан взаимодействия \hat{H}_{int} как малую добавку к гамильтониану задачи в отсутствие внешнего поля \hat{H}_0 и применяют аппарат теории возмущений, удерживая только первый или второй порядок малости, т.е. только слагаемое, линейное по полю ($\sim E_0$) или, что довольно редко, и квадратичное слагаемое ($\sim E_0^2$).

Вообще говоря, такой подход оправдан, когда внешнее лазерное поле существенно меньше внутриатомного поля: $E_0 \ll E_{\text{at}} = e/a_B^2 \simeq 5 \times 10^9$ В см⁻¹, что соответствует интенсивности $I \ll I_{\text{at}} \simeq 3,5 \times 10^{16}$ Вт см⁻². Однако для высоковозбуждённых связанных состояний, радиус орбит которых составляет несколько единиц или даже десятков боровских радиусов, внутриатомное поле оказывается сниженным, и уже при заметно более низких интенсивностях внешнего поля нельзя ограничиваться только первыми порядками теории возмущений. Особенно ярко это проявляется при вычислении нелинейной восприимчивости атома, поскольку её наличие в том числе обусловлено видом радиальной части волновой функции возбуждённых состояний.

Численные методы решения нестационарного уравнения Шрёдингера обладают тем преимуществом, что позволяют сравнительно легко выйти за рамки теории возмущений и не накладывать ограничения на интенсивность лазерного поля. Авторы работы [109] путём сравнения результатов вычислений, проведённых по теории возмущений и полученных при прямом решении нестационарного уравнения Шрёдингера, пришли к выводу, что уже при интенсивности 5×10^{13} Вт см⁻² разложение в ряд по степеням лазерного поля становится невозможным, так как слагаемые более высокого порядка малости становятся сравнимы по своему значению со слагаемым более низкого порядка малости (рис. 3).

Ещё одним мощным методом, который позволяет рассчитывать отклик атомов на лазерное поле высокой

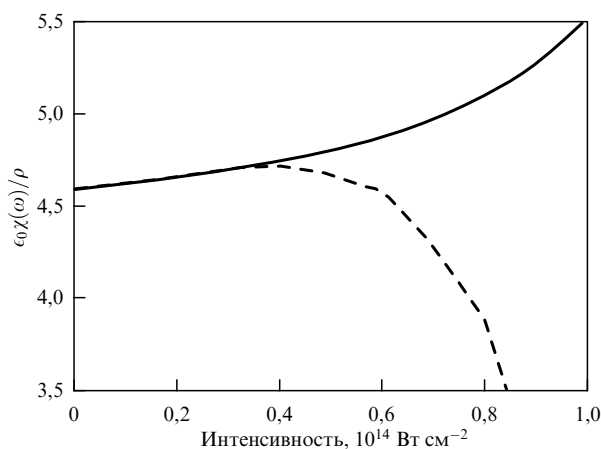


Рис. 3. Восприимчивость газовой среды в зависимости от пиковой интенсивности возбуждающего 10-циклового лазерного импульса с длиной волны 800 нм, рассчитанная по теории возмущения (сплошная линия) и путём численного решения уравнения Шрёдингера [109].

интенсивности, работающий вне рамок теории возмущения, является подход, развиваемый в Московском государственном университете им. М.В. Ломоносова в группе А.В. Андреева [162]. В этом подходе используется калибровка скорости и удерживаются оба слагаемых в гамильтониане взаимодействия $\hat{H}_{\text{int}}^{\text{VG}} = 1/m(-(q/c)\mathbf{A}\hat{\mathbf{p}} + (q^2/2c^2)A^2)$. Этот подход был успешно применен для анализа поляризационных и спектральных особенностей генерируемого атомом когерентного излучения (как гармоник высокого порядка, так и терагерцового излучения) [163–165], а также поиска новых способов фазового согласования излучения гармоник высокого порядка в газовых средах [166]. Перейдём к более детальному рассмотрению этого подхода.

2.4. Непертурбативный подход

Волновая функция $\psi(\mathbf{r}, t)$ может быть разложена по базису собственных функций $\{u_n(\mathbf{r})\}$ стационарного уравнения Шрёдингера, записанного для электрона, находящегося в кулоновском поле атомного остова (задача "о свободном атоме"):

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n(t) u_n(\mathbf{r}). \quad (32)$$

$$\hat{H}_0 u_n(\mathbf{r}) = \left(\frac{\hat{p}^2}{2m} - \frac{q}{r} \right) u_n(\mathbf{r}) = E_n u_n(\mathbf{r}). \quad (33)$$

Волновые функции $\{u_n(\mathbf{r})\}$ имеют хорошо известный аналитический вид, представленный, например, в [167]. Для атомов с большим атомным номером требуются поправки к потенциалу атомного остова. В этом случае волновые функции $\{u_n(\mathbf{r})\}$ и энергии уровней E_n могут быть рассчитаны приближенно (аналитический базис Рутана–Хартри–Фока [155], численный базис [158]) или могут быть оценены из спектроскопических данных [168].

Рассмотрим оператор

$$\hat{V}(\mathbf{r}, t) = \exp\left(-i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r}\right) \quad (34)$$

и состояния $|\varphi_n\rangle = \hat{V}^{-1}|u_n\rangle$. Они являются решением краевой задачи "об атоме в поле" вида:

$$\left[\frac{1}{2m} \left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t) \right)^2 + U(\mathbf{r}) \right] \varphi_n(\mathbf{r}, t) = E_n \varphi_n(\mathbf{r}, t) \quad (35)$$

с граничными условиями, совпадающими с граничными условиями краевой задачи (33) в пределе $\mathbf{A}(t) \rightarrow 0$.

Как было уже отмечено выше, оператор полной энергии $\hat{E} = (1/2m)(\hat{\mathbf{p}} - (q/c)\mathbf{A})^2 + V$ является инвариантным относительно калибровки. При этом в калибровке скорости он является оператором Гамильтона \hat{H} при наличии лазерного поля, а в калибровке длины — оператором Гамильтона \hat{H}_0 в отсутствие лазерного поля. Поэтому:

$$\langle \varphi_n | \hat{H} | \varphi_n \rangle = \langle u_n | \hat{H}_0 | u_n \rangle = E_n. \quad (36)$$

Таким образом, состояния $|\varphi_n\rangle$ являются собственными функциями оператора \hat{H} с теми же собственными значениями E_n , что и собственные значения оператора \hat{H}_0 . Как несложно показать, состояния $|\varphi_n\rangle$ являются ортогональными и образуют базис в гильбертовом пространстве. В координатном представлении волновые функции $\{\varphi_n(\mathbf{r}, t)\}$ и $\{u_n(\mathbf{r})\}$ связаны между собой следую-

щим образом:

$$\varphi_n(\mathbf{r}, t) = \sum_m (V^{-1})_{nm}(t) u_m(\mathbf{r}), \quad (37a)$$

$$u_n(\mathbf{r}) = \sum_m V_{nm}(t) \varphi_m(\mathbf{r}, t), \quad (37б)$$

$$V_{nm}(t) = \int u_n^*(\mathbf{r}) \exp\left(-i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r}\right) u_m(\mathbf{r}) d^3 \mathbf{r}. \quad (37в)$$

При решении уравнения (1), если использовать базис $\{\varphi_n(\mathbf{r}, t)\}$ для разложения волновой функции $\psi(\mathbf{r}, t)$, при вычислении производной $\partial\psi/\partial t$ будут возникать слагаемые $\partial\varphi_n/\partial t$, которые уже, вообще говоря, не ортогональны функции $\varphi_n(\mathbf{r}, t)$. Поэтому удобнее всего раскладывать $\psi(\mathbf{r}, t)$ по базису $\{u_n(\mathbf{r})\}$. После постановки в уравнение (1) получим систему обыкновенных дифференциальных уравнений 1-го порядка для амплитуд населённостей уровней:

$$\frac{da_n}{dt} = -\frac{i}{\hbar} \sum_{m,p} V_{nm}^{-1}(t) E_m V_{mp}(t) a_p(t). \quad (38)$$

В случае сильного возбуждения атомов, когда необходимо учитывать также переходы электронов на уровни из непрерывного спектра, разложение волновой функции по базису $\{u_n(\mathbf{r})\}$ следует дополнить линейной комбинацией волновых функций из непрерывного спектра (l — угловой момент):

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n(t) u_n(\mathbf{r}) + \sum_l \int a(k, l, t) u(k, l, \mathbf{r}) dk. \quad (39)$$

При этом система обыкновенных дифференциальных уравнений на амплитуды населённостей уровней $a_n(t)$ усложняется:

$$\begin{aligned} \frac{da_n}{dt} = & -\frac{i}{\hbar} \sum_{m,p} V_{nm}^{-1}(t) E_m V_{mp}(t) a_p(t) - \frac{i}{\hbar} \sum_{m,l} \int dk V_{nm}^{-1}(t) \times \\ & \times E_m V_{m(kl)}(t) a(k, l, t) - i \sum_{p,l} \int dk V_{n(kl)}^{-1}(t) \frac{\hbar k^2}{2m_e} \times \\ & \times V_{(kl)p}(t) a_p(t) - i \sum_{l_1, l_2} \int dk_1 \int dk_2 V_{n(k_1 l_1)}^{-1}(t) \frac{\hbar k_1^2}{2m_e} \times \\ & \times V_{(k_1 l_1)(k_2 l_2)}(t) a(k_2, l_2, t). \end{aligned} \quad (40)$$

Здесь учтены различные комбинации переходов (Д — дискретный уровень, К — континуумный уровень): Д — Д — Д (первое слагаемое в правой части), Д — Д — К (второе слагаемое), Д — К — Д (третье слагаемое), Д — К — К (четвёртое слагаемое). Аналогичным образом записываются уравнения на амплитуды населённостей $a(k, l, t)$ континуумных уровней (учитываются переходы К — Д — Д, К — Д — К, К — К — Д и К — К — К):

$$\begin{aligned} \frac{da(k, l, t)}{dt} = & -\frac{i}{\hbar} \sum_{m,p} V_{(kl)m}^{-1}(t) E_m V_{mp}(t) a_p(t) - \\ & - \frac{i}{\hbar} \sum_{m, l_1} \int dk_1 V_{(kl)m}^{-1}(t) E_m V_{m(k_1 l_1)}(t) a(k_1, l_1, t) - \\ & - i \sum_{l_1, p} \int dk_1 V_{(kl)(k_1 l_1)}^{-1}(t) \frac{\hbar k_1^2}{2m_e} V_{(k_1 l_1)p}(t) a_p(t) - \\ & - i \sum_{l_1, l_2} \int dk_1 \int dk_2 V_{(kl)(k_1 l_1)}^{-1}(t) \frac{\hbar k_1^2}{2m_e} V_{(k_1 l_1)(k_2 l_2)}(t) \times \\ & \times a(k_2, l_2, t). \end{aligned} \quad (41)$$

Заметим, что система уравнений (40) и (41) содержит в себе в общем случае бесконечное количество уравнений, определяющих динамику амплитуд населённостей как дискретного, так и непрерывного спектра атома. Конечно же для численного решения полученной системы количество уравнений необходимо ограничить. Количество состояний, которое необходимо учитывать, зависит как от параметров лазерного поля, так и от самой энергетической структуры атома. Ограничение количества уровней естественным образом делает базис $\{u_n(\mathbf{r})\}$ неполным. Однако существует способ определить, насколько оставшийся, усечённый базис является полным.

Рассмотрим величину

$$S_n^{(N)} = \sum_{m=1}^N |V_{nm}|^2. \quad (42)$$

Если учитывать весь бесконечный набор собственных функций, то, как следует из определения матричных элементов V_{nm} , величина (42) должна быть равна единице: $S_n^{(\infty)} = 1$. Ограничение базиса $\{u_n(\mathbf{r})\}$ приводит к уменьшению величины $S_n^{(N)}$. Поэтому, добавляя в рассмотрение дополнительные уровни и добиваясь малого отличия $S_n^{(N)}$ от единицы для всех рассматриваемых уровней, можно считать усечённый базис полным.

Заметим также, что квантово-механический подход, представленный выше, позволяет учесть многоквантовость процесса возбуждения атома лазерным полем. Действительно, разлагая оператор $\hat{V}(\mathbf{r}, t)$ в ряд по степеням поля, получим бесконечную сумму все возрастающих порядков многоквантовости (при малости взаимодействия электрона с лазерным полем):

$$\hat{V}(\mathbf{r}, t) = \exp\left(-i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r}\right) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \left(-i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r}\right)^k. \quad (43)$$

Рассмотрим вопрос генерации излучения возбуждённым атомом. Динамика амплитуд населённостей уровней энергии формирует микроскопическую плотность тока атома:

$$\begin{aligned} \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = & \frac{q}{2m} \left[\psi^*(\mathbf{r}, t) \left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t)\right) \psi(\mathbf{r}, t) + \right. \\ & \left. + \psi(\mathbf{r}, t) \left(\left(\mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t)\right) \psi(\mathbf{r}, t)\right)^* \right], \end{aligned} \quad (44)$$

которая с учётом (39) и (37), сводится к четверной сумме (для простоты рассмотрим только связанные состояния):

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \frac{q}{m_e} \sum_{n,k,p,m} a_n^*(t) V_{nk}^{-1}(t) u_k^*(\mathbf{r}) \mathbf{p} u_p(\mathbf{r}) V_{pm}(t) a_m(t). \quad (45)$$

Микроскопический ток атома является источником электрического и магнитного полей. В дальней зоне спектральная плотность интенсивности излучения будет равна [167]:

$$\frac{dI}{d\omega d\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{4c^3} \left| \int \left[\mathbf{j}(\mathbf{r}', \omega) \times \frac{\mathbf{r}}{r} \right] \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{r}) dV' \right|^2, \quad (46)$$

где k — волновой вектор поля излучения. В случае, когда $ka_0 \ll 1$ (a_0 — амплитуда колебаний электрона в лазерном поле) для всех частот генерируемого поля, спектральная интенсивность излучения пропорциональна макроскопическому току атома:

$$\frac{dI}{d\omega d\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{4c^3} \left| \left[\mathbf{J}(\omega) \times \frac{\mathbf{r}}{r} \right] \right|^2, \quad (47)$$

$$\mathbf{J}(\omega) = \int dV \int \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \exp(i\omega t) dt = \frac{q}{m} \sum_{n,k,p,m} \mathbf{p}_{kp} \times \int a_n^*(t) V_{nk}^{-1}(t) V_{pm}(t) a_m(t) \exp(i\omega t) dt. \quad (48)$$

В длинноволновом приближении матричные элементы \mathbf{p}_{kp} линейно связаны с матричными элементами оператора координаты [169]: $\mathbf{p}_{nm} = im_e \omega_{nm} \mathbf{r}_{nm}$, где $\omega_{nm} = (E_n - E_m)/\hbar$.

Помимо расчёта частотного спектра генерируемого атомом излучения, представленный подход позволяет также проанализировать угловой спектр излучения. Экспоненту $\exp(i(q/\hbar c)\mathbf{A}(t)\mathbf{r})$ оператора \hat{V}^{-1} можно разложить в ряд по сферическим гармоникам:

$$\exp\left(i\frac{q}{\hbar c}\mathbf{A}(t)\mathbf{r}\right) = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l i^l j_l\left(\frac{q}{\hbar c}A(t)r\right) Y_{lm}^*(\mathbf{e}(t)) Y_{lm}(\mathbf{n}), \quad (49)$$

где $\mathbf{e}(t) = \mathbf{A}(t)/A(t)$, $\mathbf{n} = \mathbf{r}/r$, Y_{lm} — сферическая функция, j_l — сферическая функция Бесселя. Разложим матричные элементы $V_{(n_1, l_1, m_1)(n_2, l_2, m_2)}^{-1}$ в ряд по сферическим функциям. Учитывая правила сложения угловых моментов [167], получим:

$$V_{(n_1, l_1, m_1)(n_2, l_2, m_2)}^{-1} = \sum_{l=|l_1-l_2|}^{l_1+l_2} \left\langle n_1 l_1 \left\| j_l \left(\frac{q}{\hbar c} A(t)r \right) \right\| n_2 l_2 \right\rangle \times \sum_{m=-l}^l Y_{lm}^*(\mathbf{e}(t)) C(lm | l_1 m_1, l_2 m_2), \quad (50a)$$

$$\left\langle n_1 l_1 \left\| j_l \left(\frac{q}{\hbar c} A(t)r \right) \right\| n_2 l_2 \right\rangle = \int_0^{\infty} R_{n_1 l_1}(r) j_l \left(\frac{q}{\hbar c} A(t)r \right) \times R_{n_2 l_2}(r) r^2 dr, \quad (50b)$$

$$C(lm | l_1 m_1, l_2 m_2) = (-1)^{m_1} i^{2l-l_1+l_2} \sqrt{4\pi(2l+1)(2l_1+1)(2l_2+1)} \times \begin{pmatrix} l_1 & l & l_2 \\ -m_1 & m & m_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & l & l_2 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (50b)$$

а $R_{n_1 l_1}(r)$ — радиальная часть водородной волновой функции.

Аналогично разложим матричный элемент $\mathbf{r}_{(n_1, l_1, m_1)(n_2, l_2, m_2)}$ в ряд по сферическим гармоникам:

$$\mathbf{r}_{(n_1, l_1, m_1)(n_2, l_2, m_2)} = \langle n_1 l_1 \| r \| n_2 l_2 \rangle (-1)^{m_1} i^{l_2-l_1} \times \sqrt{(2l_1+1)(2l_2+1)} \sum_{m=-1}^1 \mathbf{n}^{(m)} \times \begin{pmatrix} l_1 & 1 & l_2 \\ -m_1 & m & m_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & 1 & l_2 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (51)$$

Подставим выражения (50) и (51) в (48) и после преобразований получим угловой спектр матричного элемента плотности тока:

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_{(n_1, l_1, m_1)(n_2, l_2, m_2)} &= 4\pi q i^{1-l_1+l_2} \sqrt{(2l_1+1)(2l_2+1)} \times \\ &\times \sum_{n_3 l_3} \sum_{n_4 l_4} (\omega_{n_3 l_3} - \omega_{n_4 l_4}) (2l_3+1)(2l_4+1) \times \\ &\times \sum_{l=|l_1-l_3|}^{l_1+l_3} \sum_{l'=|l_2-l_4|}^{l_2+l_4} \sqrt{(2l+1)(2l'+1)} \times \\ &\times \langle n_1 l_1 \| j_l \| n_3 l_3 \rangle \langle n_3 l_3 \| r \| n_4 l_4 \rangle \langle n_4 l_4 \| j_{l'} \| n_2 l_2 \rangle \times \\ &\times \begin{pmatrix} l_1 & l & l_3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_3 & 1 & l_4 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_4 & l' & l_2 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times \\ &\times \sum_{m=-1}^1 \sum_{m_3=-l_3}^{l_3} (-1)^{l'-m_2+m_3} Y_{l(m_3-m_1)}(\mathbf{e}) \mathbf{n}^{(m)} \times \\ &\times Y_{l'(m_3-m_2-m)}(\mathbf{e}) \times \\ &\times \begin{pmatrix} l_1 & l & l_3 \\ -m_1 & m_1-m_3 & m_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_3 & 1 & l_4 \\ -m_3 & m & m_4 \end{pmatrix} \times \\ &\times \begin{pmatrix} l_4 & l & l_2 \\ -m_4 & m_2-m_3+m & m_2 \end{pmatrix}, \quad (52) \end{aligned}$$

где для краткости используется обозначение $j_l = j_l((q/\hbar c)A(t)r)$.

Таким образом, представленный выше квантово-механический подход позволяет рассчитывать частотно-угловой спектр излучения, генерируемого атомом, помещённым в лазерное поле. Этот подход находится вне рамок теории возмущений и остаётся справедливым вплоть до релятивистских интенсивностей лазерного поля $I \ll 1,3 \times 10^{18} / \lambda^2$ [мкМ] Вт см⁻². При этом используется длинноволновое приближение, т.е. не рассматривается пространственная неоднородность пучка по интенсивности. Непертурбативность подхода и возможность исследовать отклик атомов на высокоинтенсивные поля обусловлена специальным выбором базиса волновых функций электрона (35), (36). Матричные элементы $V_{nm}(t)$ могут быть рассчитаны в аналитическом виде для атома водорода и водородоподобных атомов, либо численно для модельного атома при любом заданном векторном потенциале лазерного поля $\mathbf{A}(t)$, что делает непертурбативный подход уникальным аналитическим и численным методом для исследования особенностей взаимодействия атомов с лазерным излучением. В последующих разделах представлены результаты по некоторым применениям данного подхода.

3. Генерация гармоник в газах — отклик атома в дальней зоне

3.1. Возбуждение одночастотным лазерным полем

Обсуждение результатов численных расчётов, полученных в рамках непертурбативной квантово-механической теории [162], целесообразно начать с описания отклика одиночного атома на воздействие одночастотного фем-

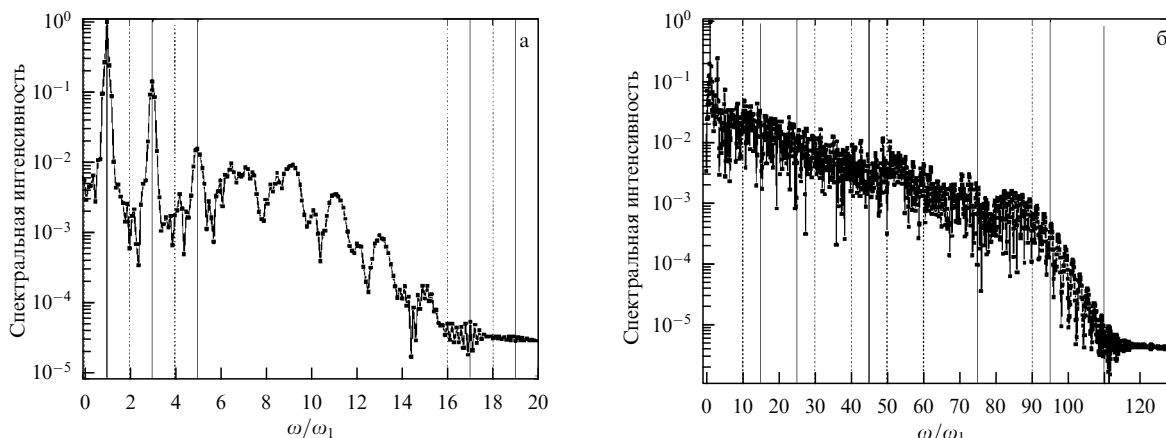


Рис. 4. Спектр отклика водородоподобного атома (на примере атома серебра), вычисленный при взаимодействии атома с полем: (а) $\mu_0 = 0,025$, (б) $\mu_0 = 0,08$. Частота ω на горизонтальной оси приведена в единицах частоты лазерного поля ω_1 . Спектральная интенсивность здесь и далее приведена в относительных единицах [170].

тосекундного лазерного импульса. Опишем влияние параметров лазерного поля на эффективность генерации гармоник.

Рассмотрим отклик водородоподобного атома, взаимодействующего с одночастотным импульсом Ti:Sa лазера (длина волны 800 нм, гауссовский профиль с длительностью 27 фс, спектрально-ограниченный импульс).

Для дальнейшего рассмотрения удобно ввести параметр μ_0 , связывающий между собой напряжённость и длину волны лазерного излучения:

$$\mu_0 = \frac{qE_0 a_B}{\hbar\omega_0}. \quad (53)$$

Параметр μ_0 можно представить в виде отношения силы, действующей на электрон со стороны внешнего поля $F_0 = qE_0$, и "внутриатомной силы" $F_{at} = \hbar\omega_0/a_B$. Также заметим, что, как следует из (17), для атома водорода параметр μ_0 обратно пропорционален параметру Кельдыша γ : $\mu_0 = 1/\gamma$.

В полях существенно субатомной напряжённости $\mu_0 \ll 10^{-4}$ спектр поля отклика атома содержит лишь компоненту на частоте воздействующего импульса, т.е. отклик атома является линейным и не содержит гармоник несущей частоты лазерного импульса. При увеличении напряжённости поля лазерного импульса в спектре отклика появляются нечётные гармоники частоты лазерного импульса, величина амплитуды которых резко падает с ростом номера гармоники — пертурбативный режим генерации гармоник. При напряжённости поля лазерного импульса $\mu_0 \approx 10^{-2}$ профиль спектра отклика атома начинает изменяться. Ширина спектра отклика атома увеличивается, в спектре отклика появляется плато с ярко выраженной частотой отсечки (рис. 4а). Дальнейший рост напряжённости поля приводит ко все более явному проявлению указанных тенденций: ширина плато значительно увеличивается, а частота отсечки становится более контрастной (рис. 4б).

При этом зависимость частоты отсечки от интенсивности лазерного излучения (т.е. по сути от μ_0^2), не является монотонно возрастающей функцией, а насыщается при интенсивности около 10^{14} Вт см $^{-2}$ (рис. 5).

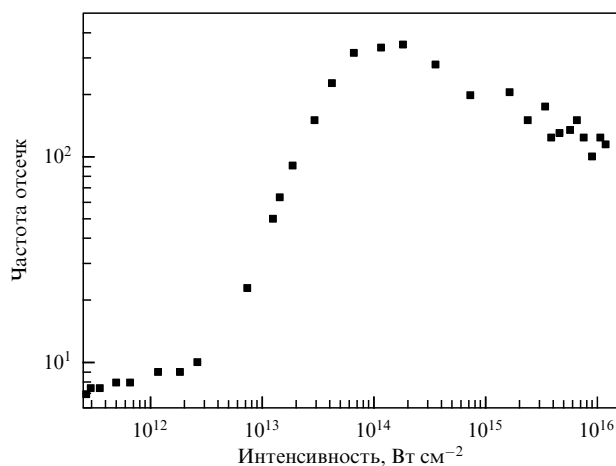


Рис. 5. Зависимость частоты отсечки от интенсивности лазерного излучения, вычисленная для атома серебра [170].

3.2. Возбуждение двухчастотным линейно поляризованным лазерным полем

Обратимся теперь к обсуждению отклика одиночного атома на воздействие двухчастотного лазерного поля, представленного основной и второй гармониками Ti:Sa лазера с параметрами: интенсивность компонент $\mu_{01} = 0,1$, $\mu_{02} = 0,1$, длительность $\tau = \tau_2 = 26,6$ фс, угол между поляризациями компонент $\theta = \pi/2$, временная задержка между импульсами $t_{12} = 0$, линейные chirпы компонент поля $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$. Влияние основных параметров такого поля (интенсивность компонент, их длительность, угол между поляризациями и временная задержка) на вид спектра отклика атома показано на рис. 6. В каждом из представленных сравнительных спектров варьируется один из параметров поля при сохранении неизменными остальных параметров.

На рисунке 6а представлены спектры, рассчитанные для трёх значений амплитуды второй гармоники: $\mu_{02} = 0$ (чёрная кривая с квадратами), $\mu_{02} = 0,01$ (красная кривая с кружками), $\mu_{02} = 0,1$ (синяя кривая с треугольниками). Спектр, рассчитанный для $\mu_{02} = 0$, состоит из нечётных гармоник поля. Чётные гармоники спектра, рассчитанного для $\mu_{02} = 0,01$, меньше нечётных гармоник. Интенсивности чётных и нечётных гармоник поля

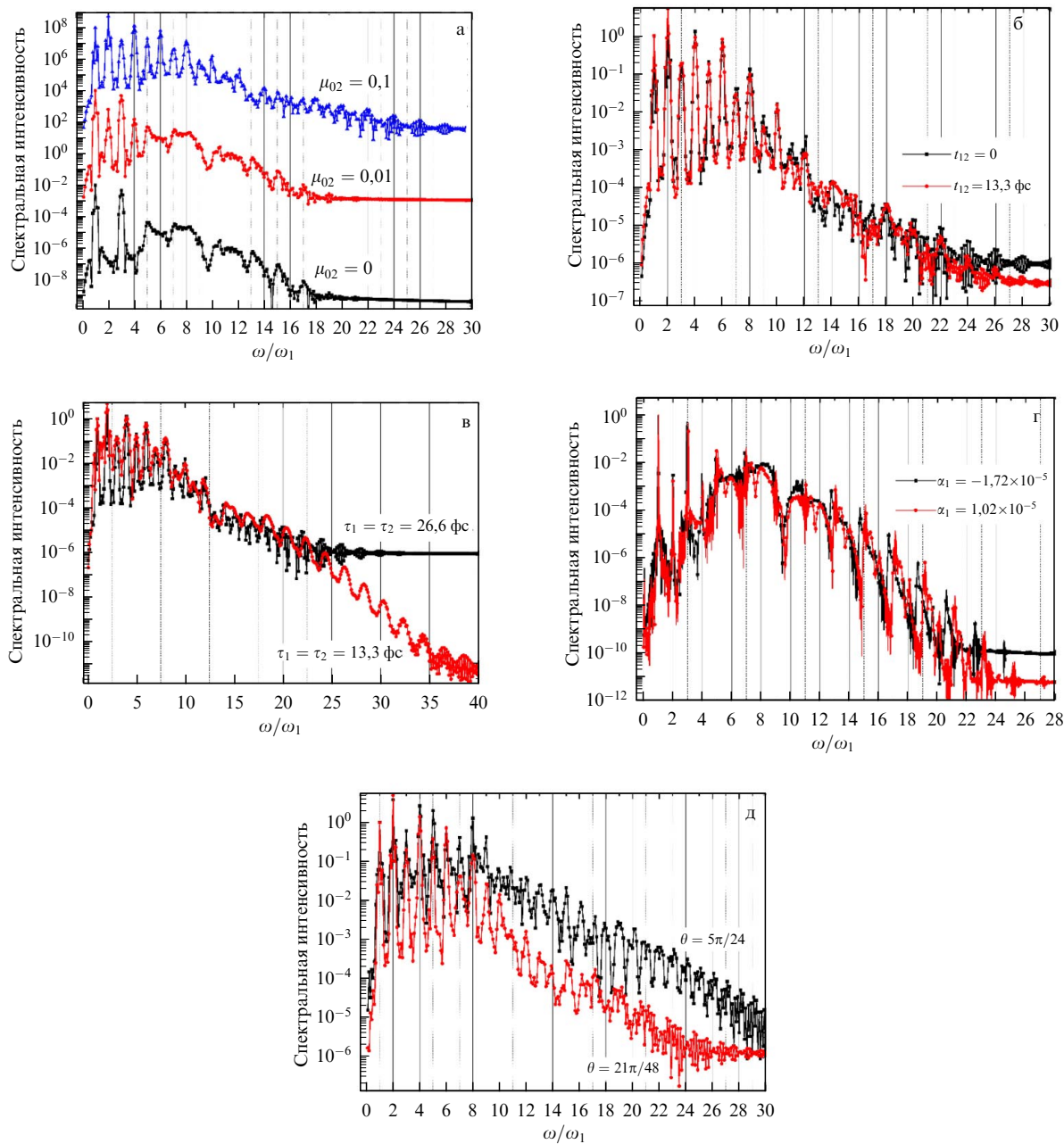


Рис. 6. Спектры отклика атома аргона, взаимодействующего с двухчастотным лазерным полем, образованным линейно поляризованными первой и второй гармониками Тi:Са лазера: (а) $\mu_{02} = 0$ (чёрная кривая с квадратами), $\mu_{02} = 0,01$ (красная кривая с кружками), $\mu_{02} = 0,1$ (синяя кривая с треугольниками); (б) $t_{12} = 13,3$ фс (красная кривая с кружками) и $t_{12} = 0$ фс (чёрная кривая с квадратами); (в) $\tau_1 = \tau_2 = 26,6$ фс (чёрная кривая с квадратами), $\tau_1 = \tau_2 = 13,3$ фс (красная кривая с кружками); (г) $\alpha_1 = 1,02 \times 10^{-5}$ (красная кривая с кружками), $\alpha_1 = -1,72 \times 10^{-5}$ (чёрная кривая с квадратами); (д) $\theta = 5\pi/24$ (чёрная кривая с квадратами), $\theta = 21\pi/48$ (красная кривая с кружками). Остальные недостающие параметры расчётов имеют значения из общего набора: $\mu_{01} = 0,1$, $\mu_{02} = 0,1$, $\tau_1 = \tau_2 = 26,6$ фс, $\theta = \pi/2$, $t_{12} = 0$ фс, $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ [171].

становятся соразмерными при дальнейшем увеличении поля (см. синюю кривую с треугольниками на рис. 6а). Важно отметить, что ширина спектра в последнем случае больше (по сравнению с предыдущими случаями). Это связано как с дополнительным нарушением симметрии поля, которое обычно возникает в двухчастотных лазерных полях и является причиной генерации чётных гармоник поля, так и с возрастанием общей нелинейности отклика атома за счёт большей энергии лазерного поля. Указанная динамика относительных интенсивностей чётных и нечётных гармоник вполне предсказуема.

Влияние временной задержки между импульсами на спектры отклика атома показано на рис. 6б, где сравниваются спектры, полученные при задержке $t_{12} = 13,3$ фс (красная кривая с кружками) и $t_{12} = 0$ фс (чёрная кривая с квадратами). Расчёты показывают, что временная задержка между импульсами слабо меняет форму спектра, если время задержки меньше, чем временная ширина импульса (существует только небольшая разница в области высоких гармоник, $N \geq 20$).

Влияние длительности импульсов на спектры отклика атома показано на рис. 6в: чёрной кривой с квадратами обозначен спектр отклика, рассчитанный при $\tau_1 = \tau_2 =$

= 26,6 фс, красной кривой с кружками — при $\tau_1 = \tau_2 = 13,3$ фс. Видно, что из-за большей спектральной ширины импульсов при меньшей временной длительности ширина гармоник, рассчитанных для $\tau_1 = \tau_2 = 13,3$ фс, больше ширины гармоник, рассчитанных для $\tau_1 = \tau_2 = 26,6$ фс. Ввиду большой спектральной ширины, в высокочастотной части спектров отклика атома чётные и нечётные гармоники "сливаются", образуя спектр, похожий на спектр суперконтинуума. Вместе с тем, в спектре отклика атома, рассчитанного для более длинных лазерных импульсов, чётные и нечётные гармоники могут быть спектрально разрешены во всем наблюдаемом спектральном диапазоне.

Влияние chirpa на спектр отклика атома показано на рис. 6б: красная кривая с кружками соответствует положительному chirпу основной гармоники $\alpha_1 = 1,02 \times 10^{-5}$, а чёрная кривая с квадратами — отрицательному chirпу $\alpha_1 = -1,72 \times 10^{-5}$. Вторая гармоника двухчастотного поля предполагалась нечирпированной. Расчёты показывают, что влияние chirpa поля наиболее сильное в коротковолновой части генерируемого спектра отклика атома и состоит в небольшом изменении частоты гармоники.

На рисунке 6б представлены спектры отклика атома, рассчитанные для двух разных углов между направлениями поляризаций падающих лазерных импульсов основной и второй гармоник: $\theta = 5\pi/24$ (чёрная кривая с квадратами), $\theta = 21\pi/48$ (красная кривая с кружками). Оба спектра содержат как чётные, так и нечётные гармоники лазерного поля. Можно видеть, что интенсивность гармоник с номером $N \geq 10$ отличается друг от друга до нескольких порядков. Таким образом, изменение ориентации векторов поляризации падающих импульсов является одним из наиболее эффективных методов управления параметрами гармоник высокого порядка. Важно отметить, что изменение угла между компонентами двухчастотного поля не меняет общую энергию двухчастотного поля, а лишь перераспределяет её в плоскости поляризации. Причина столь значительного изменения параметров состоит в зависимости матричных элементов оператора $\hat{V}(50)$ и матричных элементов тока атомного отклика (52) от угла между поляризациями двухчастотного лазерного поля.

Дополнительная иллюстрация эффективности метода контроля поляризации приведена на рис. 7, где показана зависимость спектральной интенсивности 6-й (чёрная кривая с квадратами), 9-й (красная кривая с кружками), а также 10-й (синяя кривая со звёздочками) гармоник от угла между векторами поляризаций компонент двухчастотного лазерного поля, параметры которого аналогичны таковым для результатов, представленных на рис. 6. Видно, что интенсивности гармоник зависят нелинейно и немонотонно от угла между векторами поляризации. Следовательно, путём изменения этого угла, можно оптимизировать эффективность генерации выделенных гармоник или групп гармоник.

Как уже было отмечено в разделе 1, фундаментальный и практический интерес имеет поляризационное состояние генерируемых гармоник высокого порядка. Непертурбативный подход позволяет для каждой гармоники получить распределение её комплексной амплитуды в пространстве, которое в общем случае будет иметь три ненулевые проекции на ортогональные оси. Вместе с тем, в результатах, представленных ниже, предполагается,

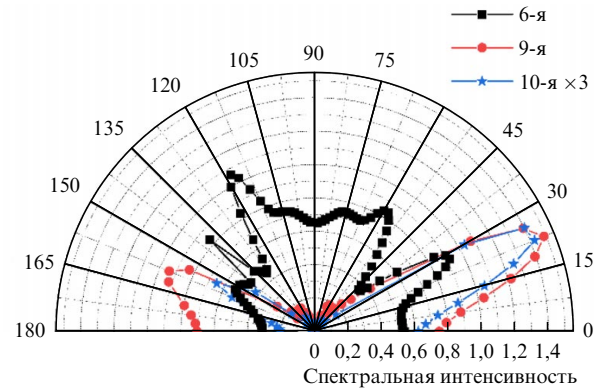


Рис. 7. Эффективность генерации 6-й (чёрная кривая с квадратами), 9-й (красная кривая с кружками) и 10-й гармоник (синяя кривая со звездочками) гармоник в зависимости от угла между векторами поляризации основной и второй гармоник Ti:Sa лазера. Параметры поля: $\mu_{01} = 0,1$, $\mu_{02} = 0,1$, $\tau_1 = \tau_2 = 26,6$ фс, $t_{12} = 0$ фс, $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$. Интенсивность 10-й гармоники умножена на коэффициент 3 для более наглядного представления [171].

что направление поляризации основной гармоники и направление углового момента атома совпадают, а лазерное поле представляет собой плоскую волну. Это означает, что поляризация генерируемого излучения распределена в плоскости xz : $\mathbf{E} = E_{x0} \exp(i\delta_x) \mathbf{e}_x + E_{z0} \exp(i\delta_z) \mathbf{e}_z$. Обозначим $\chi = E_{x0}/E_{z0} \exp(i(\delta_x - \delta_z))$, тогда эллиптичность ε излучения и угол наклона эллипса могут быть вычислены с использованием следующих формул:

$$\varepsilon = \tan \left[\frac{1}{2} \arcsin \left(2 \frac{E_{x0}}{E_{z0}} \frac{\sin(\delta_x - \delta_z)}{1 + |E_{x0}/E_{z0}|^2} \right) \right], \quad (54)$$

$$\tan(2\theta) = 2 \frac{E_{x0}}{E_{z0}} \frac{\cos(\delta_x - \delta_z)}{1 - |E_{x0}/E_{z0}|^2}. \quad (55)$$

Приведём некоторые результаты численных исследований поляризационных свойств гармоник высокого порядка в двухчастотных ортогонально поляризованных полях низкой интенсивности, взаимодействующих с атомом неона. Соответствующий эксперимент был поставлен в работе [172], в которой низкая интенсивность лазерного излучения ($I(\omega) \sim I(2\omega) \sim 10^{13}$ Вт см $^{-2}$) была выбрана для того, чтобы населённость основного состояния атома ($2p$) сильно не изменялась в процессе взаимодействия с лазерным полем. Результатом такого взаимодействия должна быть генерация гармоник, каждая из которых обладает линейной поляризацией (эллиптичность близка к нулю), причём направление поляризации чётных гармоник совпадает с направлением поляризации излучения второй гармоники, а направление поляризации нечётных гармоник совпадает с направлением поляризации основной гармоники поля. Результаты численных исследований для значений параметров $\tau_1 = \tau_2 = 38$ фс, $\theta = \pi/2$, $t_{12} = 0$ фс представлены на рис. 8. Даже при максимуме огибающей лазерного поля, населённость основного состояния намного больше, чем населённость всех возбуждённых состояний (не показано на рисунке). При этом спектр отклика атома содержит линейно поляризованные нечётные и чётные гармоники. Результаты численных расчётов демонстрируют хорошее совпадение с экспериментальными исследованиями [172].

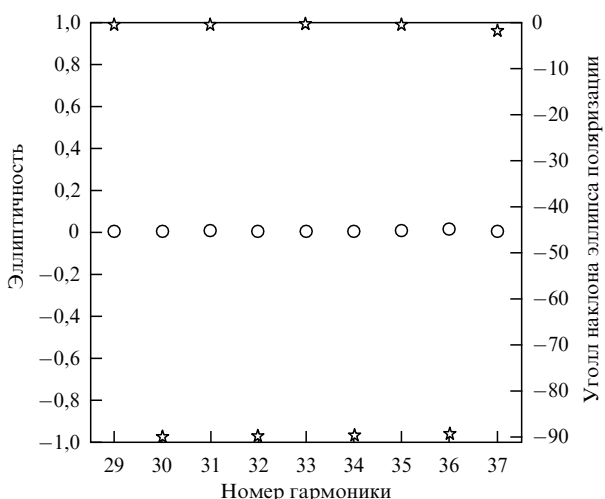


Рис. 8. Эллиптичность гармоник высокого порядка при низком возбуждении атома лазерным полем [165]. Параметры двухчастотного лазерного поля соответствуют экспериментальной работе [172].

Теперь обратимся к интенсивным двухчастотным (основная и вторая гармоника Ti:Sa лазера) ортогонально поляризованным лазерным полям и исследуем генерацию гармоник высокого порядка (спектральную интенсивность и эллиптичность) в этом случае. В численных расчётах [165] интенсивность компонент двухчастотного поля составляла величину $\sim 10^{14}$ Вт см⁻², а длительности импульсов $\tau_1 = \tau_2 = 42$ фс. В экспериментальной установке [82], соответствующей этому численному расчёту, лазерное излучение на основной частоте Ti: Sa-лазера фокусировалось внутрь газовой струи длиной 5 мм, заполненной неонам, находящимся под давлением 40 мбар. После линзы непосредственно внутри лазерного пучка помещался кристалл ВВО (двух разных толщин: 100 мкм и 250 мкм), находящийся в положении идеального фазового синхронизма для генерации второй гармоники. После кристалла возникало двухчастотное лазерное поле (основная и вторая гармоники) с линейно поляризованными компонентами, направления поляризации которых составляют угол $\theta = \pi/2$, обладающими фазовым сдвигом $\Delta\varphi = \pi/2$ относительно

друг друга и ненулевой временной задержкой между импульсами $t_{12} = 14$ фс и $t_{12} = 42$ фс (меньшая задержка соответствует более тонкому кристаллу). Различная толщина используемого кристалла ВВО приводит к различным абсолютным и относительным интенсивностям полей основной и второй гармоник вследствие различных длин нелинейного взаимодействия: $I(\omega) = 1,5 \times 10^{14}$ Вт см⁻² и $I(2\omega) = 1,3 \times 10^{13}$ Вт см⁻² для 100 мкм; $I(\omega) = 3 \times 10^{14}$ Вт см⁻² и $I(2\omega) = 0,4 \times 10^{14}$ Вт см⁻² для 250 мкм.

На рисунке 9 представлены результаты численных расчётов спектров отклика атома неона (точки) и экспериментальных измерений основных характеристик гармоник (линии). Для каждой характеристики нечётные и чётные гармоники представлены отдельно для наглядности. Сплошные чёрные кривые и чёрные квадраты соответствуют толщине кристалла ВВО 100 мкм, а штриховые красные линии и красные точки — толщине 250 мкм. Видно, что рассчитанные теоретически и измеренные экспериментально величины эллиптичности гармоник высокого порядка и их спектральных интенсивностей близки друг к другу. При расчёте интенсивности гармоник были учтены условия фазового синхронизма для основной и второй гармоник [173], а также пропускание генерируемых гармоник через газ и фильтры (в экспериментальной схеме использовался алюминиевый фильтр, содержащий 2×10 нм Al₂O₃).

На примере исследования эллиптичности излучения гармоник высокого порядка выше показано хорошее соответствие моделирования и экспериментальных измерений. Следовательно, непертурбативная теория взаимодействия одиночного атома с лазерным полем даёт надёжное описание наблюдаемых явлений, и с помощью неё можно определить природу генерации эллиптически поляризованных гармоник, возникающих при воздействии двухчастотных ортогонально поляризованных лазерных полей.

Согласно (52), направление ориентации атомного тока зависит от ориентации дипольного момента атома, который по сути является квантово-механическим средним радиус-вектором атомного электрона. С другой стороны, матричные элементы $V_{mn}(t)$ зависят от взаимной ориентации поля лазерного импульса и углового момента атомного электрона. Следовательно, атомный

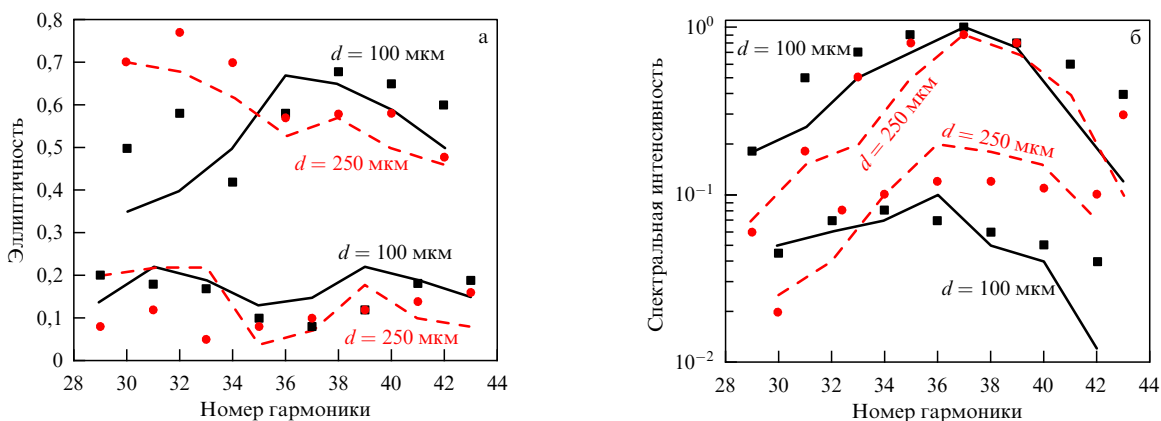


Рис. 9. Измеренные (сплошные линии) и численно рассчитанные (квадраты и точки) эллиптичность (а) и спектральная интенсивность (б) гармоник нечётного и чётного порядков для кристалла ВВО толщиной 100 мкм (чёрные сплошные кривые и чёрные квадраты) и толщиной 250 мкм (красные штриховые кривые и красные точки) [165].

ток в тензорной форме зависит от направления вектора поляризации лазерного поля и углового момента атома, ориентация которого определяет ориентацию матричных элементов \mathbf{d}_{mm} .

В субатомных лазерных полях основное состояние $|0\rangle$ наиболее населено, поэтому атомный ток может быть приближенно записан в следующем виде:

$$\mathbf{J}(t) \approx \langle 0|\mathbf{j}|0\rangle = i \sum_{n_1 l_1 m_1} \sum_{n_2 l_2 m_2} (\omega_{n_1 l_1 m_1} - \omega_{n_2 l_2 m_2}) \times \\ \times \langle 0|\hat{V}^{-1}|n_1 l_1 m_1\rangle \langle n_1 l_1 m_1|\mathbf{d}|n_2 l_2 m_2\rangle \langle n_2 l_2 m_2|\hat{V}|0\rangle, \quad (56)$$

где было положено $a_{nlm} \approx \delta_{n0}\delta_{l0}$.

Основное состояние атома неона — $2p = |0\rangle = |n=2, l=1\rangle$, которое имеет три подуровня, отвечающих различным значениям $m = \{0, \pm 1\}$. Выделим в (56) явно зависимость от магнитного квантового числа и для краткости будем обозначать матричные элементы тока как $\langle m_1|\mathbf{j}|m_2\rangle$:

$$\langle 0|\mathbf{j}|0\rangle = \sum_{m_1 m_2} \langle 2, 1, m_1|\mathbf{j}|2, 1, m_2\rangle = \sum_{m_1 m_2} \langle m_1|\mathbf{j}|m_2\rangle. \quad (57)$$

В субатомной области напряжённости лазерного поля эта зависимость имеет вид $\langle n_1 l_1 |j|n_2 l_2\rangle \sim \mu_0^{|l_1-l_2|}$. Правила отбора дипольных матричных элементов требуют, чтобы $l_1 - l_2 = \pm 1$. В результате даже в субатомной области напряжённости лазерного поля, где в основном населено основное состояние, атомный ток (56) из-за суммирования по $(n_1 l_1 m_1)$ и $(n_2 l_2 m_2)$ включает вклады всех других атомных состояний. Учтём при расчёте (56) вклады уровней $3s = |1\rangle$ и $3d = |2\rangle$ — низших уровней, связанных с основным состоянием $2p = |0\rangle$ дипольно-разрешёнными переходами.

Сумма диагональных матричных элементов тока (57) равна:

$$\sum_{m=-1}^{+1} \langle m|\mathbf{j}|m\rangle = -\frac{2}{5} \times \\ \times \left(5\omega_1 d_{10} \langle 1|j_1(z)|2\rangle [\langle 1|j_0(z)|1\rangle - 2\langle 1|j_2(z)|1\rangle] + \right. \\ \left. + 2\omega_2 d_{12} \left[\begin{array}{l} 5\langle 1|j_0(z)|1\rangle \langle 1|j_1(z)|2\rangle - \\ -\langle 1|j_2(z)|1\rangle \langle 1|j_1(z)|2\rangle - \\ -9\langle 1|j_3(z)|2\rangle \end{array} \right] \right) \times \\ \times ((\mathbf{e}_x \cos \varphi + \mathbf{e}_y \sin \varphi) \sin \theta + \mathbf{e}_z \cos \theta), \quad (58)$$

где \mathbf{e}_a являются единичными векторами осей в атомном конфигурационном пространстве, т.е. в декартовой системе координат, в которой ось z совпадает с направлением момента количества движения атома. Углы θ и φ определяют ориентацию вектора поляризации лазерного поля:

$$\mathbf{e}(t) = \frac{\mathbf{A}(t)}{A(t)} (\mathbf{e}_x \cos \varphi + \mathbf{e}_y \sin \varphi) \sin \theta + \mathbf{e}_z \cos \theta. \quad (59)$$

Формулы (58) и (59) ясно показывают, что атомный ток и векторы поляризации гармоник в каждый момент времени следуют за вектором поляризации лазерного поля.

Таким образом, поляризационные свойства атомного тока (56), связанные с диагональными элементами матрицы (57), совпадают с поляризационными свойствами падающего лазерного поля. Например, если падающее лазерное поле является двухчастотным и состоит из ортогонально поляризованных компонент $\omega + 2\omega$, то поляризации нечётных и чётных гармоник будут взаимно ортогональны. Вектор поляризации нечётных (и соответственно, чётных) гармоник будет следовать за вектором поляризации излучения на частоте основной гармоники (и соответственно на частоте второй гармоники). Это связано с тем, что матричные элементы оператора дипольного момента имеют ненулевое значение только для переходов между состояниями противоположной чётности. Следовательно, матричные элементы оператора \hat{V} в формуле (56) $\langle 0|\hat{V}^{-1}|1\rangle$ и $\langle 2|\hat{V}^{-1}|0\rangle$ — функции противоположной чётности относительно $A(t)$. В результате правая часть (56) является произведением $\mathbf{A}(t)$ и чётной функции $A(t)$. Когда $\mathbf{A}(t) = \mathbf{e}_1 A_1(t) \cos \omega t + \mathbf{e}_2 A_2(t) \cos 2\omega t$, \mathbf{e}_1 и \mathbf{e}_2 ортогонально поляризованы, нечётные и чётные гармоники также становятся ортогонально поляризованными по отношению друг к другу. Такими же поляризационными свойствами будут обладать гармоники, генерируемые атомами с основным s -состоянием (атомы водорода, серебра и т.д.)

Сумма матричных элементов матрицы (57) с $\Delta m = \pm 1$ даёт нулевой вклад:

$$\langle 1|\mathbf{j}|0\rangle + \langle 0|\mathbf{j}|-1\rangle + \langle 0|\mathbf{j}|1\rangle + \langle -1|\mathbf{j}|0\rangle = 0. \quad (60)$$

Следует отметить, что, несмотря на то, что каждый член суммы в (60) не равен нулю и имеет поляризационную зависимость, отличную от представленной в (58), их сумма равна нулю. Это нулевое значение обусловлено причинами симметрии, и любое нарушение симметрии, например, путём добавления дополнительных внешних полей приведёт к ненулевому влиянию матричных элементов с $\Delta m = \pm 1$ и, как следствие, к генерации излучения, поляризация которого не совпадает с поляризацией лазерного поля.

Остальные компоненты матрицы (57) обладают поляризационными свойствами, которые кардинально отличаются от свойств падающего лазерного поля. Даже в случае атома Ne выражения для этих компонентов очень сложны, поэтому ниже представлена только функциональная зависимость проекции суммы этих матричных элементов на ось x в атомарном конфигурационном пространстве:

$$\mathbf{e}_x \left(\langle 1|\mathbf{j}|-1\rangle + \langle -1|\mathbf{j}|1\rangle - \sum_{m=-1}^{+1} \langle m|\mathbf{j}|m\rangle \right) = \\ = \sin \theta \left[(f_1(t) + f_2(t) \cos 2\theta) \cos \varphi + f_3(t) \cos 3\varphi \sin^2 \theta \right]. \quad (61)$$

Выражение (61) включает тригонометрические функции углов θ , φ и их произведения. Это приводит к резкому изменению состояния поляризации генерируемых гармоник по сравнению с лазерным полем.

Таким образом, приведённые рассуждения дают глубокое понимание физики происхождения высокой эллиптичности у генерируемых гармоник. В рамках теории взаимодействия лёгких атомов с полями, основанной на дипольном приближении, атомный отклик задаётся

правилами отбора для дипольных переходов. В то же время, в рамках непертурбативной теории отклик атома определяется матричными элементами оператора \hat{V} , который включает в себя все степени оператора \mathbf{r} (43). Поэтому начальное и конечное состояния каскадных переходов не подчиняются определённым правилам отбора. Эллиптичность гармоник в основном обусловлена матричными элементами атомного тока, которые наиболее необычны для подхода дипольного приближения. Например, в случае состояния $2p$ атома Ne эти матричные элементы связывают подуровни $m = +1$ и $m = -1$. Этот вывод является точным аналитическим результатом, полученным в предположении $a_{nlm} \approx \delta_{n0}\delta_{l0}$. В то же время, результаты численного моделирования, представленные выше, показывают, что, когда это предположение не выполняется, генерируются гармоники, обладающие высокой эллиптичностью. Следовательно, природа генерации гармоник в полях умеренной интенсивности такая же, как и в субатомных лазерных полях. Отметим, что численно рассчитанный атомный ток (56) включает, например, такое слагаемое:

$$(\omega_{2,1,-1} - \omega_{3,0,0}) \langle 3, 2, -2 | \hat{V}^{-1} | 2, 1, -1 \rangle \times \langle 2, 1, -1 | \mathbf{d} | 3, 0, 0 \rangle \langle 3, 0, 0 | \hat{V} | 4, 1, 1 \rangle. \tag{62}$$

С одной стороны, уровни, для переходов между которыми вычислены матричные элементы операторов \hat{V} и \mathbf{d} , связаны дипольно-разрешенными переходами. Но, с другой стороны, результирующий матричный элемент $\langle m_1 | \mathbf{j} | m_2 \rangle$ — это матричный элемент с $\Delta m = -3$. Однако это не означает, что другие переходы (и даже дипольно-запрещённые) не учитываются при расчёте суммарного тока атомного отклика. Все переходы между всеми состояниями учитываются с их собственным весом, который нелинейно зависит от напряжённости лазерного поля.

Отметим также, что проведенный анализ выполнен для плоских волн. Учёт фокусировки, влияние магнитного поля электромагнитной волны (особенно для интенсивных лазерных полей среднего ИК диапазона) может привести к "разбалансировке" вкладов переходов с $\Delta m = -1$ и $\Delta m = +1$, что приведёт к возрастанию эллиптичности генерируемого излучения.

3.3. Возбуждение двухчастотным циркулярно поляризованным лазерным полем

Одним из наиболее часто используемых в экспериментах методов генерации эллиптических гармоник высокого порядка является метод, основанный на взаимодействии газовых струй с двухчастотными лазерными полями, образованными циркулярно-поляризованными гармониками на основной и удвоенной частоте Ti:Sa лазера, обладающими противоположными спиральностями [96].

На рисунке 10 показаны результаты исследований свойств гармоник высокого порядка, генерируемых одиночным атомом Ne, взаимодействующим с описанным выше лазерным полем, параметры которого были выбраны такими, как в работе [96]. Численные расчёты хорошо совпадают с экспериментально наблюдаемыми особенностями: в спектре отклика атома наблюдается чередование одной слабоинтенсивной гармоники (третья, шестая, девятая и т.д.), за которой следуют две более интенсивные.

Для изучения природы генерации слабоинтенсивных гармоник исследуем зависимость их спектральной интенсивности от времени задержки между импульсами основной и второй гармоники лазерного поля (рис. 11). Хорошо видно, что эффективность генерации интенсивных гармоник не зависит от величины времени задержки (см. синюю кривую с треугольниками на рис. 11). Это ожидаемый результат, поскольку для двухчастотного лазерного поля, образованного циркулярно поляризованными основной и второй гармониками, вектор поляризации которых вращается в противоположных направлениях, изменение времени задержки приводит к простому вращению поля, вектор поляризации которого описывает кривую в форме трилистника (см. вставки на рис. 11). В результате не происходит изменения напряжённости лазерного поля (в отличие от случая двухчастотного линейно поляризованного лазерного поля при изменении времени задержки). При этом наблюдается сильная зависимость эффективности генерации малоинтенсивных гармоник при изменении времени задержки между компонентами двухчастотного поля (см. чёрную кривую с квадратами и красную кривую с кружками на рис. 11). Такая особенность связана с изменением взаимного расположения p -орбитали (основное состояние атома неона) и двухчастотного поля (см. левую и правую панели на рис. 11).

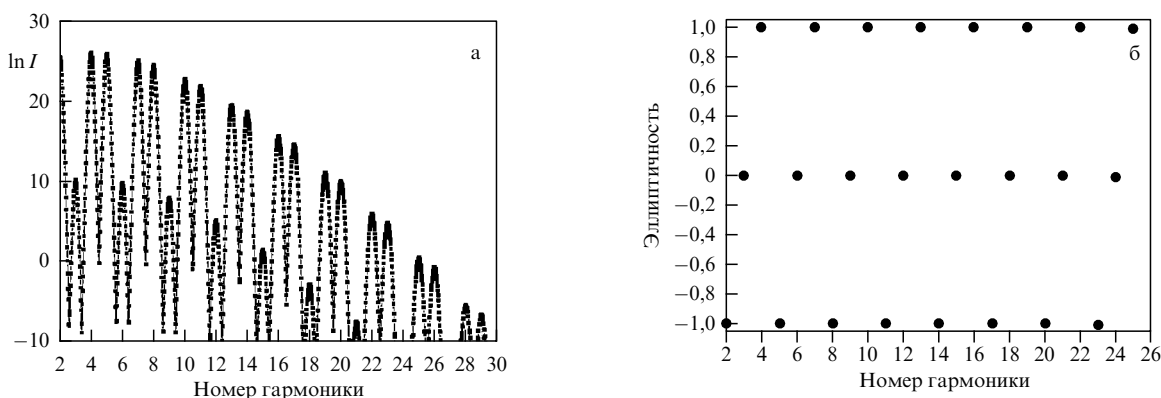


Рис. 10. Спектр отклика атома Ne (а) и значения эллиптичности (б), рассчитанные для двухчастотных лазерных полей, образованных циркулярно поляризованными основной и второй гармониками Ti:Sa лазера с противоположными спиральностями, для которых каждая компонента лазерного поля имеет интенсивность $\sim 10^{14}$ Вт см⁻² [174].

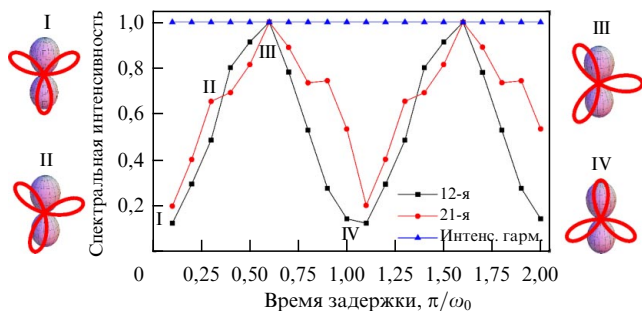


Рис. 11. Зависимости спектральной интенсивности слабоинтенсивных 12-й (чёрная кривая с квадратами) и 21-й (красная кривая с кругами) гармоник и интенсивных гармоник (синяя кривая с треугольниками) от величины времени задержки между импульсами основной и второй гармоник лазерного поля. На вставках схематично представлена взаимная ориентация вектора напряжённости лазерного поля и p -орбитали [174].

В разделе 3.2 было показано, что природой генерации эллиптически поляризованного излучения являются каскадные переходы с $\Delta m = \pm 2$, а также, что переходы с $\Delta m = \pm 1$ очень чувствительны к симметрии поля, поэтому любые модификации лазерного поля (т.е. дополнительные внешние поля и т.д.) изменяют свойства генерируемого излучения. В случае двухчастотного лазерного поля, образованного циркулярно поляризованными полями, вектора поляризации которых вращаются в противоположных направлениях, генерация слабоинтенсивных гармоник также происходит за счёт такого рода переходов. Это можно просто продемонстрировать в рамках "одноуровневого" приближения. На рисунке 12 показаны спектры сумм двух наборов (57): чёрная кривая с треугольниками показывает сумму компонент матрицы (57), соответствующих каскадным переходам с $\Delta m = \pm 2$, красная кривая с кружками — сумму остальных семи компонент матрицы (57). Часть тока, содержащая семь компонент матрицы (57), не имеет сигнала на месте слабоинтенсивных гармоник, а спектры суммы двух других компонент содержат сигнал на частотах всех гармоник. Следовательно, природа генерации слабоинтенсивных гармоник заключается в каскадных переходах с $\Delta m = \pm 2$. Величина слабоинтенсивных гармоник может быть изменена за счёт динамики амплитуд вероятностей атомных состояний. Последнее не учитывается в рамках "одноуровневых" приближений, но учитывалось при расчётах полного атомного тока (52) при получении результатов, представленных на рис. 10 и 11.

Поведение двух частей набора (57) объясняет зависимость эффективности генерации слабоинтенсивных гармоник и независимость эффективности генерации интенсивных гармоник от величины времени задержки между основной и второй гармониками, представленные на рис. 11. Действительно, в то время как слабоинтенсивные гармоники генерируются только за счёт переходов с $\Delta m = \pm 2$, величины соответствующих компонент тока (57) очень чувствительны к симметрии лазерного поля. Изменение относительного расположения p -орбитали и распределения поля в плоскости поляризации при изменении времени задержки между импульсами "переносится" на зависимость интенсивности слабоинтенсивных гармоник. В то же время, вклад переходов с $\Delta m = \pm 2$ в формирование интенсивных гармо-

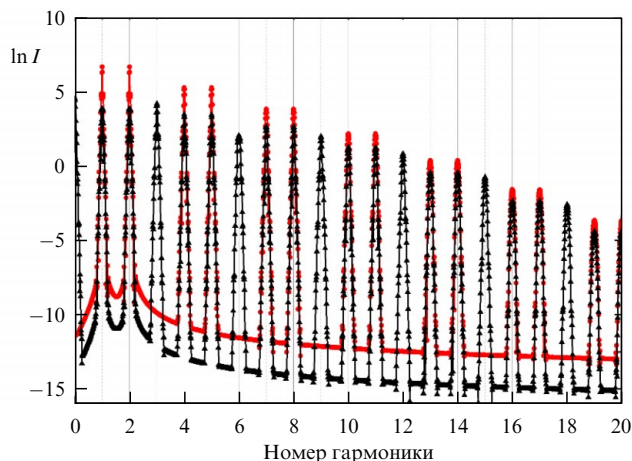


Рис. 12. Спектры отклика одиночного атома, рассчитанные как сумма компонент матрицы (57), соответствующие каскадным переходам с $\Delta m = \pm 2$ (чёрная кривая с треугольниками) и сумма остальных семи компонент матрицы (57) (красная кривая с кружками) [174].

ник существенно меньше суммы вкладов всех остальных переходов, следовательно, генерация таких гармоник не так чувствительна к изменению взаимной ориентации волновой функции и распределения вектора поляризации двухчастотного поля в плоскости поляризации. В результате этого, интенсивность таких гармоник не изменяется при вариации задержки между импульсами двухчастотного поля.

Рассмотрим также генерацию гармоник в двухчастотных лазерных полях, образованных эллиптически поляризованными основной и второй гармониками Ti:Sa лазера с изменяющейся эллиптичностью компонент поля для случая сонаправленного (рис. 13а, б) и противоположно направленного (рис. 13в, г) вращения векторов поляризации компонент поля. В численных расчётах эллиптичность компонент поля менялась одновременно. Хорошо видно, что в случае совместного вращения компонент двухчастотного поля (рис. 13а, б) максимальная эффективность генерации гармоник достигается для линейно поляризованных компонент. Эллиптичности гармоник следуют за эллиптичностью импульсов компонент. Циркулярно поляризованные гармоники генерируются для случая циркулярно поляризованных компонент двухчастотного лазерного поля, но при этом интенсивности гармоник малы.

В случае встречно вращающихся импульсов основной и второй гармоники лазерного поля (рис. 13в, г) хорошо видно, что интенсивности и эллиптичности (значения которых близки к нулю) генерируемых гармоник незначительно меняются в широком диапазоне эллиптичности компонент лазерного поля (от $-0,7$ до $0,7$). При изменении диапазона эллиптичностей компонент лазерного поля от -1 до $-0,7$ и от $0,7$ до 1 параметры генерируемых гармоник существенно меняются: значения эллиптичностей двух интенсивных гармоник меняются от ~ 0 до ± 1 , а их интенсивность значительно растёт. В то же время динамика интенсивностей слабоинтенсивных гармоник не столь существенна. Такое отличие в характере зависимости интенсивных и слабоинтенсивных гармоник связано с их природой, т.е. с тем, какие переходы "отвечают" за их генерацию.

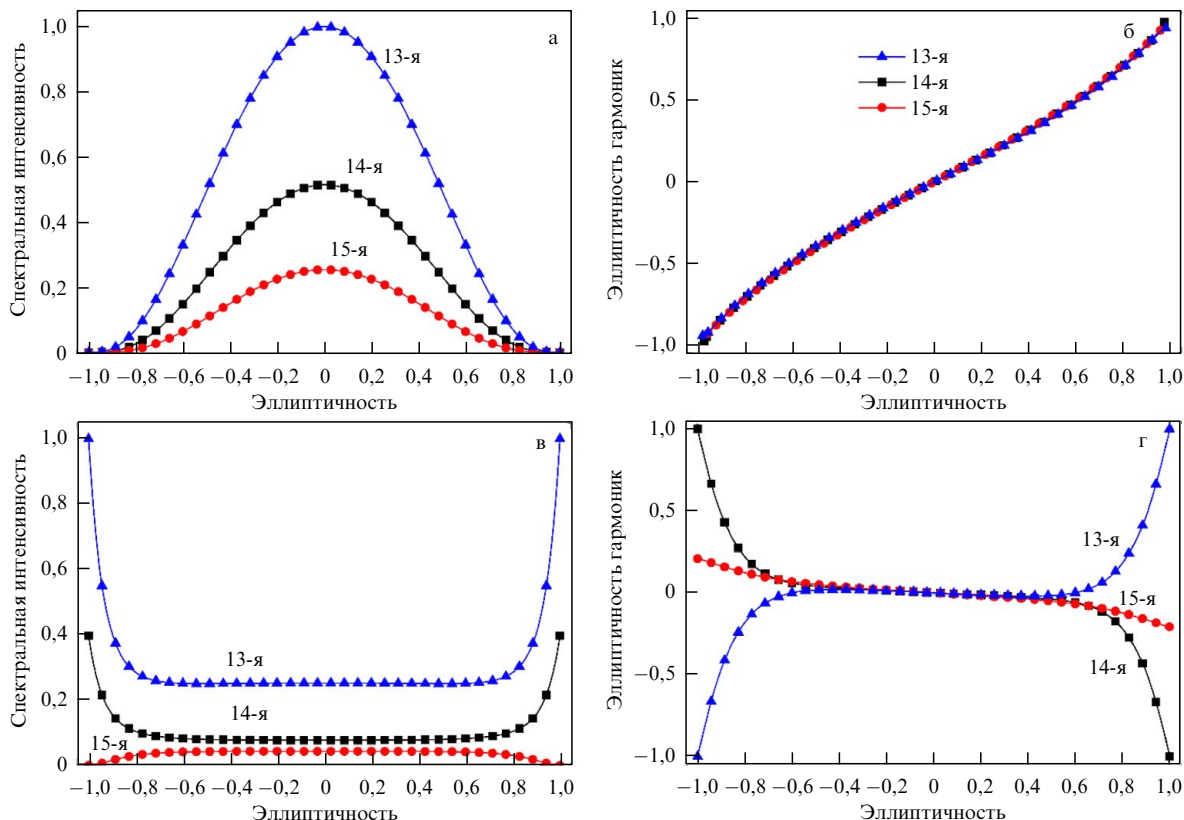


Рис. 13. Интенсивности гармоник (а, в) и их эллиптичности (б, г), рассчитанные для случаев одинаковых спиральностей (а, б) и противоположных спиральностей (в, г) эллиптически поляризованных основной и второй гармоник Ti:Sa лазера [174].

3.4. Генерация гармоник высокого порядка в двухчастотных скрещенных полях

Описанные выше результаты представлены для случая, когда направления распространения компонент много-частотного лазерного поля совпадают. В этом случае, в непертурбативном режиме взаимодействия представляется затруднительным выделить определённый канал генерации гармоник (сколько фотонов и какого сорта участвуют в генерации заданной гармоники) — при генерации заданной гармоники существует множество конкурирующих каналов, формирующих заданную гармонику с определённой вероятностью.

Вместе с тем, в определённых случаях существуют условия, когда можно достоверно определить количество фотонов, формирующих гармонику. Это возникает в неколлинеарных лазерных полях, когда, например, компоненты двухчастотного поля распространяются вдоль скрещенных направлений. В этом случае, по угловому распределению гармоник удаётся определить количество фотонов, формирующих гармонику [175], и поляризационные характеристики генерируемого излучения могут быть рассчитаны без использования непертурбативного подхода.

Рассмотрим генерацию гармоник в двухчастотных лазерных полях, образованных линейно поляризованными основной и второй гармониками Ti:Sa лазера, направления распространения которых неколлинеарны, а направления поляризации линейно поляризованных компонент поля образуют угол θ . Предположим, что в газе, взаимодействующем с таким полем, генерируются гармоники, обладающие ненулевым значением эллиптичности. Тогда эллипс поляризации может быть представлен

в плоскости, сформированной векторами поляризации компонент поля (рис. 14). Предположим, что заданная гармоника формируется n фотонами излучения на основной частоте ω и m фотонами на удвоенной частоте лазера 2ω . Тогда напряжённость поля соответствующей гармоники может быть представлена как сумма векторов $n\mathbf{E}_\omega + m\mathbf{E}_{2\omega}$, умноженная на некоторый коэффициент χ , который ассоциируется с компонентой тензора восприимчивости на соответствующей частоте гармоники и соответствует направлению распространения гармоники. Тогда из геометрических соображений можно рассчитать угол наклона эллипса поляризации гармоники ($P.A.$) и её эллиптичность ε :

$$P.A. = \arcsin \left(\frac{\sin \theta}{\sqrt{k}} \right), \tag{63}$$

$$\varepsilon = \tan \left[\frac{1}{2} \arcsin \left(\frac{2\zeta k}{\zeta^2 + k^2} \right) \right], \tag{64}$$

где $k = 1 + 2 \cos \theta / \eta + 1/\eta^2$, $\zeta = \sin \theta / \eta$, $\eta = \chi(n/m) \times (|E_\omega|/|E_{2\omega}|)$. При выводе этих формул предполагалось, что разность фаз между излучением на основной и удвоенной частотах равна $\pi/2$, что соответствует условиям идеального фазового синхронизма в кристалле ВВО.

Описанные выше рассуждения полезно сравнить с результатами эксперимента по изучению поляризационных характеристик гармоник в скрещенных полях [175]. На рисунке 15 представлены экспериментально измеренные (обозначены линиями) и теоретически рассчитанные с использованием описанных выше формул (обозначены точками) значения угла наклона эллипса поляризации

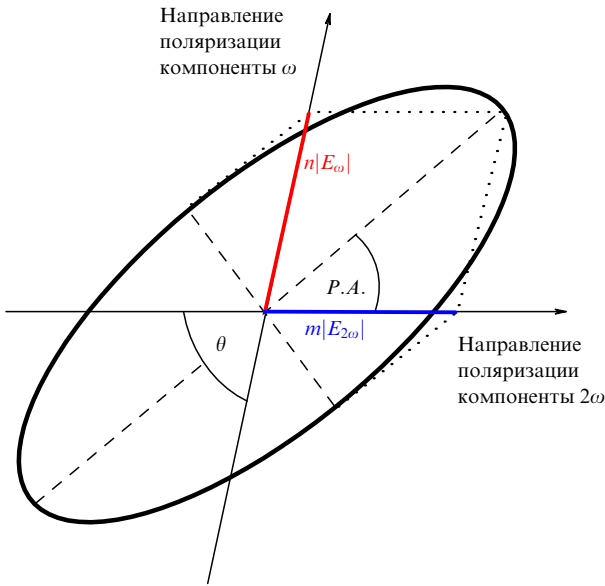


Рис. 14. Эллипс поляризации гармоники и взаимное расположение поляризаций компонент поля $\omega + 2\omega$. $P.A.$ — угол наклона эллипса поляризации, θ — угол между направлениями поляризаций компонент двухчастотного поля, n — количество фотонов излучения на частоте ω , m — количество фотонов излучения на частоте 2ω , участвующих в формировании заданной гармоники $n + 2m$ [175].

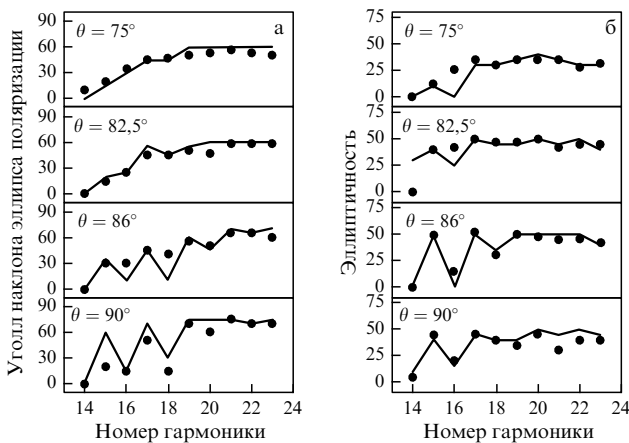


Рис. 15. Сравнение между экспериментально измеренными (линии) и численно рассчитанными (точки) поляризационными характеристиками генерируемых гармоник: (а) угол наклона эллипса поляризации, (б) эллиптичность. В численных расчётах χ выбран равным 0,2, 0,3, 0,5 и 1,5 для $\theta = 75^\circ$; $82,5^\circ$; 86° и 90° соответственно [175].

(рис. 15а) и эллиптичности гармоник (рис. 15б), рассчитанных и измеренных для $\theta = 75^\circ, 82,5^\circ, 86^\circ, 90^\circ$. Конкретные значения n и m получены из эксперимента. Коэффициент связи χ задан таким образом, чтобы согласовать расчёты и эксперимент: его значение варьируется от 0,2 для $\theta = 75^\circ$ до 1,5 для $\theta = 90^\circ$. Видно, что рассчитанные и измеренные спектры гармоник показывают хорошее совпадение.

Отметим также, что в данном эксперименте наблюдается зависимость параметров гармоник от угла между направлениями поляризаций компонент двухчастотного поля θ , это является экспериментальным подтверждением высказанного в работе [176] предположения об эффективности данного управляющего параметра (см. раздел 3.2).

3.5. Интерференционная модель отклика среды

Рассмотренные выше спектральные и поляризационные особенности генерируемых гармоник относятся к отдельно расположенным атомам, помещенным в лазерное поле. Однако в реальности эксперимент всегда имеет дело со средой, с множеством атомов. При этом возникает ряд важных деталей, которые несколько усложняют процедуру сравнения теоретических вычислений с экспериментальными наблюдениями. Во-первых, поскольку используются лазерные пучки, ограниченные в направлении, перпендикулярном направлению распространения, то разные атомы среды испытывают действие лазерного поля различной интенсивности (в приосевой области — выше, на периферии — меньше). Тем не менее, нелинейный характер взаимодействия лазерного излучения с атомами позволяет рассматривать только приосевую область пучка, поскольку взаимодействие на периферии оказывается существенно слабее (причём чем больше порядок генерируемой гармоники, тем больше проявляется этот эффект). Во-вторых, генерируемое атомами излучение, вообще говоря, также воздействует на окружающие атомы, изменяя населённости энергетических состояний. Однако, как правило, таким "вторичным" воздействием пренебрегают, поскольку эффективность генерации гармоник остается существенно меньше единицы, и можно использовать приближение заданного поля. В-третьих, генерируемое излучение, распространяясь от источников (отдельно расположенных атомов) в среде, подвержено изменению своих спектральных свойств в силу материальной дисперсии среды, а также в силу интерференции излучения от различных атомов. Именно такое проявление наличия среды — интерференционное — и будет рассмотрено в этом разделе.

Атомы среды, расположенные в точках \mathbf{r}_i и помещённые в лазерное поле, создают в пространстве вокруг себя распределение электронной плотности $\rho_i(\mathbf{r}', t'_i)$ и плотность тока $\mathbf{j}_i(\mathbf{r}', t'_i)$, динамика которых определяет электрическое поле в точке \mathbf{r} [167]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = & -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \sum_i \int \left[\frac{\partial \mathbf{j}_i(\mathbf{r}', t'_i)}{\partial t} - \mathbf{n}'_i \left(\frac{\partial \mathbf{j}_i(\mathbf{r}', t'_i)}{\partial t} \mathbf{n}'_i \right) \right] \times \\ & \times \frac{dV'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i - \mathbf{r}'|} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c} \sum_i \int \mathbf{n}'_i (\mathbf{j}_i(\mathbf{r}', t'_i) \mathbf{n}'_i) \times \\ & \times \frac{dV'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i - \mathbf{r}'|^2} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_i \int \mathbf{n}'_i \rho_i(\mathbf{r}', t'_i) \times \\ & \times \frac{dV'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i - \mathbf{r}'|^2}, \end{aligned} \quad (65)$$

где $\mathbf{n}'_i = \mathbf{r} - \mathbf{r}_i - \mathbf{r}' / |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i - \mathbf{r}'|$, $t'_i = t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i - \mathbf{r}'| / c$.

В приближении модели точечного атома ($|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i| \gg a_B$), в предположении об идентичности атомов среды ($\rho_i(\mathbf{r}', t'_i) = \rho_0(\mathbf{r}', t')$, $\mathbf{j}_i(\mathbf{r}', t'_i) = \mathbf{j}_0(\mathbf{r}', t')$) и неизменности формы профиля лазерного импульса, в дальней зоне ($|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i| \gg \mathbf{r}'$) имеем только поперечное электрическое поле:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{i\omega}{c^2} \sum_i \frac{\exp(i\omega|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|/c)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|} [\mathbf{n}_i, [\mathbf{n}_i, \mathbf{J}(\omega)]], \quad (66)$$

где $\mathbf{J}(\omega)$ задаётся выражением (48), а $\mathbf{n}_i = \mathbf{r} - \mathbf{r}_i / |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|$.

В дальней зоне можно считать, что расстояние до точки наблюдения много больше линейных размеров

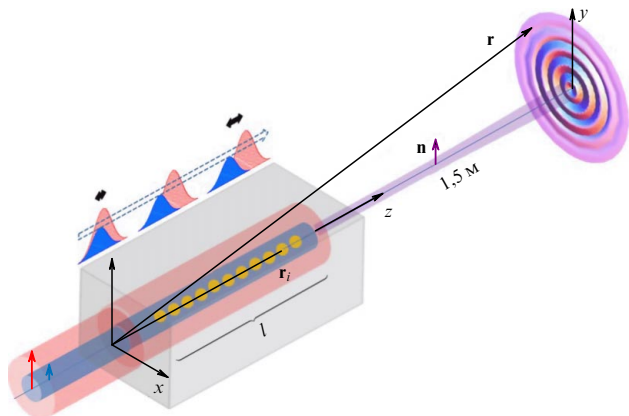


Рис. 16. Схематическое изображение одномерной интерференционной модели: линейно поляризованное лазерное поле распространяется вдоль цепочки атомов (жёлтые кружки), лабораторный набор координат (x, y, z) используется для определения положения атомной ячейки и детектора [177].

ансамбля атомов. Тогда из (66) с учётом $|\mathbf{r}| \gg |\mathbf{r}_i|$ получаем:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{i\omega}{rc^2} \exp\left(\frac{i\omega r}{c}\right) \sum_i \left[\mathbf{n}, [\mathbf{n}, \mathbf{J}_i(\omega)] \right] \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r}_i), \quad (67)$$

где $\mathbf{k} = \omega\mathbf{r}/cr$, $\mathbf{n} = \mathbf{r}/r$.

Формула (67) используется для расчёта отклика протяжённых газовых сред в рамках интерференционной модели. Эта модель выглядит следующим образом. Среда представляет собой цепочку атомов, расположенных на оси распространения импульса (в предположении, что интенсивность лазерного поля быстро спадает при отдалении от оси (рис. 16)). Спектр отклика атомов рассчитывается с помощью представленной выше развитой непертурбативной теории. Спектральные компоненты генерируемого одиночными атомами излучения "суммируются" с помощью формулы (67), которая учитывает интерференцию вкладов от различных источников поля в дальней зоне.

Интерференционная модель обладает сочетанием уникальных преимуществ: она позволяет рассчитывать отклик среды, учитывая отклики одиночных атомов, рассчитанных квантово-механически с использованием непертурбативного теоретического подхода. Это позволяет проследивать модификации спектров отклика атомов при распространении лазерного излучения в среде, сохраняя особенности спектра отклика одиночных атомов, что становится критически важно при исследовании генерации гармоник высокого порядка, поскольку считается, что природа генерации заключается в отклике одиночного атома. Вместе с тем, интерференционная модель может служить альтернативой моделям сред, которые используют тензоры нелинейной восприимчивости среды, определённые, как правило, феноменологически. Преимуществом интерференционной модели среды является то, что нелинейности среды имеют квантово-механическую, а не феноменологическую природу.

Следует отметить, что в протяжённых средах предположение о неизменности профиля лазерного импульса никогда строго не выполняется. В случае одночастотного поля накачки это связано с отличием фазовой и группо-

вой скоростей импульса, что приводит к зависимости времени задержки импульса от положения атома в ансамбле. Так, например, для двухчастотного лазерного импульса, образованного излучением на частотах ω_0 и $2\omega_0$ за счёт дисперсии при распространении в среде возникают дополнительные фазовые набег $\varphi_1 = \mathbf{k}_1\mathbf{r} = (\omega_0/c)n_1(\omega_0)z$ и $\varphi_2 = \mathbf{k}_2\mathbf{r} = (2\omega_0/c)n_2(2\omega_0)z$, где $n_{1,2}$ — показатели преломления атомной среды на основной частоте лазерного импульса и на частоте второй гармоники, соответственно. В результате этого появляется разность фаз, которая зависит от координаты в среде:

$$\Delta\varphi = 2\varphi_1 - \varphi_2 = \frac{2\omega_0}{c} (n_1(\omega_0) - n_2(2\omega_0))z. \quad (68)$$

Атомный ток становится промодулированным по длине среды с пространственной частотой:

$$A = \frac{\pi c}{2\omega_0} \frac{1}{n_1(\omega_0) - n_2(2\omega_0)}. \quad (69)$$

Поле отклика протяжённой атомной среды в дальней зоне определяется выражением (67), в котором $\mathbf{J}(\omega, \mathbf{k}) = \sum_i \mathbf{J}_i(\omega) \exp[i(\Delta\varphi_i - \mathbf{k}\mathbf{r}_i)]$. Полагая, что плотность атомов в пределах ансамбля однородна, получаем:

$$\mathbf{J}(\omega, \mathbf{k}) = \mathbf{J}_0(\omega) \int_0^\infty d\rho \rho \int_0^{2\pi} d\varphi \exp\left(-\frac{\rho^2}{d^2}\right) \times \exp(i\Delta\mathbf{k}_\perp \boldsymbol{\rho}) \int_{-L/2}^{L/2} dz f(z) \exp(i\Delta k_\parallel z), \quad (70)$$

где $\mathbf{J}_0(\omega)$ — ток отклика одиночного атома, находящегося на оси пучка лазерного поля и при нулевой задержке импульсов двухчастотного поля, d — поперечный размер лазерного пучка, L — продольный размер атомной среды. С учётом (68), для $\Delta\mathbf{k}$ получаем:

$$\Delta\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}. \quad (71)$$

Функция $f(z)$ в (70) описывает периодический пространственный профиль отклика атомной среды с пространственным периодом (69). Этот профиль хорошо аппроксимируется следующим выражением:

$$f(z) = |\sin(Kz)|, \quad (72)$$

где $K = 2\pi/A$ и A — пространственный период профиля. Подставляя (72) в (70) и проводя интегрирование, получаем:

$$\mathbf{J}(\omega, \mathbf{k}) = \mathbf{J}_0 \frac{\pi d^2 K}{K^2 - \Delta k_\parallel^2} \exp\left(-\frac{\Delta k_\perp^2 d^2}{4}\right) \frac{\sin(\Delta k_\parallel A(N+1)/2)}{\sin(\Delta k_\parallel A/2)} \times \exp\left(\frac{i\Delta k_\parallel AN}{2}\right) \left[1 + \exp\left(i\frac{\Delta k_\parallel A}{2}\right)\right]^2, \quad (73)$$

где $N = L/A$.

Ввиду поперечной ограниченности падающего лазерного пучка, лазерное поле в области атомной среды представляет собой суперпозицию плоско-волновых компонент с характерной поперечной шириной $\Delta k_\perp = \pi/d$. С другой стороны, продольная проекция волнового вектора вследствие пространственной периодичности поля отклика атомной среды равна $k_\parallel^{(n)} = k^{(0)} + 2\pi n/A$, где $k^{(0)}$ — проекция волнового вектора падающего поля на

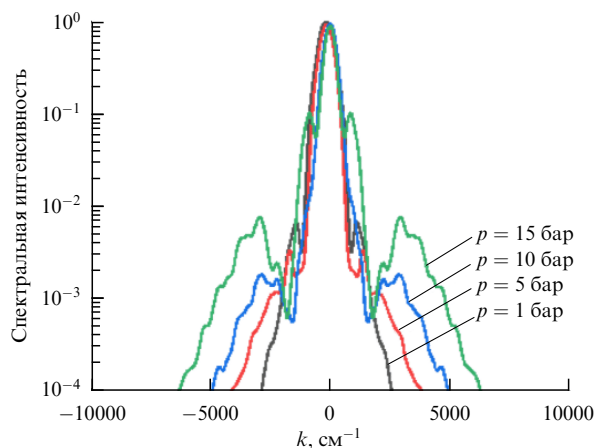


Рис. 17. Угловой спектр 5-й гармоники на выходе из слоя аргона протяжённостью $L = 7$ мм при разных давлениях газа.

направление его распространения. Таким образом, результирующий угловой спектр генерируемого излучения на частоте $\omega = 2\pi c/\lambda$ зависит от соотношения длины волны λ и параметров d , L и представляет собой, в общем случае, суперпозицию вложенных конусов. Для одномерной цепочки атомов эта суперпозиция вложенных конусов вырождается.

В заключение этого раздела обсудим справедливость одномерной модели интерференции. Для этого проведем численные исследования распространения лазерного излучения в аргоне по классической модели однонаправленного распространения [178], в которой нелинейные свойства среды задаются нелинейным показателем преломления $n_2 = p \times 10^{-18}$ Вт см^{-2} [179] (где p — давление газа в барах), и возникающие гармоники низкого порядка генерируются в результате каскадного процесса четырёхволнового смешения.

На рисунке 17 показаны угловые спектры 5-й гармоники на выходе из слоя аргона протяжённостью $L = 7$ мм при разных давлениях газа. Излучение гармоники имеет как коллинеарную составляющую, так и неколлинеарную, причём энергия последней составляет не более 1% от всей энергии излучения гармоники. Стоит также отметить, что угол отклонения неколлинеарной составляющей от направления распространения увеличивается с ростом давления газовой струи: для $p = 1$ бар угол составляет $4,6^\circ$, для $p = 15$ бар — $11,9^\circ$. Поскольку коллинеарная составляющая 5-й гармоники содержит около 99% всей энергии гармоники (во всем диапазоне исследованных давлений), то при использовании квантово-механического подхода для расчёта сигналов гармоник можно рассматривать только приосевую область распространения излучения и использовать интерференционную модель для подсчёта суммарного сигнала гармоник на детекторе, находящемся в дальней зоне.

3.6. Фазовое согласование

излучения гармоник высокого порядка

Рассмотрим эффекты фазового согласования излучения гармоник в газах на примере атомарного газа аргона. Для этого будем использовать интерференционную модель, описанную в деталях в предыдущем разделе. Среда представляет собой цепочку атомов, количество которых определяется давлением в среде и её длиной.

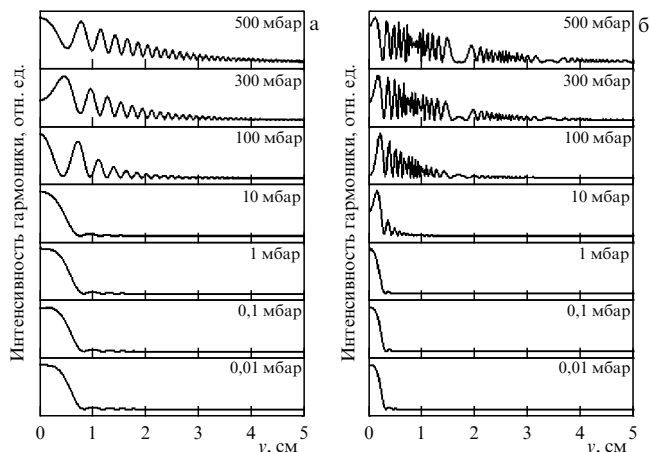


Рис. 18. Радиальное распределение 5-й (а) и 35-й (б) гармоник, рассчитанное для аргонового газа длины 1 см при вариации давления в среде. Лазерное поле состоит из основной и второй гармоник Ti:Sa лазера, амплитуды компонент поля $\mu_{01} = 0,1$, $\mu_{02} = 0,1$, длительности импульсов $\tau = 30$ фс, угол между поляризациями компонент поля $\theta = 0$ [177].

Исследования характеристик генерируемого поля проводятся в дальней зоне (на расстоянии 1,5 м от среды) в плоскости, перпендикулярной направлению распространения излучения.

Зависимости показателей преломления для различных длин волн доступны в специализированных базах данных [180]. На рисунке 18 представлено пространственное распределение электромагнитного излучения в плоскости, перпендикулярной направлению распространения излучения (на виртуальном детекторе), генерируемое газовой средой, состоящей из цепочки атомов длиной 1 см, вычисленное для излучения на частоте 5-й (а) и 35-й (б) гармоник падающего лазерного излучения. Расчёты проведены для лазерного излучения, сформированного основной и второй гармониками Ti:Sa лазера ($\lambda = 800$ нм), амплитуды компонент поля $\mu_{01} = 0,1$, $\mu_{02} = 0,1$ длительности импульсов $\tau = 30$ фс, угол между поляризациями компонент поля $\theta = 0$. На рисунках представлены зависимости интенсивности излучения от расстояния от оси детектора (y). Видно, что при низких давлениях пространственное распределение гармоник является гауссоподобным — присутствует пик в центре, интенсивность излучения падает при движении координаты от центра к периферии. Подобное распределение интенсивности излучения в пространстве характерно как для низких (рис. 18а), так и для высоких (рис. 18б) гармоник. При возрастании давления пространственное распределение меняется: излучение, распространяющееся под нулевым углом к направлению волнового вектора лазерного излучения, формирует уже не самый интенсивный пик, в частотно-угловых спектрах появляются пики конической эмиссии. Их присутствие связано с интерференцией вкладов различных атомов. Подобное угловое распределение гармоник было обнаружено экспериментально как для низких [181], так и для высоких гармоник [182]. Природа появления дополнительных пиков в угловом спектре отклика среды интенсивно исследовалась в работах [183–185]. Проведённые исследования показывают, что причиной такого распределения является конструктивная и деструктивная интерференция вкладов

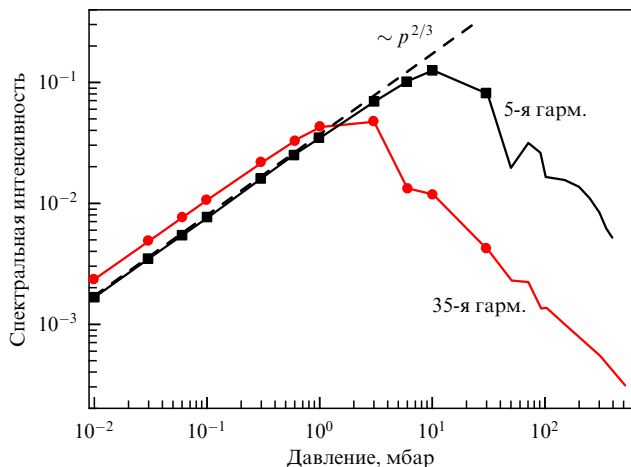


Рис. 19. Зависимость эффективности генерации 5-й (чёрная кривая с квадратами) и 35-й (красная кривая с точками) гармоник от давления. Штриховая линия — зависимость квадрата числа атомов в газе от давления. Параметры среды и лазерного поля аналогичны параметрам для рис. 18 [177].

различных атомов, которая зависит от давления (количества атомов).

Для того, чтобы исследовать интегральную характеристику генерируемого излучения, проведем интегрирование по координате y распределения излучения на детекторе. В результате получим зависимость эффективности генерации излучения, рассчитанную для данной гармоники при фиксированных значениях параметров среды. На рисунке 19 представлено распределение интегральной эффективности генерации 5-й и 35-й гармоник при вариации давления в среде. Зависимости показывают следующие особенности: (1) спектральная интенсивность гармоник при низких давлениях растёт пропорционально квадрату количества атомов цепочки, её формирующей (учитывая одномерность модели, спектральная интенсивность пропорциональна давлению в объёме газовой среды в степени $2/3$ или квадрату давления газа в капилляре); квадратичный рост эффективности генерации гармоники свидетельствует о том, что излучение различных атомов цепочки интерферирует когерентно; (2) при дальнейшем возрастании давления зависимости эффективности генерации гармоник насыщаются, и спектральная интенсивность гармоник падает, формируя область "оптимального" давления p_{opt} для каждой гармоники. Наличие "оптимального" давления было подтверждено многочисленными экспериментами (см., например, [181]).

Сравнивая рис. 18 и 19, можно заметить, что эффективность генерации гармоники перестаёт увеличиваться, когда в пространственном распределении возрастают дополнительные компоненты углового спектра, поскольку появление таких кольцевых структур в пространственном распределении свидетельствует о деструктивной интерференции вкладов различных атомов, уменьшающих общую интенсивность генерируемого излучения. В этом заключается природа возникновения "оптимального" давления газа.

Результаты численных исследований позволяют предложить простое соотношение, связывающее номер гармоники H , длину среды L и "оптимальное" давление в среде p_{opt} для максимальной спектральной интенсивно-

сти данной гармоники:

$$LHp_{\text{opt}} = \text{const}. \quad (74)$$

Эта формула хорошо согласуется с экспериментальными данными [186] и может быть использована для "тонкой подстройки" эффективности генерации заданной гармоники (или групп гармоник) в эксперименте. Проведенные исследования были выполнены для несфокусированных пучков. В случае же наличия фокусирующих элементов в оптической схеме в качестве L необходимо использовать минимальную длину среди общей длины среды и длины перетяжки.

3.7. Квазифазовое согласование излучения гармоник высокого порядка

Рассмотрим эффекты квазифазового согласования (КФС), возникающие в периодических средах, т.е. таких средах, распределение плотности излучающих частиц которых не является равномерным. Существует несколько способов создания такого рода сред: набор газовых струй, набор плазменных облаков, газо-кластерные среды, смеси газов. Профилирование плотности среды является наиболее эффективным способом формирования условий для квазифазового согласования гармоник [81]. Также эффекты КФС можно наблюдать и в непрерывных газовых средах, взаимодействующих с лазерным полем, параметры которого (например, интенсивность) неравномерно распределены в среде.

Анализ эффектов КФС начнем с периодических газовых сред. В качестве примера рассмотрим последовательность аргоновых газовых струй с шириной d , разделённых вакуумными промежутками такой же длины, формирующих газовую среду длины L . Эта последовательность газовых струй расположена вдоль оси распространения лазерного излучения. Предположим, что общая длина среды $L = 0,5$ см, $d = 0,03$ и $0,08$ см (параметры среды подобраны под условия эксперимента в работе [187]). Лазерное излучение является двухчастотным, состоящим из линейно поляризованных основной и второй гармоник Ti:Sa-лазера, угол между векторами поляризации которых составляет $\theta = 0$. На рисунке 20а показаны зависимости эффективности генерации 18-й гармоники от давления, рассчитанные для случая непрерывной газовой среды и среды, состоящей из нескольких газовых струй с различной шириной. Видно, что в случае пространственно профилированной среды в зависимости эффективности генерации гармоники от давления после "оптимального" давления p_{opt} присутствует область давлений $p_{\text{opt, QPM}}$, где эффективность генерации гармоники практически на порядок выше. Такой же рост эффективности генерации гармоники был экспериментально обнаружен в работе [187]. Этот рост возникает за счёт эффекта КФС, при котором нарушается условие деструктивной интерференции различных атомов в области давлений, больших чем p_{opt} . В результате, создаются условия для нового набора атомов, генерирующих сравнимое по фазе излучение. Эти условия возникают в области больших давлений (по сравнению с областью "оптимального" давления), следовательно, для большего количества атомов, что приводит к увеличению эффективности генерации гармоники.

В области нового оптимального давления $p_{\text{opt, QPM}}$ пространственное распределение излучения на детек-

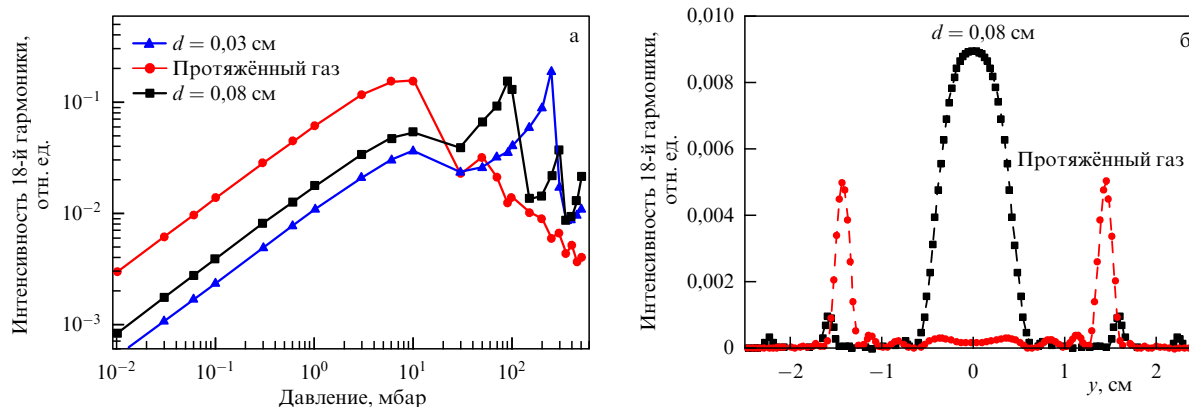


Рис. 20. (а) Зависимость интегральной интенсивности 18-й гармоники от давления газа и (б) пространственное распределение интенсивности на детекторе при давлении 100 мбар, рассчитанные для набора из трёх газовых струй с $d = 0,08$ см (чёрная кривая с квадратами), восьми газовых струй с $d = 0,03$ см (синяя кривая с треугольниками) и протяжённого газа (красная кривая с точками). Общая длина среды $L = 0,5$ см [177].

торе, полученное для набора газовых струй (чёрная кривая с квадратами), имеет гауссоподобную структуру, в то время как пространственное распределение, рассчитанное при том же давлении для непрерывной газовой среды (красная кривая с точками), имеет кольцеобразную структуру (рис. 20б). Подобное изменение пространственного распределения гармоники также наблюдалось экспериментально для набора плазменных факелов в работе [187]. Отметим, что большая эффективность генерации для сплошной среды, которая наблюдается в области малых значений давлений, возникает из-за того, что в сплошной среде при фиксированной её длине находится в 2 раза больше атомов, чем в среде, состоящей из набора газовых струй. В связи с этим, в области, где наблюдается конструктивная интерференция от различных источников, эффективность генерации оказывается выше.

Для дальнейших исследований удобно ввести величину f — усиление КФС, которая равна отношению величины отклика среды к максимальной величине отклика одиночного атома, вычисленному для данных параметров лазерного поля. Так определённая величина f является близкой по значению к параметру, который используется для исследования эффектов КФС в плазменных средах [188] и определён как отношение величины отклика плазменной среды, представляющей собой набор плазменных факелов, к величине отклика протяжённой плазменной среды.

На рисунке 21 представлено усиление КФС f , рассчитанное для части спектра отклика набора газовых струй при давлении $p = 250$ мбар (при котором эффективность генерации 18-ой гармоники максимальна при $d = 0,03$ см (рис. 20а)) и различных значениях ширин струй d : от 0,025 до 0,08 см при сохранении общей длины среды $L = 0,5$ см. Видно, что условия квазифазового согласования выполняются не только для заданной гармоники, но и для целой группы гармоник с близкими номерами (например 18-я и 19-я гармоники в случае $d = 0,03$ см). Кроме того, путём изменения d можно эффективно управлять областью гармоник, для которых выполняются условия квазифазового согласования: при увеличении значения d область усиленных гармоник смещается в сторону меньшего их номера. Такая зависимость наблюдается и в эксперименте [189].

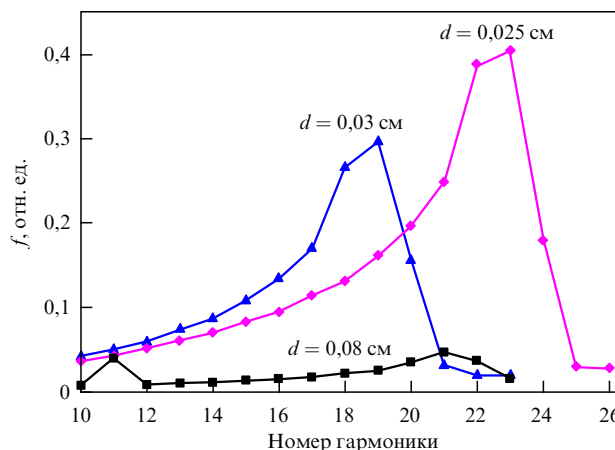


Рис. 21. Усиление квазифазового согласования гармоник, вычисленное для некоторых гармоник при $p = 250$ мбар, $L = 0,5$ см и набора газовых струй с ширинами $d = 0,08$ см (чёрная кривая с квадратами), $d = 0,03$ см (синяя кривая с треугольниками) и $d = 0,025$ см (розовая кривая с ромбами) [177].

На рисунке 22а представлено распределение усиления КФС f по спектру, рассчитанное для двух ширин газовых струй: $d = 100$ мкм (чёрная кривая) и $d = 50$ мкм (красная кривая) и $\lambda = 800$ нм, представленное для удобства в электрон-вольтах. При уменьшении ширины газовых струй область спектра, для которой проявляется эффект КФС, смещается в длинноволновую область. Указанная тенденция подтверждается и для других длин волн накачки (см. рис. 22б для $\lambda = 1310$ нм). Численные расчёты позволяют заключить, что номер максимально усиленной гармоники в спектре обратно пропорционален ширине газовой струи d :

$$Hd = \text{const}. \quad (75)$$

Таким образом, варьирование ширины струи позволяет смещать по спектру положение пика усиленной за счёт КФС гармоники. Кроме того, важно отметить, что при уменьшении ширины газовой среды d возрастает эффективность усиления. Скорость роста усиления КФС:

$$f \sim d^{-1,5}. \quad (76)$$

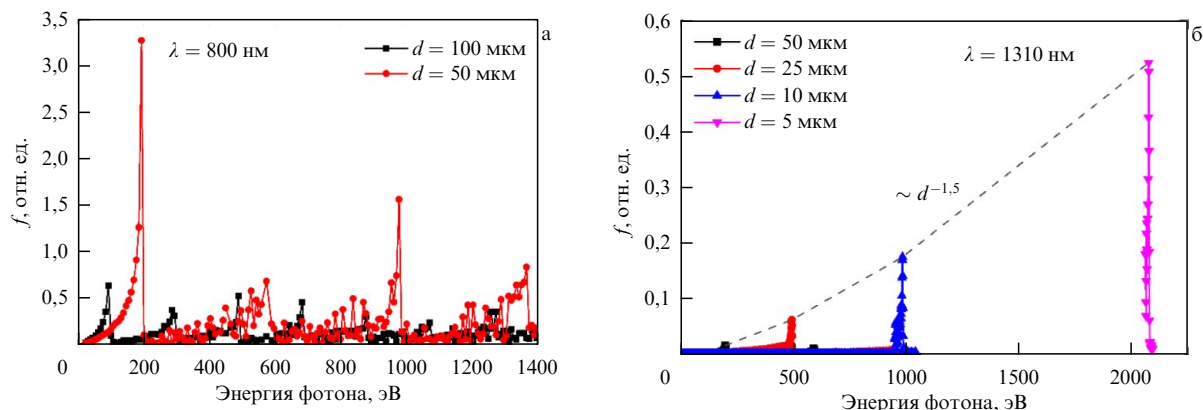


Рис. 22. Распределение усиления квазифазового согласования по спектру, вычисленное при $p = 230$ мбар, $L = 0,5$ см. (а) $\lambda = 800$ нм, $d = 100$ мкм (чёрная кривая с квадратами), $d = 50$ мкм (красная кривая с точками), (б) $\lambda = 1310$ нм, $d = 50$ мкм (чёрная кривая с квадратами), $d = 20$ мкм (красная кривая с точками), $d = 10$ мкм (синяя кривая с треугольниками), $d = 5$ мкм (пурпурная кривая с треугольниками) [166].

Отметим, что в расчётном спектре усиления КФС присутствует несколько пиков (рис. 22а), тогда как в экспериментах обычно наблюдается всего лишь один пик [189]. Это может быть связано с влияем разброса параметров газовых струй. Для проверки этой гипотезы проведём исследование влияния неточности определения величины ширины газовых струй на распределения усиления КФС. Для этого зададим ширину газовых струй следующим образом: $d = d_0 + d_1 g$, где $d_0 = 50$ мкм, величина d_1 изменяется в интервале $(0, 0,1d_0)$ и задаёт "амплитуду" случайной величины g , распределённую в интервале $(-0,5, 0,5)$ и изменяющую свое значение при формировании каждой струи. На рисунке 23а представлены спектры усиления КФС, рассчитанные для d_1 от 0 до $0,1d_0$. Видно, что неточное задание ширины газовых струй в первую очередь влияет на усиление более высокочастотных пиков КФС. Так, при $d_1 = 0,01d_0$ усиление первого пика КФС снижается на 5%, в то время как усиление второго и третьего пика КФС — на 40% и 60% соответственно (рис. 23б). Дальнейшее увеличение значения d_1 приводит к более существенному уменьшению усиления всех пиков КФС. По-видимому, такая высокая чувствительность усиления КФС к точности определения

и регулярности задания ширины газовых струй является препятствием на пути экспериментального подтверждения наличия высокочастотных пиков усиления.

Остановимся подробнее на влиянии длины волны лазерного излучения на величину усиления гармоник. Для этого проведем серию численных расчётов отклика протяжённой газовой среды на воздействие двухчастотного (основная и вторая гармоники) лазерного поля различной длины волны. Результаты представлены на рис. 24а. Видно, что энергия фотона излучения, для которого условия КФС выполняются наилучшим образом, не изменяется при изменении длины волны лазерного излучения (номер гармоники, для которой выполняется условия КФС, увеличивается с увеличением длины волны). Вместе с тем, усиление КФС для заданной энергии фотона растёт пропорционально квадрату длины волны (рис. 24б):

$$f \sim \lambda^2. \tag{77}$$

Представляется, что это наиболее эффективный метод компенсации падения эффективности излучения с увеличением длины волны накачки [61–63]. Сравнитель-

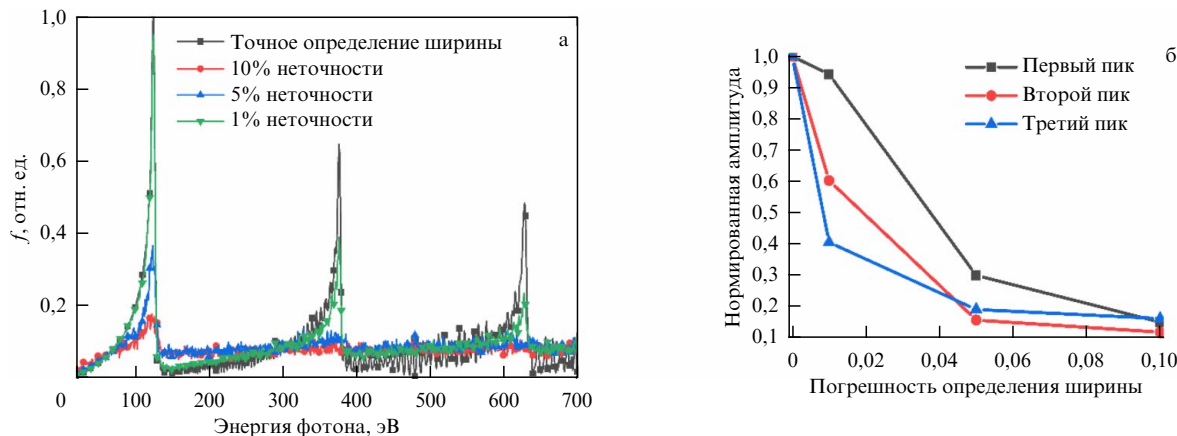


Рис. 23. (а) Распределение квазифазового согласования в среде, представляющей собой набор газовых струй с $d_0 = 50$ мкм и $d_1 = 0$ (чёрная кривая с квадратами), $d_1 = 0,01d_0$ (зелёная кривая с треугольниками), $d_1 = 0,05d_0$ (синяя кривая с треугольниками), $d_1 = 0,1d_0$ (красная кривая с точками). Давление $p = 230$ мбар, длина среды $L = 0,5$ см, длина волны $\lambda = 800$ нм. (б) Нормированные значения усиления КФС пиков в зависимости от значения d_1 [190].

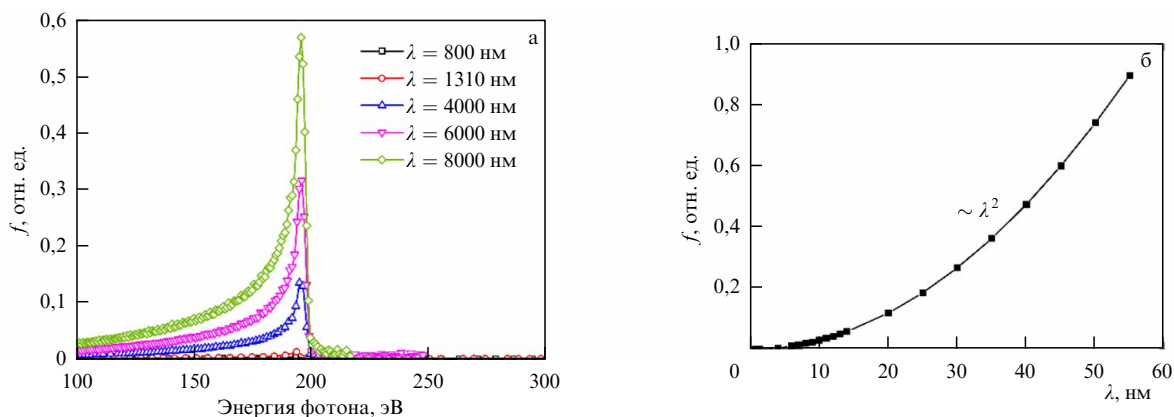


Рис. 24. (а) Распределение усиления КФС по спектру, вычисленное для нескольких значений длин волн накачки: $\lambda = 800$ нм (чёрная кривая с квадратами), 1310 нм (красная кривая с точками), 4 мкм (синяя кривая с треугольниками), 6 мкм (пурпурная кривая с треугольниками), 8 мкм (зелёная кривая с ромбами) при фиксированном значении ширины газовой струи $d = 50$ мкм и давления газа $p = 230$ мбар. (б) Зависимость усиления КФС для гармоники с энергией фотона ~ 196 эВ от длины волны лазерного излучения [166].

ный анализ экспериментально измеренных коэффициентов усиления гармоник [188], находящихся в области квазифазового согласования и генерируемых в плазменных факелах, показывает, что при изменении длины волны лазерного источника усиление сигнала гармоник за счёт КФС $f_{\text{ксп}} \sim \lambda^{2,44}$, что близко к обнаруженной теоретической зависимости.

Ещё одним важным управляющим параметром задачи является давление в газовых струях. Для исследования влияния этого фактора на усиление КФС были проведены численные исследования эффективности генерации 45-й, 95-й и 195-й гармоник для различных давлений газа от 0,01 мбар до 1 бар при фиксированном значении ширины газовых струй ($d = 100$ мкм) и для двух длин волн основной компоненты лазерного поля: $\lambda = 800$ нм (рис. 25а) и $\lambda = 6$ мкм (рис. 25б). Видно, что зависимости усиления КФС от давления имеют многопиковую структуру. Первый пик (более широкий, в области малых давлений) совпадает с пиком непрофилированной среды. Второй пик соответствует условиям КФС. Давление $p_{\text{opt, QPM}}$, при котором наблюдается этот пик, длина волны лазерного излучения λ и номер гармоники H соотносятся друг с другом следующим образом:

$$\frac{H}{\lambda} p_{\text{opt, QPM}} = \text{const.} \quad (78)$$

Таким образом, положение пика усиления КФС изменяется обратно пропорционально давлению в среде: уменьшая давление в среде можно сместить пик усиления КФС в коротковолновую область спектра. Это можно объяснить тем, что длина когерентности обратно пропорциональна расстройке волновых векторов Δk , которая для плоской волны пропорциональна pH [191]. В результате условие КФС — равенство длины когерентности и ширины газовых струй — реализуется для гармоник с большим номером при меньшем значении давления газа. Вместе с тем, расчёты показывают, что вместе со смещением пика усиления КФС в коротковолновую область увеличивается и его амплитуда. Этот контринтуитивный результат (при уменьшении давления количество атомов, которые генерируют гармоники, уменьшается) может быть объяснен зависимостью показателя преломления от давления: при уменьшении давления период осцилляций эффективности генерации гармоник атомами в среде [177] увеличивается, что приводит к увеличению количества атомов, генерирующих излучение и интерферирующих конструктивно.

Величина усиления КФС f оказывается обратно пропорциональной давлению газа p :

$$f \sim p^{-1}. \quad (79)$$

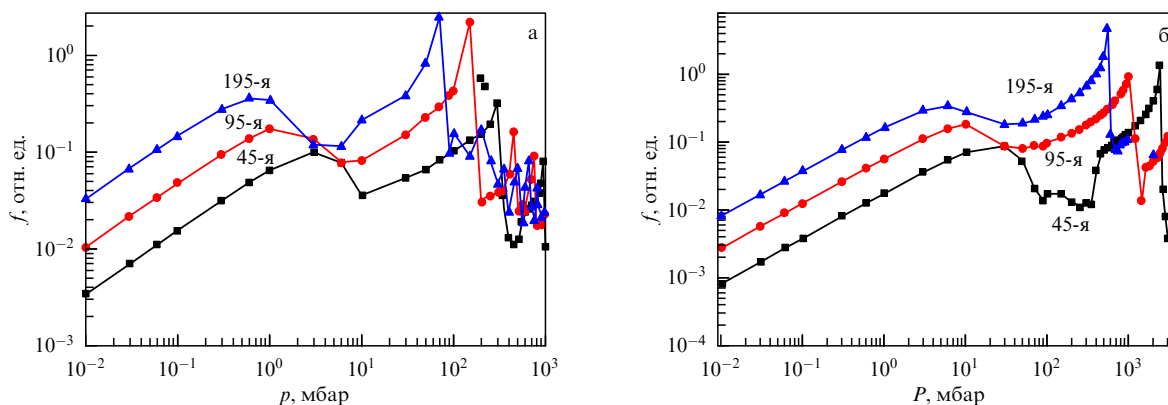


Рис. 25. Зависимость усиления КФС от давления в среде, вычисленная для 45-й (чёрная кривая с квадратами), 95-й (красная кривая с точками), 195-й (синяя кривая с треугольниками) гармоник. Расчёты проведены для $d = 100$ мкм, (а) $\lambda = 800$ нм и (б) $\lambda = 6000$ нм [190].

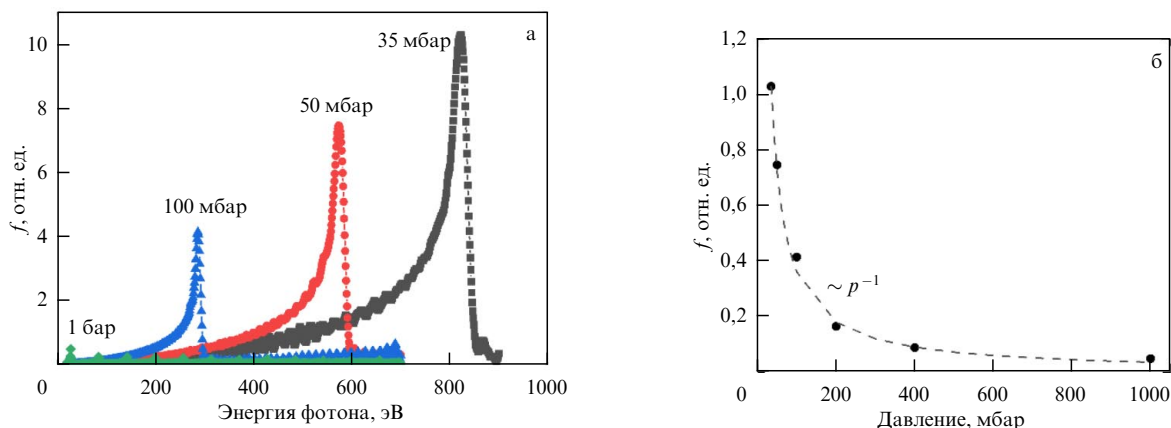


Рис. 26. (а) Распределение усиления КФС по спектру, вычисленное для нескольких значений давления газа: $p = 35$ мбар (чёрная кривая с квадратами), 50 мбар (красная кривая с точками), 100 мбар (синяя кривая с треугольниками), 1 бар (зелёная кривая с ромбами). (б) Зависимость усиления КФС от давления газа. Точками показаны результаты численного исследования, штриховой линией — аппроксимирующая кривая. Ширина газовой струи $d = 50$ мкм, длина волны лазерного излучения $\lambda = 800$ нм [190].

Действительно, как показывают результаты численных исследований, проведенных для струй с $d = 50$ мкм и приведённых на рис. 26, при увеличении давления уменьшается как номер усиленной гармоники, так и величина усиления КФС.

Несмотря на то, что для используемых в численном эксперименте параметров лазерного поля (для среды с $d = 50$ мкм, взаимодействующей с двухчастотным лазерным полем, формируемым основной и второй гармониками Ti:Sa-лазера) КФС-усиленные гармоники лежат за пределами частоты отсечки [192], предложенная оптимизация эффективности гармоник может быть полезна, поскольку положение КФС-усиленных гармоник (в эВ) не зависит от длины волны лазерного излучения (рис. 24а), и данная усиленная гармоника может находиться до частоты отсечки, если, например, увеличивается длина волны лазерного излучения [193].

Наконец, выясним влияние количества струй на эффективность усиления гармоник при квазифазовом согласовании. В результате численных исследований (при $\lambda = 6$ мкм, 195-я гармоника, $d = 50$ мкм, $p_{\text{opt,QPM}} = 1,1$ бар) было показано, что изменение числа газовых струй не влияет на номер максимально усиленной гармоники, но влияет на величину усиления (рис. 27). Видно, что при малом числе струй усиление КФС пропорционально их числу, поскольку с увеличением этого числа растёт общая длина среды и количество атомов, которые генерируют излучение. При дальнейшем увеличении числа струй в зависимости появляется насыщение.

Отдельно остановимся на вопросе влияния КФС на эллиптичность генерируемых гармоник. При воздействии двухчастотного (основная и вторая гармоника) лазерного поля на одиночный атом, как показано на рис. 28, эллиптичность нечётных гармоник существенным образом зависит от временной задержки между воздействующими на атом импульсами и изменяется в широких пределах от 0 до 0,3 (на примере генерации 5-й гармоники в атоме аргона от Cr:F лазерного источника, длина волны $\lambda = 1,24$ мкм, длительность импульсов 120 фс, интенсивность основной гармоники $I_1 \sim 10^{13}$ Вт см $^{-2}$, второй — $I_2 \sim 10^{12}$ Вт см $^{-2}$, угол между векторами поляризаций компонент $\theta = \pi/4$), тогда как

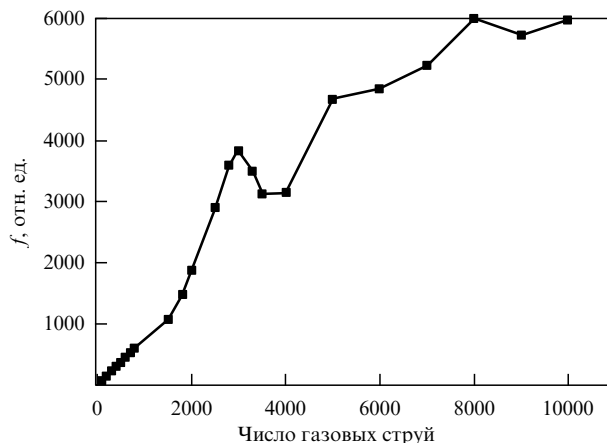


Рис. 27. Зависимость усиления КФС 195-й гармоники от количества струй при $\lambda = 6$ мкм, $d = 50$ мкм, $p_{\text{opt,QPM}} = 1,1$ бар [166].

эллиптичность чётных гармоник остаётся низкой (для 6-й гармоники — менее 0,03).

Пространственное профилирование среды способно изменить эллиптичность генерируемых гармоник (рис. 29а). Когда компоненты двухчастотного лазерного поля воздействуют на среду синхронно, при нулевой временной задержке, эллиптичности как чётных, так и нечётных гармоник не превышают 0,01–0,02, т.е. генерируется излучение, близкое к линейно поляризованному. Для того, чтобы исследовать возможность увеличения вклада эллиптического излучения отдельных атомов, проведём расчёты откликов профилированной среды на двухчастотное лазерное поле с временной задержкой 0,33 фс между его компонентами (см. рис. 29). Видно, что для нечётных гармоник (5-я) рассчитанная эллиптичность излучения существенно увеличилась, тогда как для чётных гармоник (6-я) величина эллиптичности практически не изменилась. Это связано с низкой эллиптичностью самих чётных гармоник, генерируемых отдельными атомами. Важно отметить, что в условиях КФС путём подбора времени задержки между компонентами двухчастотного лазерного поля удаётся получить эллиптически поляризованное излучение гармоник.

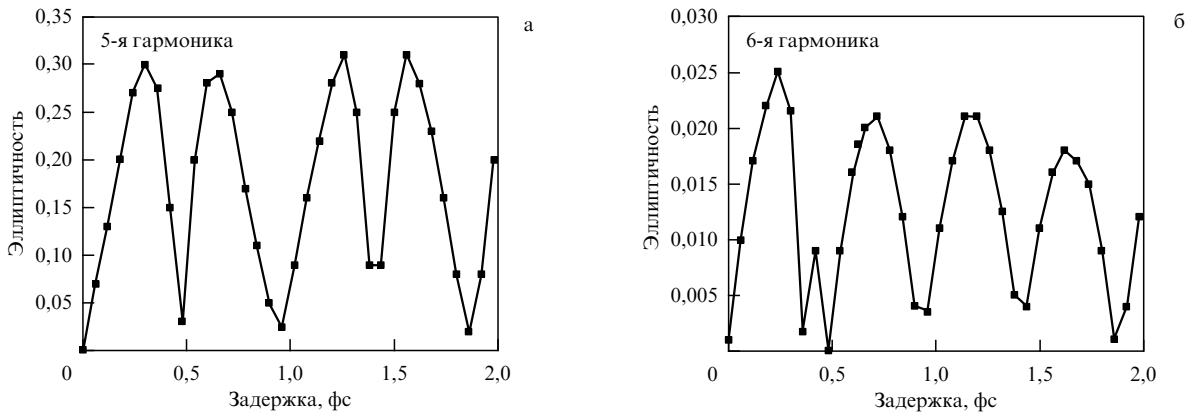


Рис. 28. Эллиптичность (а) нечётной и (б) чётной гармоники, генерируемых атомом аргона в зависимости от временной задержки между компонентами двухчастотного лазерного поля: основная и вторая гармоника Сг:F лазера, длина волны $\lambda = 1,24$ мкм, длительность импульсов 120 фс, интенсивность основной гармоники $I_1 \sim 10^{13}$ Вт см⁻², второй — $I_2 \sim 10^{12}$ Вт см⁻², угол между векторами поляризаций компонент $\theta = \pi/4$ [194].

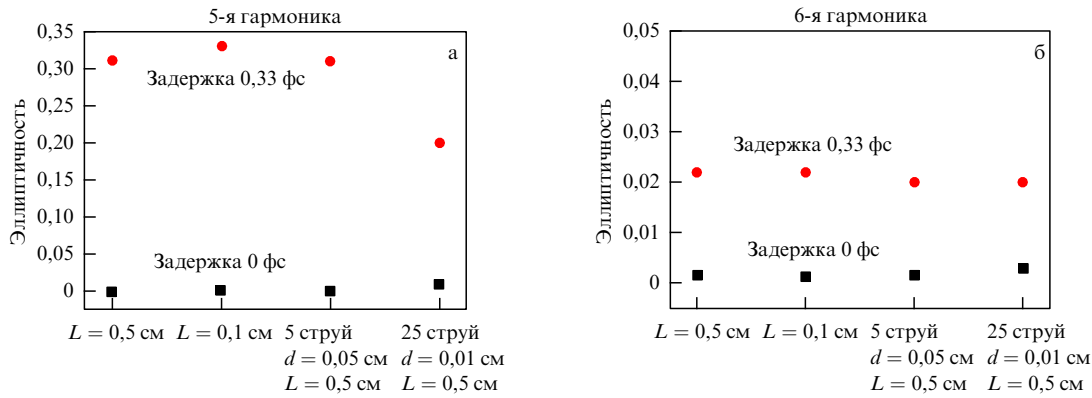


Рис. 29. Эллиптичность (а) нечётной и (б) чётной гармоники в аргоне для протяжённой и профилированной среды и двух временных задержек (0 фс — чёрные квадраты, 0,33 фс — красные точки) между компонентами двухчастотного лазерного поля: основная и вторая гармоника Сг:F лазера, длина волны $\lambda = 1,24$ мкм, длительность импульсов 120 фс [194].

4. Нелинейность среды — отклик атома в ближней зоне

4.1. Аналитическое вычисление нелинейной восприимчивости газовой среды

При распространении лазерного излучения в плотных газовых и в конденсированных средах и при исследовании свойств излучения гармоник применение интерференционной модели, т.е. представления суммарного поля как суммы полей от различных атомов становится трудно реализуемой для численного эксперимента, поскольку требует больших ресурсоемких вычислений. Наиболее удобным подходом в этом случае является представление о сплошной среде, нелинейные свойства которой характеризуются нелинейными восприимчивостями различного ранга. С помощью непертурбативного подхода оказывается возможным аналитический расчёт нелинейной восприимчивости газовой среды, чему и посвящена данная глава.

Микроскопический ток $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$, рассчитываемый по формуле (45), по результатам решения системы уравнений (40) амплитуд населённостей для уровней энергии, формирует электрическое поле $\mathbf{E}_{\text{resp}}(\mathbf{r}, t)$ в области про-

странства вне атома (в лоренцевской калибровке и в системе единиц СИ):

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{resp}}(\mathbf{r}, t) = & -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int \left[\frac{\partial \mathbf{j}(\mathbf{r}', t')}{\partial t} - \mathbf{n}' \left(\frac{\partial \mathbf{j}(\mathbf{r}', t')}{\partial t} \mathbf{n}' \right) \right] \times \\ & \times \frac{dV'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c} \int \mathbf{n}' (\mathbf{j}(\mathbf{r}', t') \mathbf{n}') \frac{dV'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2} + \\ & + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \mathbf{n}' \rho(\mathbf{r}', t') \frac{dV'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}, \end{aligned} \quad (80)$$

где $\mathbf{n}' = \mathbf{r} - \mathbf{r}' / |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$, $t' = t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/c$, величина $\rho(\mathbf{r}', t')$ является электронной плотностью:

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \psi^*(\mathbf{r}, t) \psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{n,m} a_n^*(t) u_n^*(\mathbf{r}) u_m(\mathbf{r}) a_m(t), \quad (81)$$

а вектор \mathbf{r} направлен из центра атома в точку, где определяется значение поля отклика. Обозначим этот вектор как \mathbf{r}_i , а через \mathbf{R}_i — радиус-вектор положения атома. Применение Фурье-преобразования упрощает вычисле-

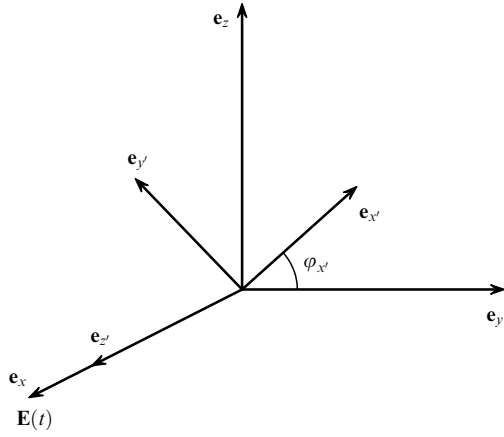


Рис. 30. Выбор системы отсчёта атома при вычислении поля отклика атома на лазерное поле [195].

ние электрического поля:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{resp},i}(\mathbf{r}_i, \omega) = & -\frac{i\omega}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int \frac{\mathbf{j}(\mathbf{r}'_i, \omega) - \mathbf{n}'_i(\mathbf{j}(\mathbf{r}'_i, \omega) \mathbf{n}'_i)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}'_i|} \times \\ & \times \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}'_i|\right) d^3 \mathbf{r}'_i + \\ & + \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c} \int \frac{\mathbf{n}'_i(\mathbf{j}(\mathbf{r}'_i, \omega) \mathbf{n}'_i)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}'_i|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}'_i|\right) d^3 \mathbf{r}'_i + \\ & + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{\mathbf{n}'_i \rho(\mathbf{r}'_i, \omega)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}'_i|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}'_i|\right) d^3 \mathbf{r}'_i. \quad (82) \end{aligned}$$

Для расчёта восприимчивости среды необходимо сложить электрические поля, генерируемые в данной точке $\mathbf{r} = (r, \theta, \varphi)$ всеми атомами среды, а затем провести усреднение по этим точкам. Значение поля отклика атома зависит только от положения вектора \mathbf{r}_i в системе отсчёта атома. Мысленно перенесём все атомы в начало координат, тогда вектора \mathbf{r}_i будут в точности совпадать с положением атомов в пространстве в исходной картине. Для ясности последующего изложения совместим направление распространения лазерного поля с ортом \mathbf{e}_z , направление поляризации лазерного поля — с ортом \mathbf{e}_x , через $\mathbf{r} = (r, \theta, \varphi)$ обозначим указанные выше вектора \mathbf{r}_i , систему отсчёта атома $\{\mathbf{e}_{x'}, \mathbf{e}_{y'}, \mathbf{e}_{z'}\}$ расположим так, чтобы $\mathbf{e}_{z'} = \mathbf{e}_x$, а орт $\mathbf{e}_{x'}$ был повернут относительно \mathbf{e}_y на угол $\varphi_{x'}$ (рис. 30). Тогда усреднённое поле отклика атомов среды будет результатом суммирования поля (82), во-первых, по вектору $\mathbf{r} = (r, \theta, \varphi)$, а, во-вторых, по углу $\varphi_{x'}$:

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{E}_{\text{resp}}(\omega) \rangle = & n_{\text{at}} \int_0^\infty r^2 \exp(-\gamma r) dr \int_0^\pi \sin \theta d\theta \times \\ & \times \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{2\pi} \frac{d\varphi_{x'}}{2\pi} \mathbf{E}_{\text{resp}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (83) \end{aligned}$$

где $n_{\text{at}} = p/k_B T$ — концентрация атомов среды, p — давление газовой среды, k_B — постоянная Больцмана, T — температура, $r_0 = \sqrt[3]{1/n_{\text{at}}}$ — половина среднего расстояния между атомами. При этом, так как интегрирование по r проводится в бесконечно больших пределах, то в выражении (83) необходимо учесть фазу лазерного поля $\exp(i\omega_0 z/c)$. Дополнительный множитель $\exp(-\gamma r)$ обусловлен потерей когерентности в полях отклика

атомов, расположенных на больших расстояниях r , при этом значение параметра γ оказывается незначительным.

Выражение (45) для плотности микроскопического тока $\mathbf{j}(\mathbf{r}', \omega)$ содержит оператор \mathbf{p} , который в дипольном приближении может быть представлен через оператор координаты \mathbf{r}' : $u_i^*(\mathbf{r}') \mathbf{p} u_p(\mathbf{r}') = u_i^*(\mathbf{r}') (i m_e / \hbar) (E_1 - E_p) \mathbf{r}' u_p(\mathbf{r}')$. Поэтому направление вектора плотности микроскопического тока совпадает с направлением радиус-вектора: $\mathbf{j}(\mathbf{r}', \omega) = \tilde{j}(\mathbf{r}', \omega) \mathbf{r}'$. Проведём усреднение по переменным $\varphi_{x'}$, φ , θ , r с учётом этого.

В приближении $r' \ll c/\omega \sim \lambda$ и $r' \ll r$, удерживая слабые до порядка r'/r включительно, получаем следующие выражения, входящие в (82):

$$\begin{aligned} \frac{\mathbf{r}' - \mathbf{n}'(\mathbf{r}' \mathbf{n}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|\right) \approx & \exp\left(\frac{i\omega r}{c}\right) \left(\frac{\mathbf{r}'}{r} - \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \mathbf{r}')}{r^3}\right) \rightarrow \\ \int_{d\varphi} \int_{d\varphi_{x'}} \frac{\mathbf{r}' \cos \theta'}{r} \exp\left(\frac{i\omega r}{c}\right) \left(1 - \frac{\sin^2 \theta}{2}\right) \mathbf{e}_x, \quad (84a) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\mathbf{n}'(\mathbf{r}' \mathbf{n}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|\right) \approx & \exp\left(\frac{i\omega r}{c}\right) \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \mathbf{r}')}{r^4} \rightarrow \\ \int_{d\varphi} \int_{d\varphi_{x'}} \frac{\mathbf{r}' \cos \theta'}{r^2} \exp\left(\frac{i\omega r}{c}\right) \left(\frac{\sin^2 \theta}{2}\right) \mathbf{e}_x, \quad (84b) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\mathbf{n}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|\right) \approx & \frac{1}{r^2} \exp\left(\frac{i\omega r}{c}\right) \times \\ \times \left[\frac{\mathbf{r}}{r} - \frac{\mathbf{r}'}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \mathbf{r}')}{r^3} \left(2 - \frac{i\omega r}{c}\right)\right] \int_{d\varphi} \int_{d\varphi_{x'}} \frac{\mathbf{r}' \cos \theta'}{r^3} \times \\ \times \exp\left(\frac{i\omega r}{c}\right) \left[-1 + \frac{\sin^2 \theta}{2} \left(2 - \frac{i\omega r}{c}\right)\right] \mathbf{e}_x. \quad (84b) \end{aligned}$$

Усреднение по углу θ проводится с учётом пространственной фазы лазерного поля $\exp(i\omega_0 z/c) = \exp(i\omega_0 r \cos \theta/c)$ вдоль направления распространения излучения. Поскольку нелинейная восприимчивость k -го порядка содержит лазерное поле в k -й степени, то и фазовый множитель будет в этой степени. Тогда для усреднения поля отклика атомов по углу θ используем следующие выражения:

$$\int_0^\pi \sin \theta \exp(ib \cos \theta) d\theta = 2 \frac{\sin b}{b}, \quad (85a)$$

$$\int_0^\pi \sin^3 \theta \exp(ib \cos \theta) d\theta = \frac{4}{b^2} \left(\frac{\sin b}{b} - \cos b\right), \quad (85b)$$

$$b = \frac{k\omega_0 r}{c}. \quad (85b)$$

Усреднённое электрическое поле отклика атомов среды $\langle \mathbf{E}_{\text{resp}}(\omega) \rangle$ на внешнее лазерное поле $\mathbf{E}(\omega)$, задаваемое векторным потенциалом $\mathbf{A}(\omega)$, является по сути поляризацией среды $\mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 \langle \mathbf{E}_{\text{resp}}(\omega) \rangle$, которая определяет тензор нелинейной восприимчивости различных порядков:

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{E}_{\text{resp}}(\omega) \rangle_S = & \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^{k-1}} \sum_{k=1}^{\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_1, \dots, d\omega_{k-1} \times \\ & \times \chi_{S, S_1, S_2, \dots, S_k}^{(k)}(\omega, \omega_1, \dots, \omega_{k-1}) E_{S_1}(\omega - \omega_1) \times \\ & \times E_{S_2}(\omega_1 - \omega_2), \dots, E_{S_k}(\omega_{k-1}). \quad (86) \end{aligned}$$

Заметим, что подобное разложение отклика среды по степеням внешнего поля, строго говоря, справедливо только при малых значениях напряжённости внешнего поля. Поэтому при получении аналитического разложения тока $\mathbf{j}(\mathbf{r}', \omega)$ по степеням лазерного поля будем считать населённость возбуждённых состояний малой по сравнению с населённостью основного состояния:

$$\begin{cases} a_0(t) = 1, \\ a_n(t) = 0, n > 0. \end{cases} \quad (87)$$

Разложим экспоненту, содержащуюся в выражении (45), в ряд:

$$\begin{aligned} V_{nm}(t) &= \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \left(-\frac{iq}{\hbar c} \right)^k \int u_n^*(\mathbf{r}') (A(t)r'_z)^k u_m(\mathbf{r}') d^3\mathbf{r}' = \\ &= \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \left(-\frac{iq}{\hbar c} \right)^k A^k(t)(r_x^k)_{nm}. \end{aligned} \quad (88)$$

Будем считать лазерное поле гармоническим $E(t) = E_a/2 (\exp(i\omega_0 t) + \exp(-i\omega_0 t))$. Тогда его фурье-образ $E(\omega) = (\sqrt{2\pi}/2) E_a (\delta(\omega - \omega_0) + \delta(\omega + \omega_0))$, а векторный потенциал и его k -я степень будут иметь вид:

$$\begin{aligned} A(t) &= i \frac{c}{2\omega_0} E_a (\exp(i\omega_0 t) - \exp(-i\omega_0 t)), \\ A^k(t) &= \left(i \frac{c}{2\omega_0} \right)^k E_a^k \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} \exp(i(k - 2k_1)\omega_0 t). \end{aligned} \quad (89)$$

Здесь и далее $C_k^{k_1} = k!/(k_1!(k - k_1)!)$ — число сочетаний. При решении системы уравнений (40) амплитуд для населённостей уровней энергии и вычислении плотности микроскопического тока (45) необходимо рассчитывать множители вида $V_{nl}^{-1} V_{pm}(t)$. При этом оператор \hat{V} в силу его определения является унитарным. Кроме того, как следует из разложения (88), матричные элементы $(r_z^k)_{nm}$ являются вещественными и симметричными относительно перестановки индексов. Тогда множители $V_{nl}^{-1} V_{pm}(t)$ с учётом (89) приводятся к виду:

$$\begin{aligned} V_{nl}^{-1} V_{pm}(t) &= \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{1}{2^k} R_{nl,pm}^k \sum_{k_3=0}^k C_k^{k_3} (-1)^{k_3} \times \\ &\times \exp(i(k - 2k_3)\omega_0 t), \end{aligned} \quad (90a)$$

$$R_{nl,pm}^k = \sum_{k_1=0}^k \frac{(-1)^{k_1}}{k_1!(k - k_1)!} (r_z^{k_1})_{nl} (r_z^{k-k_1})_{pm}. \quad (90b)$$

Матричные элементы $R_{nl,pm}^k$ являются вещественными числами и, в силу своей структуры, антисимметричными относительно перестановки пар индексов nl и pm : $R_{nl,pm}^k = (-1)^k R_{pm,nl}^k$. В силу же симметрии матричных элементов $(r_z^k)_{nm}$ относительно перестановки индексов, матричные элементы $R_{nl,pm}^k$ являются симметричными относительно перестановки индексов внутри пар индексов: $R_{nl,pm}^k = R_{pn,ml}^k = R_{ml,np}^k$.

В первом порядке малости по a_n/a_0 , полагая $a_0(t) \approx \exp(-iE_0 t/\hbar)$, уравнения динамики населённостей уровней с учётом (89) запишутся в виде:

$$\begin{aligned} \frac{da_n}{dt} &\approx \sum_m \left(-\frac{iE_m}{\hbar} \right) \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{R_{0m,m0}^k}{2^k} \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} \times \\ &\times \exp(i(k - 2k_1)\omega_0 t) \exp\left(-\frac{iE_0 t}{\hbar}\right). \end{aligned} \quad (90)$$

Решением этих уравнений будет:

$$\begin{aligned} a_0(t) &\approx \exp\left(-\frac{iE_0 t}{\hbar}\right) + \sum_m \left(\frac{E_m}{\hbar\omega_0} \right) \sum_{k=1}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{R_{0m,m0}^k}{2^k} \times \\ &\times \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} \frac{1 - \exp(i(k - 2k_1 - E_0/\hbar\omega_0)\omega_0 t)}{k - 2k_1 - E_0/\hbar\omega_0}, \end{aligned} \quad (91a)$$

$$\begin{aligned} a_n(t)|_{n>0} &\approx \sum_m \left(\frac{E_m}{\hbar\omega_0} \right) \sum_{k=1}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{R_{nm,m0}^k}{2^k} \times \\ &\times \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} \frac{1 - \exp(i(k - 2k_1 - E_0/\hbar\omega_0)\omega_0 t)}{k - 2k_1 - E_0/\hbar\omega_0}, \end{aligned} \quad (91b)$$

Из вида решений (91) следуют условия применимости излагаемого подхода. Для того, чтобы населённость всех уровней, кроме основного, была незначительной, необходимо потребовать, чтобы $q\langle r_z \rangle E_a E_0 / (\hbar\omega_0)^2 \ll 1$, где $q\langle r_z \rangle$ — характерное (максимальное) значение дипольного момента пары уровней атома, E_a — напряжённость лазерного поля, E_0 — энергия основного уровня, $\hbar\omega_0$ — энергия кванта лазерного поля.

Подставим амплитуды населённостей (91) и множитель (90) в выражения для плотности тока (45) и для электронной плотности (81). Они естественным образом разобьются на три слагаемых: 1) $n = m = 0$ и $a_0(t) \approx \exp(-iE_0 t/\hbar)$, 2) $n = m = 0$ и $a_0(t)$ вычисляется согласно (91a), 3) $n = 0, m \neq 0$ или $n \neq 0, m = 0$ и $a_n(t), a_m(t)$ вычисляются согласно (91b). Учитывая (82)–(86), получим окончательное выражение для нелинейной восприимчивости произвольного порядка, которое представимо в виде произведения числового множителя, факторов B_{at} , задаваемых структурой уровней атома, и факторов B_r , определяемых усреднением откликов атомов среды:

$$\begin{aligned} \chi^{(k)}(\omega) &= \frac{n_{at}}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{qa_B}{\hbar\omega_0} \right)^{k+1} (i\text{Ry} B_{at}^j B_r^j(\omega, k) + \\ &+ \hbar\omega_0 B_{at}^\rho B_r^\rho(\omega, k)), \end{aligned} \quad (92)$$

где $\text{Ry} = (m_e e^4)/2\hbar^2 = 2,18 \times 10^{-18}$ Дж, $a_B = 5,3 \times 10^{-11}$ м — радиус Бора, слагаемое $B_{at}^j B_r^j$ обусловлено микроскопическим током, а слагаемое $B_{at}^\rho B_r^\rho$ — электронной плотностью. При этом B_{at} и B_r являются безразмерными величинами, а все матричные элементы $R_{nl,pm}^k$ и $(r_z^k)_{nm}$ выражены в единицах a_B^k .

Множители B_{at} имеют вид:

$$B_{at}^{j,\rho}(\omega, k) = B_{at}^{j,\rho(0)}(\omega, k) + B_{at}^{j,\rho(1)}(\omega, k), \quad (93a)$$

$$\begin{aligned} B_{at}^{j(0)}(\omega, k) &= \sum_{lp} \frac{E_l - E_p}{\text{Ry}} (r_z)_{lp} R_{0l,p0}^k \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1}, \\ \frac{\omega}{\omega_0} &= k - 2k_1, \end{aligned} \quad (93b)$$

$$B_{at}^{\rho(0)}(\omega, k) = (r_z)_{00}, \quad \frac{\omega}{\omega_0} = 0, \quad (93b)$$

$$B_{at}^{j(1)}(\omega, k) = \sum_{lp} \frac{E_1 - E_p}{Ry} (r_z)_{lp} \sum_m \frac{E_m}{\hbar\omega_0} \sum_{k_1=0}^{k-1} \sum_{k_2=0}^{k_1} \sum_{k_3=0}^{k_2} \times \\ \times \frac{C_{k_1}^{k_3} C_{k-k_1}^{k_2} (-1)^{k_3+k_2}}{k - k_1 - 2k_2 - E_0/\hbar\omega_0} \times \\ \times \begin{cases} -\sum_n R_{0l,pm}^{k_1} R_{nm,m0}^{k-k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = k - 2k_3 - 2k_2 \\ -R_{0l,p0}^{k_1} R_{0m,m0}^{k-k_1} + (-1)^{k_1} \sum_{n>0} R_{0l,pm}^{k_1} R_{nm,m0}^{k-k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = -k + 2k_1 - 2k_3 + 2k_2 \end{cases} \quad (93r)$$

$$B_{at}^{p(1)}(\omega, k) = \sum_m \frac{E_m}{\hbar\omega_0} \sum_{k_1=0}^{k-1} \frac{C_{k_1}^{k_1} (-1)^{k_1}}{k - 2k_1 - E_0/\hbar\omega_0} \times \\ \times \left(-\sum_n R_{nm,m0}^k (r_z)_{n0} \right), \frac{\omega}{\omega_0} = \begin{bmatrix} k - 2k_1 \\ -k + 2k_1 \end{bmatrix}. \quad (93d)$$

Множители B_r имеют вид:

$$B_r^j(\omega, k) = 2 \int_{x_0}^{\infty} \exp\left(i \frac{\omega}{\omega_0} x\right) \exp(-\gamma x) \times \\ \times \left[-i \frac{\omega}{k\omega_0} \sin kx + \frac{1}{(kx)^2} \left(\frac{\sin kx}{kx} - \cos kx \right) \right] \times \\ \times \left(1 + i \frac{\omega}{\omega_0} x \right) dx, \quad (94a)$$

$$B_r^p(\omega, k) = 2 \int_{x_0}^{\infty} \frac{\exp(i(\omega/\omega_0)x)}{x} \exp(-\gamma x) \times \\ \times \left[-\frac{\sin kx}{kx} + \frac{1}{(kx)^2} \left(\frac{\sin kx}{kx} - \cos kx \right) \right] \times \\ \times \left(2 - i \frac{\omega}{\omega_0} x \right) dx, \quad (94b)$$

причём величина $x_0 = \omega_0/c\sqrt[3]{n_{at}}$ определяется половиной среднего расстояния между атомами (поскольку усреднённое поле отклика атомов определяется в точках, равноудалённых от атомов, так что сложение полей отклика начинается с атомов, расположенных на расстоянии, равном половине среднего расстояния между атомами), а множитель $\exp(-\gamma r)$ обусловлен потерей когерентности в полях отклика атомов, расположенных на больших расстояниях от точки наблюдения.

Выражение (92) для нелинейной восприимчивости газовой среды обладает тремя примечательными особенностями. Во-первых, оно описывает нелинейные свойства среды, а не изолированных атомов. Во-вторых, оно содержит в себе произвольный порядок k и поэтому позволяет рассчитывать нелинейные эффекты, квадратичные по лазерному полю, кубичные и т.д. В-третьих, оно описывает различные нелинейные процессы, реализуемые на нелинейной восприимчивости определённого порядка, например, процесс $\omega = \omega_0 + \omega_0 + \omega_0 = 3\omega_0$ или $\omega = \omega_0 - \omega_0 + \omega_0 = \omega_0$ за счёт нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$.

Ещё раз подчеркнём приближения, в рамках которых было получено выражение (92). Использовалось длинноволновое приближение $r' \ll c/\omega \sim \lambda$ и условие достаточной разреженности газовой среды: $r' \ll r$, которое может быть переформулировано как $r_0 = 1/\sqrt[3]{n_{at}} \gg a_B$. Это

условие выполняется вплоть до давлений газовой среды (при температуре 300 К) $p \sim 1$ бар, когда $k_0/a_B \approx 70$. Второе приближение — условие малости возбуждения атомов, так что населённость всех возбуждённых уровней мала по сравнению с населённостью основного уровня. Это условие выполняется при $(q(r_z) E_a E_0)/(\hbar\omega_0)^2 \ll 1$. Например, для атома водорода $E_0 = 13,6$ эВ, при длине волны лазерного излучения 1 мкм (энергия кванта $\hbar\omega_0 \approx 1,2$ эВ), при $\langle r_z \rangle \approx a_B = 5 \times 10^{-11}$ м получаем условие на напряжённость лазерного поля: $E_a \ll 2$ ГВ м⁻¹, что соответствует интенсивности $I \ll 5 \times 10^{15}$ Вт м⁻². В случае сильного возбуждения атомов лазерным полем, в том числе резонансного, аналитическое выражение для нелинейной восприимчивости получить крайне затруднительно. Однако в этом случае численные расчёты динамики населённостей уровней и спектра усреднённого поля отклика позволяют выделить значение нелинейной восприимчивости среды.

Укажем на одну важную особенность полученного выражения (92). Как известно, в однородной среде, обладающей центром инверсии, сигнал чётных гармоник должен быть нулевым. Прямой расчёт по формулам (92)–(94) для чётных k показывает нулевой сигнал на всех частотах $\omega = (k-n)\omega_0$, где $n \leq k$ — чётное число. Такое согласие с известным аналитическим фактом подтверждает справедливость полученных выражений и также может служить мерой точности численного расчёта значения нелинейной восприимчивости среды. Действительно, для использования выражения (92) необходимо предварительно рассчитать матричные элементы $R_{nl,pm}^k$ и $(r_z^k)_{nm}$, которые существенным образом зависят от размера и дискретизации пространственной расчётной сетки. Критерием достаточности размера и дискретизации сетки как раз и может служить факт зануления сигнала чётных гармоник.

4.2. Особенности нелинейных восприимчивостей и генерации гармоник в аргоне

Рассмотрим в качестве газовой среды аргон. Выберем базис водородоподобных волновых функций $u_{nlm}(r, \theta, \varphi)$ с энергиями уровней E_n (пренебрегаем спин-орбитальным взаимодействием, но учитываем неполную экранировку заряда ядра электронами внутренних оболочек [167]):

$$u_{nlm}(r, \theta, \varphi) = \sqrt{\frac{(n-l-1)!}{2n(n+l)!}} \left(\frac{2Z_{\text{eff}}}{na_B} \right)^3 \exp\left(-\frac{Z_{\text{eff}}r}{na_B}\right) \times \\ \times \left(\frac{2Z_{\text{eff}}r}{na_B} \right)^l L_{n-l-1}^{2l+1} \left(\frac{2Z_{\text{eff}}r}{na_B} \right) Y_{lm}(\theta, \varphi), \quad (95)$$

$$E_n = -\frac{e^2}{8\pi\epsilon_0 a_B} \left(\frac{Z_{\text{eff}}}{n} \right)^2, \quad (96)$$

где Z_{eff} — эффективный заряд атомного остова, $a_B = (4\pi\epsilon_0\hbar^2)/m_e e^2$ — радиус Бора, $L(x)$ — обобщённый полином Лагерра, $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ — сферическая функция, n, l, m — главное, орбитальное и магнитное квантовые числа соответственно. Величину Z_{eff}/n можно определить по спектроскопическим данным об энергии уровней аргона [168]. Для атома Ag значения Z_{eff} собраны в таблице.

Заметим, что энергии уровней являются приближёнными, не учитывается тонкое и сверхтонкое расщеп-

Таблица. Эффективный заряд атомного остова Ag, определённый по спектроскопическим данным [168]

Уровень	Z_{eff}	Уровень	Z_{eff}	Уровень	Z_{eff}
3p	3,227	4f	1,005	5f	1,005
3d	1,123	5s	1,761	6s	1,559
4s	2,224	5p	1,545	6p	1,408
4p	1,830	5d	1,101	7s	1,445
4d	1,121				

ление уровней. Поэтому задаваемую таким образом электронную структуру необходимо рассматривать в качестве модельной, но приближённой к реальной структуре.

Значения нелинейных восприимчивостей $\chi^{(3)}$, $\chi^{(5)}$ и $\chi^{(7)}$ для процессов генерации 3-й, 5-й и 7-й гармоник, рассчитанные по выражению (92) при нормальных условиях (давление 1 бар и температура 300 К), представлены на рис. 31 для диапазона длин волн лазерного излучения от видимого до среднего инфракрасного. Отметим, что полученное аналитическое выражение (92) использует предположение о малости амплитуд населённости возбуждённых уровней и, таким образом, пренебрегается резонансным переносом населённости с одного возбуждённого уровня на другой.

Нелинейные восприимчивости увеличиваются с длиной волны лазера, и они различаются в несколько раз для

разных комбинаций частот: $\chi^{(3)}(\omega_0): \chi^{(3)}(3\omega_0) \approx 3:1$, $\chi^{(5)}(\omega_0): \chi^{(5)}(3\omega_0): \chi^{(5)}(5\omega_0) \approx 10:5:1$, $\chi^{(7)}(\omega_0): \chi^{(7)}(3\omega_0): \chi^{(7)}(5\omega_0): \chi^{(7)}(7\omega_0) \approx 30:20:6:1$ независимо от длины волны лазерного излучения.

Сигнал определённой гармоники генерируется по нескольким различным каналам. В видимом диапазоне длин волн доминирующий вклад на частоте $\omega = n\omega_0$ вносит восприимчивость низшего порядка $\chi^{(n)}$. Однако вклад восприимчивостей более высокого порядка отличен от нуля, хотя и в несколько единиц или десятков раз меньше. На рисунке 32а показана амплитуда 3-й гармоники, нормированная на амплитуду лазерного поля, при генерации посредством нелинейных восприимчивостей 3-го, 5-го и 7-го порядков. Эти каналы генерации имеют существенно разные зависимости от интенсивности лазерного излучения. Поэтому при большой интенсивности лазерного излучения эффективность генерации 3-й гармоники посредством нелинейностей 5-го и 7-го порядков начинает превышать эффективность канала генерации посредством нелинейности 3-го порядка (кружки на рис. 32а). Этот факт свидетельствует о несостоятельности разложения поляризации среды в ряд по степеням лазерного поля и переходе от пертурбативного к непертурбативному режиму генерации гармоник. В видимом диапазоне длин волн это происходит при интенсивностях лазерного излучения $I > 1 \text{ ТВт см}^{-2}$, что выходит за рамки приближений, использованных при выводе аналитического выражения (92). Однако увеличение длины волны лазерного излучения приводит к уменьшению ин-

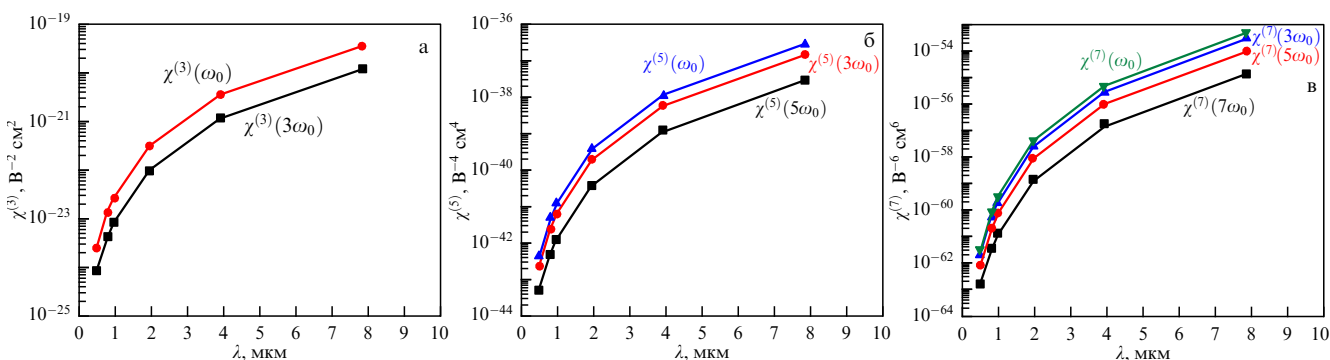


Рис. 31. Нелинейная восприимчивость (а) 3-го, (б) 6-го и (в) 7-го порядков в аргоне при давлении 1 бар и температуре 300 К [195].

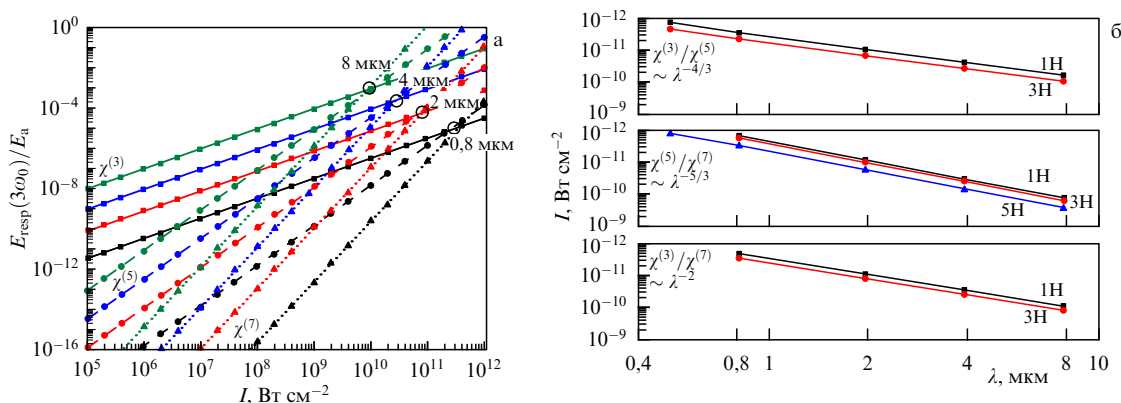


Рис. 32. (а) Амплитуда сигнала 3-й гармоники, нормированная на амплитуду лазерного поля, в аргоне при давлении 1 бар и температуре 300 К. Кружки указывают на значения интенсивности лазерного излучения, при котором вклад нелинейных восприимчивостей различных порядков в сигнал 3-й гармоники становится одинаковым. (б) Такие значения интенсивности лазерного излучения в зависимости от длины волны [195].

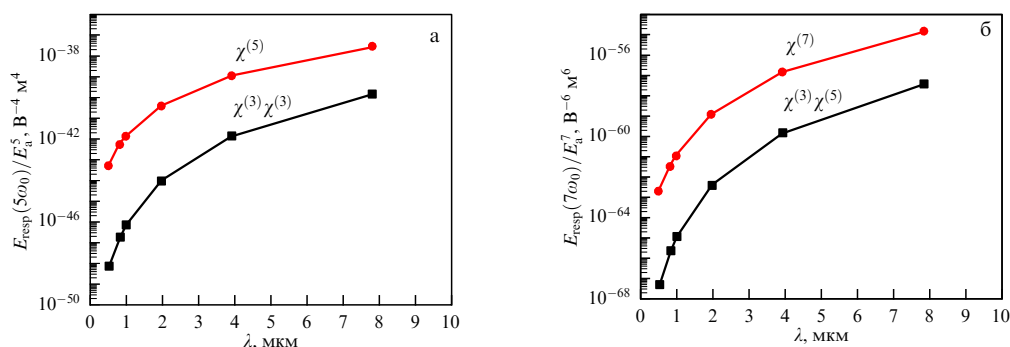


Рис. 33. Эффективность генерации (а) 5-й и (б) 7-й гармоник в прямом канале (красные кривые) и в каскадном канале (чёрные кривые) [195].

тенсивности этого перехода. Такая же тенденция проявляется и в случае генерации 1-й и 5-й гармоник. Детальное рассмотрение показывает, что интенсивность лазерного излучения, при которой происходит этот переход масштабируется с длиной волны как $\lambda^{-4/3}$ для каналов $\chi^{(3)}/\chi^{(5)}$, как $\lambda^{-5/3}$ для каналов $\chi^{(5)}/\chi^{(7)}$ и как λ^{-2} для каналов $\chi^{(3)}/\chi^{(7)}$ (рис. 32б). Таким образом, смещение длины волны в средний инфракрасный диапазон приводит к тому, что даже при небольших интенсивностях лазерного излучения ($10^{10} - 10^{12}$ Вт см $^{-2}$) вклады различных нелинейных восприимчивостей в сигнал гармоники становятся сопоставимыми.

На рисунке 33 сравнивается эффективность генерации 5-й и 7-й гармоник для двух различных каналов генерации: прямого канала посредством $\chi^{(5)}$ и $\chi^{(7)}$ соответственно, и каскадного канала посредством двойного действия $\chi^{(3)}$ (рис. 33а) или совместного действия $\chi^{(3)}$ и $\chi^{(5)}$ (рис. 33б). При любой используемой длине волны от 500 нм до 8 мкм прямой канал оказывается значительно сильнее (на 5–6 порядков по интенсивности сигнала) каскадного. В подавляющем большинстве моделей распространения лазерного излучения в среде используется только нелинейная восприимчивость $\chi^{(3)}$, и гармоники более высокого порядка (больше 3-го) генерируются через каскадный канал. Однако полученный результат указывает на то, что нелинейные восприимчивости более высокого порядка нельзя опускать.

Предложенный подход по вычислению нелинейных восприимчивостей среды может быть объединен с экспериментальными исследованиями с целью поиска перспективных газовых сред, в том числе синтетических, с увеличенной эффективностью генерации гармоник высокого порядка и с более широким генерируемым спектром.

5. Заключение

В обзоре приведено описание непертурбативного подхода к исследованию отклика одиночного атома на интенсивное лазерное поле, который позволяет рассчитывать взаимодействия излучения с веществом на микроскопическом (квантово-механическом) уровне. Описана интерференционная модель, которая, учитывая особенности взаимодействия излучения с атомами, расположенными в среде, позволяет рассчитывать параметры генерируемого когерентного излучения, учитывая как фазовое, так и квазифазовое согласо-

вание. Детально описан способ расчёта значений нелинейных восприимчивостей произвольного порядка протяжённой газовой среды. Полученные аналитические выражения могут быть использованы в современных программах по расчёту распространения мощного лазерного излучения в веществе. Проанализированы влияние как параметров многокомпонентного произвольно поляризованного излучения, так и параметров среды на эффективность генерации и поляризационные свойства генерируемого когерентного коротковолнового излучения.

Проведённые с использованием описанного комплексного подхода экспериментально ориентированные теоретические расчёты показали хорошее качественное, а в некоторых случаях и количественное согласие с соответствующими экспериментальными результатами по исследованию особенностей генерации гармоник в газах (Ar, Ne, Xe, Xe + CO $_2$) [77, 82, 165], в плазме (Ag, In) [163, 170, 189, 196–197], в газо-кластерных смесях (Ar) [198], а также по генерации терагерцового излучения (CO $_2$) [199].

Рассмотренные методы управления свойствами генерируемого излучения открывают новые возможности в создании компактных мультиспектральных источников когерентного излучения различного применения: для спектроскопии высокомолекулярных соединений, для развития методов диагностики биологических, фармацевтических и композитных материалов в режиме реального времени в медицинских центрах и на производствах, при создании литографических устройств нового поколения, необходимых для микро- и наноэлектроники, для развития методик проведения предварительных лабораторных исследований новых материалов с последующим использованием установок класса мегасайенс (источников синхротронного излучения, лазеров на свободных электронах), при развитии методов генерации аттосекундных лазерных импульсов, а также при генерации "затравочного" излучения в современных рентгеновских лазерах на свободных электронах, что позволяет улучшать как энергетические, так и когерентные свойства генерируемого излучения [200].

Авторы выражают благодарность профессору А.В. Андрееву за полезные обсуждения результатов, представленных в обзоре. Работа выполнена при поддержке Российского Научного Фонда (грант № 24-22-00188, <https://rscf.ru/project/24-22-00188/>).

Список литературы

1. Ахманов С А (Ред.) *Мощные пико- и фемтосекундные лазерные системы; вещество в сверхсильных световых полях* (Итоги науки и техники, Сер. Современные проблемы лазерной физики, Т. 4) (М.: ВИНТИ, 1991)
2. Borrego-Varillas R, Lucchini M, Nisoli M *Rep. Prog. Phys.* **85** 066401 (2022)
3. Hassan M Th *ACS Photonics* **11** 334 (2024)
4. Arkhipov R et al. *Sci. Rep.* **11** 1961 (2021)
5. Бломберген Н *Нелинейная оптика* (М.: Мир, 1966); Пер. с англ. яз.: Bloembergen N *Nonlinear Optics* (New York: W. A. Benjamin, 1965)
6. Беленов Э М, Назаркин А В *Письма в ЖЭТФ* **51** 252 (1990); Belenov E M, Nazarkin A V *JETP Lett.* **51** 288 (1990)
7. Маймистов А И *Квантовая электроника* **30** 287 (2000); Maimistov A I *Quantum Electron.* **30** 287 (2000)
8. Козлов С А *Оптика и спектроскопия* **79** 290 (1995); Kozlov S A *Opt. Spectrosc.* **79** 267 (1995)
9. Камчатнов А М *УФН* **191** 52 (2021); Kamchatnov A M *Phys. Usp.* **64** 48 (2021)
10. Розанов Н Н, Архипов М В, Архипов Р М *УФН* **194** 1196 (2024); Rosanov N N, Arkhipov M V, Arkhipov R M *Phys. Usp.* **67** 1129 (2024)
11. Сазонов С В *Письма в ЖЭТФ* **102** 951 (2015); Sazonov S V *JETP Lett.* **102** 834 (2015)
12. Делоне Н Б, Крайнов В П *Атом в сильном световом поле* (М.: Энергоатомиздат, 1984); Пер. на англ. яз.: Delone N B, Krainov V P *Atoms in Strong Light Fields* (Berlin: Springer-Verlag, 1995)
13. Федоров М В *Электрон в сильном световом поле* (М.: Наука, 1991)
14. Коротеев Н И, Шумай И Л *Физика мощного лазерного излучения* (М.: Наука, 1991)
15. Делоне Н Б *Взаимодействие лазерного излучения с веществом* (М.: Наука, 1989)
16. Делоне Н Б, Крайнов В П *Основы нелинейной оптики атомарных газов* (М.: Наука, 1986)
17. Ильинский Ю А, Келдыш Л В *Взаимодействие электромагнитного излучения с веществом* (М.: Изд-во МГУ, 1989); Пер. на англ. яз.: Il'inskii Yu A, Keldysh L V *Electromagnetic Response of Material Media* (New York: Plenum Press, 1994)
18. Рапопорт Л П, Зон Б А, Манаков Н Л *Теория многофотонных процессов в атомах* (М.: Атомиздат, 1978)
19. Ganeev R A *Resonance Enhancement in Laser-Produced Plasmas: Concepts and Applications* (New York: John Wiley and Sons, 2018) DOI:10.1002/9781119472346
20. Ganeev R A *Frequency Conversion of Ultrashort Pulses in Extended Laser-Produced Plasmas* (Singapore: Springer, 2016) DOI:10.1007/978-981-10-0194-9
21. Ganeev R A *High-Order Harmonic Generation in Laser Plasma Plumes* (London: Imperial College Press, 2012)
22. Делоне Н Б и др. *УФН* **120** 3 (1976); Delone N B et al. *Sov. Phys. Usp.* **19** 711 (1976)
23. Делоне Н Б, Крайнов В П *УФН* **165** 1295 (1995); Delone N B, Krainov V P *Phys. Usp.* **38** 1247 (1995)
24. Ким А В, Рябикин М Ю, Сергеев А М *УФН* **169** 58 (1999); Kim A V, Ryabkin M Yu, Sergeev A M *Phys. Usp.* **42** 54 (1999)
25. Попов В С *УФН* **174** 921 (2004); Popov V S *Phys. Usp.* **47** 855 (2004); Попов В С *УФН* **169** 819 (1999); Popov V S *Phys. Usp.* **42** 733 (1999)
26. Платоненко В Т, Стрелков В В *Квантовая электроника* **25** 582 (1998); Platonenko V T, Strelkov V V *Quantum Electron.* **28** 564 (1998)
27. Жёлтиков А М *УФН* **187** 1169 (2017); Zheltikov A M *Phys. Usp.* **60** 1087 (2017)
28. Löffler T et al. *Acta Phys. Polon. A* **107** 99 (2005)
29. Tzortzakis S et al. *Opt. Lett.* **27** 1944 (2002)
30. Bartel T et al. *Opt. Lett.* **30** 2805 (2005)
31. Andreeva V A et al. *Phys. Rev. Lett.* **116** 063902 (2016)
32. Ушаков А А и др. *УФН* **194** 169 (2024); Ushakov A A et al. *Phys. Usp.* **67** 157 (2024)
33. Yang S-H et al. *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* **4** 575 (2014)
34. Пономарёв Д С и др. *УФН* **194** 2 (2024); Ponomarev D S et al. *Phys. Usp.* **67** 3 (2024)
35. Zhang X C, Shkurinov A P, Zhang Y *Nature Photon.* **11** 16 (2017)
36. Кучиев М Ю *Письма в ЖЭТФ* **45** 319 (1987); Kuchiev M Yu *JETP Lett.* **45** 404 (1987)
37. Corkum P B *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994 (1993)
38. Платоненко В Т *Квантовая электроника* **31** 55 (2001); Platonenko V T *Quantum Electron.* **31** 55 (2001)
39. Schafer K J et al. *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599 (1993)
40. Schötz J et al. *Phys. Rev. X* **10** 041011 (2020)
41. Ганеев Р А *УФН* **183** 815 (2013); Ganeev R A *Phys. Usp.* **56** 772 (2013)
42. Vampa G et al. *Opt. Express* **26** 12210 (2018)
43. Goulielmakis E, Brabec T *Nature Photon.* **16** 411 (2022)
44. Weissenbilder R et al. *Nature Rev. Phys.* **4** 713 (2022)
45. Ganeev R A *Appl. Phys. B* **129** 17 (2023)
46. Schütz G, Knülle M, Ebert H *Phys. Scr.* **1993** (T49A) 302 (1993) DOI:10.1088/0031-8949/1993/T49A/053
47. Stöhr J et al. *Science* **259** 658 (1993)
48. Eisebitt S et al. *Nature* **432** 885 (2004)
49. Burnett N H et al. *Appl. Phys. Lett.* **31** 172 (1977)
50. McLean E A et al. *Appl. Phys. Lett.* **31** 825 (1977)
51. Carman R L, Benjamin R F, Rhodes C K *Phys. Rev. A* **24** 2649 (1981)
52. Reitze D H et al. *Opt. Lett.* **29** 86 (2004)
53. Kazamias S et al. *Nature Phys.* **6** 927 (2010)
54. Fareed M A et al. *Phys. Rev. Lett.* **121** 023201 (2018)
55. Ганеев Р А *УФН* **179** 65 (2009); Ganeev R A *Phys. Usp.* **52** 55 (2009)
56. Ghimire S et al. *Nature Phys.* **7** 138 (2011)
57. Ghimire S, Reis D A *Nature Phys.* **15** 10 (2019)
58. Dromey B et al. *Nature Phys.* **2** 456 (2006)
59. Schweigert I V, Mukamel S *Phys. Rev. Lett.* **99** 163001 (2007)
60. Mitrofanov A V et al. *Opt. Lett.* **40** 2068 (2015)
61. Tate J et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901 (2007)
62. Frolov M V, Manakov N L, Starace A F *Phys. Rev. Lett.* **100** 173001 (2008)
63. Frolov M V et al. *Phys. Rev. A* **92** 023409 (2015)
64. Emelina A S, Emelin M Yu, Ryabikin M Yu *Phys. Rev. A* **93** 043802 (2016)
65. Taranukhin V D *Laser Phys.* **10** 330 (2000)
66. Walser M W et al. *Phys. Rev. Lett.* **85** 5082 (2000)
67. Chirilă C C et al. *Phys. Rev. A* **66** 063411 (2002)
68. Emelina A S, Emelin M Yu, Ryabikin M Yu *J. Opt. Soc. Am. B* **32** 2478 (2015)
69. Peng D et al. *Phys. Rev. A* **95** 033413 (2017)
70. Brunel F *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 521 (1990)
71. Redkin P V, Kodirov M K, Ganeev R A *J. Opt. Soc. Am. B* **28** 165 (2011)
72. Laryushin I D, Romanov A A, Vvedenskiĭ N V *Opt. Lett.* **50** 2207 (2025)
73. Salières P, L'Huillier A, Lewenstein M *Phys. Rev. Lett.* **74** 3776 (1995)
74. Balcou P et al. *Phys. Rev. A* **55** 3204 (1997)
75. Paul A et al. *Nature* **421** 51 (2003)
76. Willner A et al. *Phys. Rev. Lett.* **107** 175002 (2011)
77. Migal E A, Stremoukhov S Yu, Potemkin F V *Phys. Rev. A* **101** 021401 (2020)

78. Ciriolo A G et al. *J. Phys. Photon.* **2** 024005 (2020)
79. Seres J et al. *Nature Phys.* **3** 878 (2007)
80. Pirri A, Corsi C, Bellini M *Phys. Rev. A* **78** 011801 (2008)
81. Hareli L, Shoulga G, Bahabad A *J. Phys. B* **53** 233001 (2020)
82. Lambert G et al. *Nature Commun.* **6** 6167 (2015)
83. Willems F et al. *Phys. Rev. B* **92** 220405 (2015)
84. Alves C et al. *Phys. Rev. B* **100** 144421 (2019)
85. Antoine P et al. *Phys. Rev. A* **53** 1725 (1996)
86. Weihe F A, Bucksbaum P H *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 157 (1996)
87. Shan B, Ghimire S, Chang Z *Phys. Rev. A* **69** 021404 (2004)
88. Zhang G P, George Th F *Phys. Rev. A* **74** 023811 (2006)
89. Liu C et al. *Phys. Rev. A* **97** 063412 (2018)
90. Flettner A et al. *Eur. Phys. J. D* **21** 115 (2002)
91. Möller M et al. *Phys. Rev. A* **86** 011401 (2012)
92. Li Y et al. *Opt. Express* **21** 4896 (2013)
93. Kakehata M et al. *Phys. Rev. A* **55** R861 (1997)
94. Ivanov M Yu, Brabec T, Burnett N *Phys. Rev. A* **54** 742 (1996)
95. Wang B et al. *Phys. Rev. A* **103** 053119 (2021)
96. Fleischer A et al. *Nature Photon.* **8** 543 (2014)
97. Ferré A et al. *Nature Photon.* **9** 93 (2015)
98. Lehmeier H J, Leupacher W, Penzkofer A *Opt. Commun.* **56** 67 (1985)
99. Shaw M J, Hooker C J, Wilson D C *Opt. Commun.* **103** 153 (1993)
100. Lundeen T, Hou S-Y, Nibler J W *J. Chem. Phys.* **79** 6301 (1983)
101. Ахманов С А, Хохлов Р В *Проблемы нелинейной оптики (Электромагнитные волны нелинейных диспергирующих средах) 1962–1963* (Сер. Итоги науки) (М.: ВИНТИ АН СССР, 1964)
102. Boyd R W *Nonlinear Optics* (Oxford: Academic Press, 2008)
103. Азаренков А Н и др. *Квантовая электроника* **20** 733 (1993); Azarenkov A N et al. *Quantum Electron.* **23** 633 (1993)
104. Dolgaleva K et al. *Phys. Rev. A* **92** 023809 (2015)
105. Тсупкин А et al. *Phys. Rev. Applied* **15** 054009 (2021)
106. Brée C, Demircan A, Steinmeyer G *Phys. Rev. A* **85** 033806 (2012)
107. Shelton D P *Phys. Rev. A* **36** 3032 (1987)
108. Bishop D M, Lam B *Phys. Rev. A* **37** 464 (1988)
109. Spott A, Jaroń-Becker A, Becker A *Phys. Rev. A* **90** 013426 (2014)
110. Becker W, Milošević D B *Laser Phys.* **19** 1621 (2009)
111. Kobe D H *Int. J. Quantum Chem.* **14** (S12) 73 (1978)
112. Han Y-C, Madsen L B *Phys. Rev. A* **81** 063430 (2010)
113. Gamow G Z. *Phys.* **51** 204 (1928)
114. Gurney R W, Condon E U *Nature* **122** 439 (1928)
115. Zener C *Proc. R. Soc. London A* **145** 523 (1934)
116. Келдыш Л В *ЖЭТФ* **33** 994 (1957); Keldysh L V *Sov. Phys. JETP* **6** 763 (1958)
117. Kane E O *J. Phys. Chem. Solids* **12** 181 (1960)
118. Бонч-Бруевич А М, Ходовой В А *УФН* **85** 5 (1965); Bonch-Bruевич A M, Khodovoi V A *Sov. Phys. Usp.* **8** 1 (1965)
119. Гладун А Д, Барашев П П *УФН* **98** 493 (1969); Gladun A D, Barashev P P *Sov. Phys. Usp.* **12** 490 (1970)
120. Келдыш Л В *ЖЭТФ* **47** 1945 (1964); Keldysh L V *Sov. Phys. JETP* **20** 1307 (1965); Келдыш Л В *УФН* **187** 1280 (2017); Keldysh L V *Phys. Usp.* **60** 1187 (2017)
121. Wolkow D M Z. *Phys.* **94** 250 (1935)
122. Ксионг В, Чин С Л *ЖЭТФ* **99** 481 (1991); Xiong W, Chin S L *Sov. Phys. JETP* **72** 268 (1991)
123. Fittinghoff D N et al. *Phys. Rev. Lett.* **69** 2642 (1992)
124. Moshhammer R et al. *Phys. Rev. Lett.* **84** 447 (2000)
125. Mohideen U et al. *Phys. Rev. Lett.* **71** 509 (1993)
126. Никишов А И, Ритус В И *ЖЭТФ* **50** 255 (1966); Nikishov A I, Ritus V I *Sov. Phys. JETP* **23** 168 (1966)
127. Переломов А М, Попов В С, Терентьев М В *ЖЭТФ* **50** 1393 (1966); Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V *Sov. Phys. JETP* **23** 924 (1966)
128. Переломов А М, Попов В С, Терентьев М В *ЖЭТФ* **51** 309 (1966); Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V *Sov. Phys. JETP* **24** 207 (1967)
129. Переломов А М, Попов В С *ЖЭТФ* **52** 514 (1967); Perelomov A M, Popov V S *Sov. Phys. JETP* **25** 336 (1967)
130. Аммосов М В, Делоне Н Б, Крайнов В П *ЖЭТФ* **91** 2008 (1986); Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P *Sov. Phys. JETP* **64** 1191 (1986)
131. Faisal F H M *J. Phys. B* **6** L89 (1973)
132. Reiss H R *Phys. Rev. A* **22** 1786 (1980)
133. Reiss H R *Prog. Quantum Electron.* **16** 1 (1992)
134. Карнаков Б М, Мур В Д, Попов В С *Письма в ЖЭТФ* **88** 495 (2008); Karnakov B M, Mur V D, Popov V S *JETP Lett.* **88** 423 (2008); Карнаков Б М и др. *УФН* **185** 3 (2015); Karnakov B M et al. *Phys. Usp.* **58** 3 (2015)
135. Гладков С М, Коротеев Н И *УФН* **160** (7) 105 (1990); Gladkov S M, Koroteev N I *Sov. Phys. Usp.* **33** 554 (1990)
136. Стрелков В В и др. *УФН* **186** 449 (2016); Strelkov S M et al. *Phys. Usp.* **59** 425 (2016); Рябкин М Ю, Емелин М Ю, Стрелков В В *УФН* **193** 382 (2023); Ryabikin M Yu, Emelin M Yu, Strelkov V V *Phys. Usp.* **66** 360 (2023)
137. Lewenstein M et al. *Phys. Rev. A* **49** 2117 (1994)
138. Lewenstein M, Salières P, L'Huillier A *Phys. Rev. A* **52** 4747 (1995)
139. Gaarde M B et al. *Phys. Rev. A* **59** 1367 (1999)
140. Khokhlova M A, Strelkov V V *Phys. Rev. A* **93** 043416 (2016)
141. Becker W, Long S, McIver J K *Phys. Rev. A* **50** 1540 (1994)
142. Becker W et al. *Phys. Rev. A* **56** 645 (1997)
143. Strelkov V V *Phys. Rev. A* **74** 013405 (2006)
144. Salières P et al. *Science* **292** 902 (2001)
145. Strelkov V *Phys. Rev. Lett.* **104** 123901 (2010)
146. Kulander K C *Phys. Rev. A* **35** 445 (1987)
147. Kulander K C, Schafer K J, Krause J L *Phys. Rev. Lett.* **66** 2601 (1991)
148. Im K, Grobe R, Eberly J H *Phys. Rev. A* **49** 2853 (1994)
149. Gajda M, Piraux B, Rzażewski K *Phys. Rev. A* **50** 2528 (1994)
150. Telnov D A, Chu S-I *Phys. Rev. A* **71** 013408 (2005)
151. Le A-T et al. *J. Phys. B* **41** 081002 (2008)
152. Lagmago Kamta G, Bandrauk A D *Phys. Rev. A* **71** 053407 (2005)
153. Ivanov I A, Kheifets A S *Phys. Rev. A* **79** 053827 (2009)
154. He F, Ruiz C, Becker A *Phys. Rev. A* **75** 053407 (2007)
155. Clementi E, Roetti C *At. Data Nucl. Data Tables* **14** 177 (1974)
156. Bachau H et al. *Rep. Prog. Phys.* **64** 1815 (2001)
157. Cormier E, Lambropoulos P *J. Phys. B* **30** 77 (1997)
158. Chen S et al. *Phys. Rev. A* **86** 013410 (2012)
159. Javanainen J, Eberly J H, Su Q *Phys. Rev. A* **38** 3430 (1988)
160. Волкова Е А и др. *ЖЭТФ* **129** 48 (2006); Volkova E A et al. *J. Exp. Theor. Phys.* **102** 40 (2006)
161. Волкова Е А, Попов А М, Тихонова О В *ЖЭТФ* **113** 593 (1998); Volkova E A, Popov A M, Tikhonova O V *J. Exp. Theor. Phys.* **86** 328 (1998)
162. Andreev A V, Stremoukhov S Yu, Shoutova O A *Eur. Phys. J. D* **66** 16 (2012)
163. Ganeev R A et al. *Eur. Phys. J. D* **74** 199 (2020)
164. Andreev A V, Stremoukhov S Yu *Phys. Rev. A* **87** 053416 (2013)
165. Stremoukhov S et al. *Phys. Rev. A* **94** 013855 (2016)
166. Stremoukhov S *J. Opt. Soc. Am. B* **39** 1203 (2022)
167. Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Квантовая механика: нерелятивистская теория* (М.: Физматлит, 2002); Пер. на англ. яз.: Landau L D, Lifshitz E M *Quantum Mechanics. Non-Relativistic Theory* (Oxford: Pergamon Press, 1991)
168. Moore C E, Merrill P W *Partial Grotrian Diagrams of Astrophysical Interest* (Washington, DC: National Bureau of Standards, 1968)

169. Bethe H A, Salpeter E E *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Berlin: Academic Press, 1957) DOI:10.1007/978-3-662-12869-5
170. Andreev A V et al. *Eur. Phys. J. D* **67** 22 (2013)
171. Andreev A V, Stremoukhov S Y, Shoutova O A *J. Opt. Soc. of Am. B* **30** 1794 (2013)
172. Shafir D et al. *New J. Phys.* **12** 073032 (2010)
173. Popmintchev T et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **106** 10516 (2009)
174. Stremoukhov S Yu, Yakovlev A A, Andreev A V *Laser Phys. Lett.* **17** 085405 (2020)
175. Mahieu B et al. *Phys. Rev. A* **97** 043857 (2018)
176. Андреев А В, Стремоухов С Ю, Шутова О А *Оптика и спектроскопия* **112** 454 (2012); Andreev A V, Stremoukhov S Yu, Shutova O A *Opt. Spectrosc.* **112** 410 (2012)
177. Stremoukhov S Yu, Andreev A V *Laser Phys.* **28** 035403 (2018)
178. Kolesik M, Moloney J V *Rep. Prog. Phys.* **77** 016401 (2014)
179. Börzsönyi Á et al. *Opt. Express* **18** 25847 (2010)
180. RefractiveIndex.INFO website, <https://refractiveindex.info/>
181. Lambert G et al. *Sci. Rep.* **5** 7786 (2015)
182. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **83** 063837 (2011)
183. Catoire F et al. *Phys. Rev. A* **94** 063401 (2016)
184. Carlström S et al. *New J. Phys.* **18** 123032 (2016)
185. Zaïr A et al. *Phys Rev. Lett.* **100** 143902 (2008)
186. Takahashi E et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 158 (2003)
187. Ganeev R A *J. Phys. B* **49** 095402 (2016)
188. Ganeev R A, Suzuki M, Kuroda H *Phys. Rev. A* **89** 033821 (2014)
189. Ganeev R A et al. *Appl. Sci.* **9** 1701 (2019)
190. Stremoukhov S *Atoms* **11** (7) 103 (2023)
191. Румянцев Б В и др. *Письма в ЖЭТФ* **115** 431 (2022); Romyantsev B V et al. *JETP Lett.* **115** 390 (2022)
192. Riedel D et al. *Rev. Sci. Instrum.* **72** 1977 (2001)
193. Popmintchev T et al. *Science* **336** 1287 (2012)
194. Стремоухов С Ю *Письма в ЖЭТФ* **121** 18 (2025); Stremoukhov S Yu *JETP Lett.* **121** 16 (2025)
195. Lvov K, Stremoukhov S *Opt. Lett.* **50** 3740 (2025)
196. Stremoukhov S Y, Ganeev R A, Andreev A V, in *X-Ray Lasers 2018. ICXRL 2018, Proc. of the 16th Intern. Conf. on X-Ray Lasers* (Springer Proc. in Physics, Vol. 241, Eds M Kozlová, J Nejd1) (Cham: Springer, 2020) p. 99, DOI:10.1007/978-3-030-35453-4_15
197. Stremoukhov S, Ganeev R, Andreev A *Eur. Phys. J. Web Conf.* **220** 01013 (2019)
198. Zhvaniya I A et al. *J. Phys. Conf. Ser.* **1692** 012017 (2020)
199. Andreev A V et al. *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* **10** 85 (2020)
200. Lambert G *Nature Phys.* **4** 296 (2008)

Atom in intense laser fields: from the generation of coherent short-wavelength radiation to the nonlinear properties of the gas medium

K.V. Lvov^(1,2), S.Yu. Stremoukhov^(1,2,3,*)

⁽¹⁾ Lomonosov Moscow state University, Faculty of Physics, Leninskie gory 1, str. 2, 119991 Moscow, Russian Federation

⁽²⁾ National Research Center 'Kurchatov Institute', pl. Akademika Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russian Federation

⁽³⁾ Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, Leninskii prosp. 53, 119991 Moscow, Russian Federation

E-mail: (*) sustrem@gmail.com

The interaction of intense laser fields with matter is accompanied by a multitude of phenomena, ranging from the generation of coherent radiation across various spectral ranges (from terahertz to soft X-rays) to the creation of beams of accelerated charged particles and micromodification of the volume and surface of various samples. To describe this diversity of phenomena, several theoretical approaches have been developed to date. These approaches utilize different approximations to address this complex nonlinear problem, allowing for the explanation of specific aspects of such interactions. The developed theoretical frameworks consider the interaction at both microscopic and macroscopic levels; at the microscopic level, they investigate the characteristics of single atoms interacting with laser fields, while at the macroscopic level, they analyze nonlinear susceptibilities that describe the nonlinear polarization of the medium during the propagation of laser radiation through it. This work presents an overview of methods describing some of the most commonly employed theoretical approaches to model the response of a medium at a microscopic (quantum-mechanical) level, as well as various methods for controlling the properties of generated coherent radiation. A model for the gas medium is described that accounts for both the response characteristics of individual atoms and allows for consideration of phase and quasi-phase matching effects during radiation generation. The influence of medium parameters on the efficiency of generation and polarization properties of generated radiation is analyzed under both phase and quasi-phase matching conditions. A detailed description of an analytical method for calculating the nonlinear susceptibility of a gas medium is provided. The obtained values of nonlinear susceptibility for arbitrary orders may be useful in numerical calculations concerning the propagation of laser radiation in matter. Various channels for radiation generation are analyzed as parameters of the laser field are varied.

Keywords: interaction of intense laser radiation with matter, high-order harmonic generation, phase synchronization, non-perturbative theory, nonlinear susceptibility of the medium

PACS numbers: 42.25.Ja, 42.65.Ky, 42.65.Re, **42.65. – k**

Bibliography — 200 references

Received 11 July 2025, revised 23 September 2025

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **196** (4) 333–368 (2026)

Physics – Uspekhi **69** (4) (2026)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2025.09.040041>

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2025.09.040041>