

УДК 535.5

## ОТКЛИК АТОМА, ВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩЕГО С ПРОИЗВОЛЬНО ПОЛЯРИЗОВАННЫМ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫМ ПОЛЕМ

А. В. Андреев<sup>1</sup>, С. Ю. Стрелмоухов<sup>1</sup>, О. А. Шутова<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Московский госуниверситет им. М. В. Ломоносова;

<sup>2</sup> Международный учебно-научный лазерный центр  
Московского госуниверситета им. М. В. Ломоносова, г. Москва, Россия

В настоящей работе развита теория взаимодействия электромагнитного поля и одиночного атома, находящегося в состоянии с произвольным значением и направлением углового момента атомного электрона по отношению к направлению вектора поляризации поля. Показано, что ток отклика атома имеет тензорную структуру и зависит как от направления углового момента атома, так и от вектора поляризации внешнего поля. Тензорный характер отклика обусловлен наведённой внешним полем анизотропией плотности распределения вероятности пространственной локализации атомного электрона. Продемонстрировано, что эффекты наведённой анизотропии проясняют механизм генерации гармоник при нерезонансном взаимодействии лазерного излучения с атомарными средами. Развита теория применена к анализу задачи о генерации терагерцового излучения в двухцветном лазерном поле. Показано, что изменение взаимной ориентации векторов поляризации волн приводит к значительному повышению эффективности преобразования высокочастотных полей в низкочастотные. Впервые показано, что генерация терагерцового излучения возможна в доионизационном режиме, когда механизм генерации связан с атомной нелинейностью.

### ВВЕДЕНИЕ

Вид волновой функции электрона свободного атома определяется сферической симметрией внутриатомного потенциала. При появлении внешнего электромагнитного поля волновая функция электрона будет изменяться, поскольку состояние электрона определяется теперь не только силой, действующей на электрон со стороны ядра атома, но и внешней силой, которая не обладает центральной симметрией. Вид волновой функции атомного электрона в этом случае неизбежно будет зависеть от поляризации внешней электромагнитной волны. В рамках классической физики это означает, что изменение траектории движения атомного электрона при появлении внешнего поля зависит от его поляризации. Именно наводимая внешним полем анизотропия распределения плотности вероятности пространственной локализации атомного электрона (по сравнению с распределением для свободного атома), ввиду её нестационарности, является причиной отклика атома в процессе его нерезонансного взаимодействия с электромагнитным полем. Отметим, что, поскольку потенциальная энергия взаимодействия электрона и ядра зависит от расстояния между ними, то даже при гармоническом воздействии изменение скорости электрона, в общем случае, будет отличаться от гармонического. Это является причиной появления гармоник частоты действующего поля в отклике атома. Из общих соображений ясно, что величина наводимой анизотропии существенно зависит от соотношения величины силы, действующей на электрон со стороны внешнего поля, и внутриатомной силы. Остановимся ещё на одном аспекте рассматриваемого явления. Собственные волновые функции краевой задачи о движении электрона в произвольном сферически симметричном внутриатомном поле имеют хорошо известный вид

$$u_{nlm}(\mathbf{r}) = R_{nl}(r) Y_{lm}(\theta, \varphi) \quad (1)$$

и характеризуются заданием главного квантового числа  $n$  (или радиального  $n_r$ ), углового момента  $l$  и его проекции  $m$ . Угловая зависимость волновых функций (1) задана в системе координат,

однозначно связанной с угловым моментом отдельного атома, поскольку проекция углового момента на ось  $z$  принимает лишь целочисленные значения. Следовательно, единичный вектор  $\mathbf{n}_z^{(i)}$  задаёт ориентацию осей конфигурационного пространства состояний  $i$ -го атома в лабораторной системе координат, общей для всего атомного ансамбля.<sup>1</sup>

Как видно, несмотря на сферическую симметрию внутриатомного потенциала, угловое распределение волновой функции в общем случае не является изотропным. Для всех состояний с неравным нулю угловым моментом оно является аксиально симметричным относительно вектора  $\mathbf{n}_z^{(i)}$ . При действии внешнего поля на атом, находящийся в состоянии с равным нулю угловым моментом, внешнее поле меняет сферическую симметрию его волновой функции на аксиальную. Если атом находится в состоянии с неравным нулю угловым моментом, то при действии внешнего поля  $\mathbf{E}$  его волновая функция принимает тензорный характер и зависит от направления двух векторов:  $\mathbf{e}$  и  $\mathbf{n}_z^{(i)}$ . В неполяризованном ансамбле атомов направления векторов  $\mathbf{n}_z^{(i)}$  хаотичны, а направление вектора поляризации электромагнитной волны строго детерминировано. Как следствие, отклик неполяризованного ансамбля атомов отличается от отклика поляризованного ансамбля, поскольку правила отбора для переходов в каждом отдельном атоме неполяризованного ансамбля являются различными.

В настоящей работе развивается теория отклика атома, находящегося в состоянии с произвольным значением и направлением углового момента и взаимодействующего с внешней электромагнитной волной, имеющей произвольную поляризацию. Помимо чисто теоретического интереса указанная задача представляет и практическое значение, связанное с возможностью развития методов управления спектром нелинейно-оптического отклика атома. Несмотря на более чем двадцатилетнюю историю, эффект генерации гармоник высокого порядка до сих пор привлекает к себе значительный интерес (см., например, обзоры [1–4]). В последнее время он связан, главным образом, с развитием методов повышения эффективности преобразования исходного электромагнитного поля как в коротковолновое (ультрафиолетовое и рентгеновское [4]), так и в длинноволновое (терагерцовое [5]) излучение, а также методов генерации аттосекундных импульсов [6]. Выбор аргона в качестве исследуемого вещества продиктован тем, что он довольно часто используется в экспериментальных исследованиях по генерации как низших [7], так и высших гармоник [8], что позволяет сравнивать полученные теоретические данные с экспериментом.

На ранних этапах развития исследований по взаимодействию атома с интенсивным лазерным излучением основное внимание, как правило, уделялось взаимодействию атома с линейно поляризованным полем. Это объясняется тем, что с ростом эллиптичности поляризации лазерной волны интенсивность излучения на высоких гармониках резко падает [9] и в циркулярно поляризованном поле наблюдается, в основном, линейный отклик. Вместе с тем модуляция поляризации воздействующего импульса, которая впервые, по-видимому, была предложена в [10], является эффективным методом генерации субфемтосекундных импульсов [6, 11, 12]. Методы двухимпульсного двухчастотного управления фотоэмиссионным и фотоэлектронным спектрами атома обсуждались в работах [13, 14]. В последнее время они нашли широкое применение для управления эффективностью генерации терагерцового излучения [5], когда два импульса с несущими частотами  $\omega$  и  $2\omega$  одновременно или с некоторой временной задержкой взаимодействуют с атомарной или молекулярной средой. Варьирование интенсивности, длительности и времени задержки между импульсами позволяет значительно повысить эффективность преобразования по сравнению с ранними одноимпульсными схемами [15, 16]. В рамках двухчастотной методи-

<sup>1</sup> Следует отметить, что квантово-механическое среднее оператора углового момента в состояниях с волновой функцией (1) имеет вид:  $\langle nlm | \mathbf{l} | nlm \rangle = \mathbf{n}_z \hbar m$ . Поэтому, в целях краткости, мы будем говорить, что направление оси  $z$  совпадает с направлением углового момента атома, имея в виду его квантово-механическое среднее.

ки рассматривались также влияние взаимной поляризации импульсов на частотах  $\omega$  и  $2\omega$  на эффективность генерации для случая их коллинеарной, ортогональной или циркулярной поляризации [17–19]. В работе [13] использовалось линейно и циркулярно поляризованное излучение первой и второй гармоник частоты лазера на неодимовом стекле с длиной волны выходящего поля  $\lambda = 1053$  нм. В случае линейно поляризованного излучения рассматривались как коллинеарная, так и ортогональная геометрии и было обнаружено сильное влияние геометрии задачи на процесс генерации гармоник высокого порядка. Также сильная поляризационная зависимость эффективности генерации терагерцового излучения была экспериментально показана в [20].

Отметим, что в теории, привлекаемой для интерпретации механизма генерации терагерцового излучения при использовании одноимпульсных схем, рассматривались процессы четырёхволнового смешения (выпрямления) в лазере-индуцированной плазме [16, 21]. Вместе с тем эта же модель с феноменологически введёнными нелинейностями плазмы используется и для интерпретации результатов многочастотных схем. В качестве иллюстрации возможностей развиваемого нами подхода мы приводим результаты численных расчётов спектра отклика аргона при воздействии лазерных импульсов с интенсивностью  $I$  ниже порога ионизации (в численных расчётах  $I < 6,77 \cdot 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>). Хотя при такой интенсивности также возможна ионизация, её малая величина не позволяет привлекать плазменные нелинейности к исчерпывающему объяснению отклика атома. Результаты численного моделирования в рамках предлагаемой теории позволяют сделать, по крайней мере, два важных вывода. Во-первых, генерация терагерцового излучения в двухчастотном поле не обязательно связана с плазменными нелинейностями, а может быть обусловлена чисто атомными нелинейностями. Во-вторых, изменение взаимной ориентации векторов поляризации импульсов открывает уникальные возможности управления эффективностью конверсии, поскольку соответствующие зависимости являются существенно немонотонными.

В настоящее время существует ряд теорий, которые достаточно хорошо описывают генерацию гармоник высокого порядка [22–29]. Однако практически все они при описании взаимодействия с лазерными полями используют дипольное приближение (см. [30]). Проведённые нами ранее исследования [31] показывают, что даже в области полей с интенсивностями  $I \sim 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> использование только первого приближения теории возмущений оказывается недостаточным. Необходимость учёта более высоких, чем диполь, мультиполей для более строгого описания процессов в сильном поле, приводит к нарушению дипольных правил отбора и, в частности, снятию запрета на генерацию чётных гармоник. Поскольку наша теория изначально строилась как непертурбативная, в ней были предсказаны явления, которые наблюдались в работах [13, 32], т. е. генерация в фотоэмиссионных спектрах чётных гармоник наряду с нечётными.

Недостаток некоторых теоретических подходов (см., например, [23, 25, 29]) состоит в том, что в них учитывается лишь один дискретный уровень, населённость которого считается постоянной. Однако наличие сильного влияния изменения населённости дискретных уровней атома на его отклик как в области полей, близких к атомным, так и в области полей, соответствующих интенсивности  $I \sim 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>, которое представляется вполне естественным, может быть продемонстрировано и в рамках нашей теории [33].

Новизна предлагаемой работы состоит и в том, что влияние величины угла между векторами поляризации компонент лазерного поля на генерацию гармоник, по-видимому, прежде последовательно не исследовалось. Вместе с тем влияние такого важного параметра, как временная фаза поля, исследовалось в работе [27], но при этом направления поляризации компонент двухцветного поля в этой работе совпадали.

# 1. ВОЛНОВАЯ ФУНКЦИЯ АТОМА В ПОЛЕ ВНЕШНЕЙ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОЙ ВОЛНЫ

## 1.1. Краевая задача для атома во внешнем поле

Уравнение краевой задачи для атома со сферически симметричным внутриатомным потенциалом имеет вид

$$\left[ \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + U(r) \right] u_n(\mathbf{r}) = E_n u_n(\mathbf{r}). \quad (2)$$

Его решения имеют вид (1). Обратимся теперь к краевой задаче для атома во внешнем поле, которая в нерелятивистском приближении сводится к решению уравнения

$$\left\{ \frac{1}{2m} \left[ \hat{\mathbf{p}} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t) \right]^2 + U(r) \right\} \varphi_N(\mathbf{r}, t) = E_N \varphi_N(\mathbf{r}, t). \quad (3)$$

Подставляя в (3) волновую функцию в виде

$$\varphi_N(\mathbf{r}, t) = u_n(\mathbf{r}) \exp \left[ i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r} \right], \quad (4)$$

мы получаем уравнение (2), где

$$E_N = E_n. \quad (5)$$

Таким образом, мы видим, что собственные значения краевых задач (2) и (3) в точности совпадают, а собственные волновые функции различны. Квантовое число  $n$  является совокупностью трёх квантовых чисел, т. е.  $n = (nlm)$ , которые однозначно определяют вид радиальной и угловой зависимостей волновых функций  $u_{nlm}(\mathbf{r})$ . Учитывая простоту выражения (4), естественно положить  $N = (nlm)$ . Однако радиальное и угловое распределения волновых функций  $\varphi_N(\mathbf{r}, t)$  зависят от времени, и потому квантовые числа  $(nlm)$  не имеют в этом случае традиционного смысла радиального квантового числа, углового момента и его проекции. Вместе с тем  $|\varphi_N(\mathbf{r}, t)|^2 = |u_n(\mathbf{r})|^2$ . Следовательно, распределение плотности вероятности пространственной локализации атомного электрона в обоих случаях оказывается одинаковым. Это означает, что энергия кулоновского взаимодействия электрона и ядра остаётся неизменной, поскольку неизменным остаётся не только распределение плотности вероятности, но и все пространственные моменты распределения, например  $P_\alpha^{(nm)} = \int u_n^* x_\alpha u_m dV = \int \varphi_n^* x_\alpha \varphi_m dV$  и т. д. Именно это обстоятельство и является причиной совпадения собственных значений энергии (5).

## 1.2. Связь собственных функций двух базисов

Следует отметить, что базис функций  $\varphi_n(\mathbf{r}, t)$  является таким же полным, как и базис функций  $u_n(\mathbf{r})$ . Действительно, условия ортонормированности и полноты волновых функций  $\varphi_n(\mathbf{r}, t)$  имеют, соответственно, вид

$$\begin{aligned} \int \varphi_n^*(\mathbf{r}, t) \varphi_m(\mathbf{r}, t) dV &= \int u_n^*(\mathbf{r}) u_m(\mathbf{r}) dV = \delta_{nm}, \\ \sum_n \varphi_n^*(\mathbf{r}, t) \varphi_n(\mathbf{r}', t) &= \exp \left[ -i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) (\mathbf{r} - \mathbf{r}') \right] \sum_n u_n^*(\mathbf{r}) u_n(\mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \end{aligned} \quad (6)$$

Следовательно, любая функция одного базиса может быть представлена в виде разложения по собственным волновым функциям другого базиса:

$$\varphi_n(\mathbf{r}, t) = \sum_m V_{nm}^{-1} u_m(\mathbf{r}), \quad u_n(\mathbf{r}) = \sum_m V_{nm} \varphi_m(\mathbf{r}, t), \quad (7)$$

где оператор преобразования  $V$ , согласно (4), имеет вид

$$V = \exp\left[-i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r}\right]. \quad (8)$$

Воспользуемся хорошо известной формулой

$$\exp\left[i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r}\right] = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l i^l j_l \left[\frac{q}{\hbar c} A(t)r\right] Y_{lm}^*[\mathbf{e}(t)] Y_{lm}(\mathbf{n}), \quad (9)$$

где  $\mathbf{e}(t) = \mathbf{A}(t)/A(t)$ ,  $\mathbf{n} = \mathbf{r}/r$  и  $j_l(z)$  — сферические функции Бесселя. Тогда, пользуясь теорией сложения угловых моментов, для матричных элементов оператора  $V$  получаем

$$\langle n_2 l_2 m_2 | V^{-1} | n_1 l_1 m_1 \rangle = \sum_{l=|l_1-l_2|}^{l_1+l_2} Y_{lm}^*[\mathbf{e}(t)] C(lm | l_2 m_2, l_1 m_1) \langle n_2 l_2 \parallel j_l \left[\frac{q}{\hbar c} A(t)r\right] \parallel n_1 l_1 \rangle, \quad (10)$$

где

$$C(lm | l_2 m_2, l_1 m_1) = (-1)^{l+m_2} \begin{pmatrix} l_2 & l & l_1 \\ -m_2 & m & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_2 & l & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sqrt{4\pi (2l+1)(2l_1+1)(2l_2+1)}, \quad (11)$$

и приведённые матричные элементы имеют вид

$$\langle n_2 l_2 \parallel j_l \left[\frac{q}{\hbar c} A(t)r\right] \parallel n_1 l_1 \rangle = \int_0^{\infty} R_{n_2 l_2}(r) j_l \left[\frac{q}{\hbar c} A(t)r\right] R_{n_1 l_1}(r) r^2 dr. \quad (12)$$

Таким образом, мы видим, что угловая зависимость матричных элементов  $V_{nm}$  находится полностью в аналитическом виде. Что же касается их радиальной зависимости, определяемой (12), то при использовании базиса собственных волновых функций водородоподобного атома она также определяется аналитически для произвольных состояний дискретного и непрерывного спектров (см. [33–36]).

Подставляя (10) во второе уравнение (7), получаем

$$\varphi_{n_1 l_1 m_1}(\mathbf{r}, t) = \sum_{n_2 l_2 m_2} \sum_{l=|l_1-l_2|}^{l_1+l_2} R_{n_2 l_2}(r) \langle n_2 l_2 \parallel j_l \parallel n_1 l_1 \rangle Y_{lm}^*(\mathbf{e}) Y_{l_2 m_2}(\mathbf{n}) C(lm | l_2 m_2, l_1 m_1). \quad (13)$$

Как видно из (13), угловая часть волновой функции  $\varphi_n(\mathbf{r}, t)$  зависит от взаимной ориентации вектора напряжённости электромагнитного поля  $\mathbf{e}$ , направление которого определяется в лабораторной системе координат, которая является общей для всего атомного ансамбля, и направления единичного вектора  $\mathbf{n}$ , задаваемого в конфигурационном пространстве каждого отдельного атома ансамбля.

Волновая функция становится аксиально-симметричной в двух случаях: а)  $l_1 = 0$  и б)  $\mathbf{e} \parallel \mathbf{n}_z$ . В первом случае волновая функция (13) принимает вид

$$\varphi_{n_1 l_1=0}(\mathbf{r}, t) = 2 \sqrt{\pi} \sum_{n_2 l_2} (-1)^{l_2} R_{n_2 l_2}(r) \langle n_2 l_2 \parallel j_{l_2} \parallel n_1 0 \rangle \sum_{m_2=-l_2}^{l_2} Y_{l_2 m_2}^*(\mathbf{e}) Y_{l_2 m_2}(\mathbf{n}). \tag{14}$$

Учитывая выражение

$$\sum_{m=-l}^l Y_{lm}^*(\mathbf{e}) Y_{lm}(\mathbf{n}) = \frac{2l+1}{4\pi} P_l(\mathbf{en}),$$

мы видим, что волновая функция (14) имеет аксиально-симметричный вид относительно направления вектора поляризации электромагнитного поля. Во втором случае, пользуясь выражением

$$Y_{lm}(\mathbf{e})|_{\mathbf{e}=\mathbf{n}_z} = i^l \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} \delta_{m0},$$

получаем

$$\varphi_{n_1 l_1 m_1}(\mathbf{r}, t) = \sum_{n_2 l_2} \sum_{l=|l_1-l_2|}^{l_1+l_2} i^l \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} R_{n_2 l_2}(r) \langle n_2 l_2 \parallel j_l \parallel n_1 l_1 \rangle Y_{l_2 m_1}(\mathbf{n}) C(l_0 \mid l_2 m_1, l_1 m_1). \tag{15}$$

Как видно из (15), волновая функция является суперпозицией волновых функций  $u_{n'l'm}(\mathbf{r})$  с одним и тем же значением проекции углового момента на направление внешнего поля. Это отражает тот факт, что сохраняющейся величиной в краевой задаче (3) является лишь проекция углового момента на направление внешнего поля, а величина углового момента сохраняющейся величиной не является.

### 1.3. Уравнения для амплитуд вероятности

В субрелятивистской области напряжённостей электромагнитного поля лазерного импульса взаимодействие с ним одиночного атома описывается нестационарным уравнением Шрёдингера

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \left\{ \frac{1}{2m} \left[ \hat{\mathbf{p}} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t) \right]^2 + U(r) \right\} \psi. \tag{16}$$

Матричные элементы гамильтониана уравнения (16) в базе собственных функций краевых задач (2) и (3) имеют, соответственно, вид

$$\int u_n^*(\mathbf{r}) \left[ \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right)^2 + U(r) \right] u_m(\mathbf{r}) dV = \sum_p V_{np}^{-1}(t) E_p V_{pm}(t),$$

$$\int \varphi_n^*(\mathbf{r}, t) \left[ \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right)^2 + U(r) \right] \varphi_m(\mathbf{r}, t) dV = E_n \delta_{nm}.$$

Как видно, матричные элементы в базе собственных функций  $\varphi_n(\mathbf{r}, t)$  имеют гораздо более простой вид, поскольку указанные волновые функции являются собственными волновыми функциями гамильтониана уравнения (16). Поэтому казалось бы естественным разложить волновую функцию нестационарного уравнения (16) в ряд по собственным функциям краевой задачи (3).

Однако, учитывая наличие временной производной в левой части уравнения (16), несложно видеть, что при разложении волновой функции в ряд по собственным функциям  $\varphi_n(\mathbf{r}, t)$  мы неизбежно столкнёмся с проблемой расчёта интегралов следующего вида  $\int \partial \varphi_m(\mathbf{r}, t) / \partial t \varphi_n^*(\mathbf{r}, t) dV$ . Однако гамильтониан краевой задачи (3) зависит явно от времени, поэтому производные  $\partial \varphi_n(\mathbf{r}, t) / \partial t$  не являются его собственными функциями и, следовательно, не ортогональны волновым функциям  $\varphi_n(\mathbf{r}, t)$ .

Вместе с тем, как мы показали выше, собственные волновые функции краевых задач (2) и (3) взаимно однозначно связаны друг с другом, поэтому мы можем разложить волновую функцию нестационарного уравнения (16) в ряд по собственным волновым функциям свободного атома

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n(t) u_n(\mathbf{r}), \quad (17)$$

а затем воспользоваться разложениями (7). После несложных преобразований для амплитуд вероятности  $a_n(t)$  получаем

$$i\hbar \frac{da_n}{dt} = \sum_{m,k} V_{nk}^{-1} E_k V_{km} a_m. \quad (18)$$

Таким образом, мы видим, что основную роль в рамках развиваемого подхода начинают играть матричные элементы оператора  $V$ , определяемого равенством (8).

Введём составные матричные элементы, которые являются коэффициентами при амплитудах населенностей уровней в (18):

$$M_{nm} = \sum_k V_{nk}^{-1} E_k V_{km}. \quad (19)$$

Согласно определению (8), оператор  $V$  можно представить в виде бесконечного ряда по степеням поля

$$V = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \left( -i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A} \mathbf{r} \right)^n. \quad (20)$$

Ограничимся лишь первыми двумя слагаемыми указанного разложения, что является достаточным для полей существенно субатомной напряжённости. В этом случае составные матричные элементы (19) принимают вид

$$M_{nm} \approx \sum_k \left( 1 + i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A} \mathbf{r} \right)_{nk} E_k \left( 1 - i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A} \mathbf{r} \right)_{km}.$$

Оставляя в правой части лишь слагаемые, линейные по полю, получаем

$$M_{nm} = E_n \delta_{nm} - i\omega_{nm} \frac{q}{c} (\mathbf{A} \mathbf{r})_{nm} + \dots$$

Полагая  $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0 \exp(-i\omega_0 t)$ , в случае  $\omega_0 \approx \omega_{nm}$  имеем

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = \frac{i\omega_0}{c} \mathbf{A} \approx \frac{i\omega_{nm}}{c} \mathbf{A}.$$

Таким образом, мы видим, что в рамках указанных приближений система уравнений (18) совпадает с системой уравнений для двухуровневого атома в рамках резонансного электродипольного взаимодействия, поскольку

$$M_{nm} \approx E_n \delta_{nm} - q (\mathbf{E} \mathbf{r})_{nm} + \dots$$

Несложно также видеть, что система уравнений (18) описывает как нерезонансное электродипольное взаимодействие (т. е. вне рамок приближения  $\omega_0 \approx \omega_{nm}$ ), так и взаимодействия более высокой мультипольности, которые связаны со слагаемыми суммы (20), имеющими более высокие порядки по полю. В этом состоит принципиальное отличие развиваемой теории от аппарата теории возмущений.

#### 1.4. Общие свойства матричных элементов оператора $V$

Как следует из выражения (10), зависимость матричных элементов  $V_{nm}$  от состояния поляризации электромагнитного поля определяется их угловой частью. Зависимость от амплитуды векторного потенциала поля  $a$ , следовательно, и от напряжённости электрического поля, определяется радиальной частью указанных матричных элементов, т. е. видом приведённых матричных элементов  $\langle n_2 l_2 \| j_l(z) \| n_1 l_1 \rangle$ . Последние являются нелинейными функциями напряжённости электрического поля, и в случае атома водорода безразмерным управляющим параметром является величина

$$\mu_0 = \frac{qA_0 a_B}{\hbar c} = \frac{eE_0 a_B}{\hbar \omega} = \frac{2U_0}{\hbar \omega} \frac{E_0}{E_{at}}, \quad (21)$$

где  $A_0$  — амплитуда векторного потенциала,  $a_B$  — боровский радиус,  $U_0$  — энергия ионизации атома водорода, равная 13,6 эВ, а  $E_{at} = e/a_B^2$  — напряжённость внутриатомного поля. Проводя преобразования в (21), мы использовали соотношение  $E_0 = \omega A_0/c$ . В случае атома водорода параметр  $\mu_0$  однозначно связан с параметром адиабатичности теории ионизации Келдыша [37]  $\gamma = 1/\mu_0$  (см. [33]).

Обсудим ряд общих свойств матричных элементов  $V_{nm}$ , которые следуют из полученных выше выражений.

1) В области существенно субатомных значений напряжённости поля, т. е. при  $\mu_0 \ll 1$ , мы можем воспользоваться асимптотическим выражением сферических функций Бесселя. Тогда получаем

$$\langle n_2 l_2 \| j_l(\mu(t)r) \| n_1 l_1 \rangle = \mu^l \frac{\Gamma(1/2)}{2^{l+1}\Gamma(l+3/2)} \int_0^\infty R_{n_2 l_2}(x) R_{n_1 l_1}(x) x^{l+2} dx + \dots, \quad (22)$$

где  $\mu(t) = \mu_0 A(t)/A_0$  и  $x = r/a_B$ . Поскольку из свойств  $3j$ -символов, входящих в выражение (11), следуют неравенства  $|l_2 - l_1| \leq l \leq l_2 + l_1$ , то несложно видеть, что для субатомной напряжённости электрического поля волны справедлива оценка  $\langle n_2 l_2 \| j_l \| n_1 l_1 \rangle \sim \mu^{|l_2 - l_1|}$ .

2) Выражение (11) включает также  $3j$ -символ с равными нулю значениями проекции углового момента. Такие  $3j$ -символы обладают следующим свойством: они отличны от нуля лишь в случае, когда сумма угловых моментов является чётным числом. Следовательно, матричные элементы  $V_{nm}$  для состояний одинаковой чётности являются чётными функциями  $\mu(t)$ , а матричные элементы для состояний противоположной чётности — нечётными функциями  $\mu(t)$ .

3) Учитывая асимптотическое поведение сферических функций Бесселя  $j_l(z)$  при  $z \gg 1$ , несложно показать, что в области сверхатомных значений напряжённости электрического поля, т. е. при  $\mu_0 > 1$ , матричные элементы  $\langle n_2 l_2 \| j_l(\mu(t)r) \| n_1 l_1 \rangle$  уменьшаются с ростом напряжённости поля. Отметим, что иллюстрации такого поведения матричных элементов в области полей сверхатомной напряжённости были приведены в наших предыдущих работах [33–36].



## 2. ПОЛЕ ОТКЛИКА АТОМА

### 2.1. Поляризацияная зависимость поля отклика атома

Спектр векторного потенциала поля отклика атома в дальней зоне имеет вид [38]

$$\mathbf{A}_r(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\exp(ikr)}{rc} \int \mathbf{j}(\mathbf{r}', \omega) \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{r}') dV',$$

где  $\mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega)$  — спектр плотности тока, соответствующей решению уравнения (16). Используя это выражение, для интенсивности поля отклика получаем

$$\frac{dI}{d\omega} = \frac{\omega^2}{4c^3} |[\mathbf{J}(\omega), \mathbf{n}]|^2 d\omega,$$

где

$$\mathbf{J}(\omega) = \int \mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega) dV, \quad \mathbf{n} = \mathbf{r}/r.$$

Плотность тока определяется по решению уравнения (16) с помощью хорошо известной формулы

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \frac{q}{2m} \left\{ \psi^* \left( \mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right) \psi + \left[ \left( \mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right) \psi \right]^* \psi \right\}. \quad (23)$$

Матричные элементы оператора обобщённого импульса  $\mathbf{P} = \mathbf{p} - q\mathbf{A}/c$  в базисе собственных функций краевых задач (2) и (3) имеют, соответственно, вид

$$\begin{aligned} \int u_n^*(\mathbf{r}) \left( \mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right) u_m(\mathbf{r}) dV &= \sum_{k,p} V_{nk}^{-1}(t) \mathbf{p}_{kp} V_{pm}(t), \\ \int \varphi_n^*(\mathbf{r}, t) \left( \mathbf{p} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right) \varphi_m(\mathbf{r}, t) dV &= \int u_n^*(\mathbf{r}) \mathbf{p} u_m(\mathbf{r}) dV = \mathbf{p}_{nm}. \end{aligned} \quad (24)$$

Подставляя волновую функцию (17) в (23) и пользуясь (24), для тока атомных электронов получаем

$$\mathbf{J}(t) = \frac{q}{m} \sum_{n,m,p,q} a_n^*(t) a_m(t) V_{np}^{-1}(t) \mathbf{p}_{pq} V_{qm}(t).$$

Отметим ещё одно важное обстоятельство. Формула (24) связывает матричные элементы оператора обобщённого импульса  $\mathbf{P} = \mathbf{p} - q\mathbf{A}/c$  с матричными элементами оператора импульса  $\mathbf{p}$  по состояниям свободного атома, имеющими вид  $\mathbf{p}_{nm} = -i\hbar \int u_n^*(\mathbf{r}) \nabla u_m(\mathbf{r}) dV$ . В отличие от матричных элементов оператора обобщённого импульса, матричные элементы оператора импульса взаимно однозначно связаны с матричными элементами оператора координаты соотношением  $\mathbf{p}_{nm} = im\omega_{nm} \mathbf{r}_{nm}$  (см., например, [39]). Учитывая это, для парциальных элементов тока получаем

$$\begin{aligned} \langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_2 l_2 m_2 \rangle &= \\ &= i \sum_{n_3 l_3 m_3} \sum_{n_4 l_4 m_4} (\omega_{n_3 l_3} - \omega_{n_4 l_4}) \langle n_1 l_1 m_1 | V^{-1} | n_3 l_3 m_3 \rangle \langle n_3 l_3 m_3 | \mathbf{d} | n_4 l_4 m_4 \rangle \times \\ &\quad \times \langle n_4 l_4 m_4 | V | n_2 l_2 m_2 \rangle a_{n_1, l_1, m_1}^* a_{n_2, l_2, m_2}, \end{aligned} \quad (25)$$

где  $\omega_{nl} = E_{nl}/\hbar$  и  $E_{nl}$  — собственные значения энергии свободного атома. Для матричных элементов оператора дипольного момента  $\mathbf{d}$  имеем (см., например, [40])

$$\begin{aligned} \langle n_3 l_3 m_3 | \mathbf{d} | n_4 l_4 m_4 \rangle &= \\ &= q \langle n_3 l_3 \| r \| n_4 l_4 \rangle (-1)^{m_3} i^{l_4 - l_3} \sqrt{(2l_3 + 1)(2l_4 + 1)} \sum_{m=-1}^1 \mathbf{n}^{(m)} \begin{pmatrix} l_3 & 1 & l_4 \\ -m_3 & m & m_4 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_3 & 1 & l_4 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \end{aligned}$$

где  $\mathbf{n}^{(\pm 1)} = (\mathbf{n}_x \pm i\mathbf{n}_y) / \sqrt{2}$  и  $\mathbf{n}^{(0)} = \mathbf{n}_z$ . Итак, окончательно получаем

$$\begin{aligned} \langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_2 l_2 m_2 \rangle &= 4\pi q i^{l_2 - l_1 + 1} \sqrt{(2l_1 + 1)(2l_2 + 1)} \sum_{n_3 l_3} \sum_{n_4 l_4} (\omega_{n_3 l_3} - \omega_{n_4 l_4}) \times \\ &\times (2l_3 + 1)(2l_4 + 1) \sum_{l=|l_1 - l_3|}^{l_1 + l_3} \sum_{l'=|l_2 - l_4|}^{l_2 + l_4} \sqrt{(2l + 1)(2l' + 1)} \langle n_1 l_1 \| j_l \| n_3 l_3 \rangle \langle n_3 l_3 \| r \| n_4 l_4 \rangle \times \\ &\times \langle n_4 l_4 \| j_{l'} \| n_2 l_2 \rangle \begin{pmatrix} l_1 & l & l_3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_3 & 1 & l_4 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_4 & l' & l_2 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times \\ &\times \sum_{m=-1}^{+1} \sum_{m_3=-l_3}^{l_3} (-1)^{l' - m_2 + m_3} Y_{l(m_3 - m_1)}(\mathbf{e}) \mathbf{n}^{(m)} Y_{l'(m_3 - m_2 - m)}(\mathbf{e}) \times \\ &\times \begin{pmatrix} l_1 & l & l_3 \\ -m_1 & m_1 - m_3 & m_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_3 & 1 & l_4 \\ -m_3 & m & m_3 - m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_4 & l' & l_2 \\ m_3 - m & m_2 - m_3 + m & -m_2 \end{pmatrix}, \quad (26) \end{aligned}$$

где, как и ранее,  $j_l = j_l[qA(t)r/\hbar c]$ .

Таким образом, приведённые в настоящем разделе формулы позволяют рассчитывать частотно-угловой спектр поля отклика атома как для произвольной взаимной ориентации его углового момента и вектора электрического поля линейно поляризованной электромагнитной волны, так и для произвольного состояния её поляризации.

Укажем границы применимости вышеописанной теории. Нестационарное уравнение Шрёдингера, которое описывает взаимодействие одиночного атома с лазерными полями, имеет вид (16) лишь в субрелятивистской области интенсивности, когда зависимостью векторного потенциала  $\mathbf{A}$  от координаты  $\mathbf{r}$  можно пренебречь. Так, для излучения титан-сапфирового-лазера  $I_{\text{rel}} = 4,3 \times 10^{18}$  Вт/см<sup>2</sup>. Используя управляющий параметр задачи  $\mu_0$ , можно записать границу применимости уравнения (16) как  $\mu_0 < 29$ . Поскольку никакими другими приближениями мы не пользовались, то условием применимости нашего теоретического подхода является неравенство  $\mu_0 < 29$ . Таким образом, развиваемый теоретический подход позволяет описывать взаимодействие атома с субатомными, околоатомными и сверхатомными, но дорелятивистскими лазерными полями.

## 2.2. Отклик атома в полях субатомной напряжённости

Проанализируем основные закономерности поля отклика атома в полях субатомной напряжённости, когда справедливо неравенство  $\mu \ll 1$ . Матричные элементы дипольного момента связывают состояния  $l$  и  $l' = l \pm 1$ . Как мы отмечали выше, диагональные приведённые матричные элементы  $\langle n_1 l_1 \| j_0 \| n_1 l_1 \rangle$  являются чётными функциями амплитуды поля и при  $\mu \ll 1$  принимают значения, близкие к единице. Приведённые матричные элементы  $\langle n_1 l_1 \| j_1 \| n_3 (l_1 \pm 1) \rangle$  являются нечётными функциями амплитуды поля и при  $\mu \ll 1$  пропорциональны первой степени поля:  $\langle n_1 l_1 \| j_1 \| n_3 (l_1 \pm 1) \rangle \sim \mu$ . Все другие приведённые матричные элементы имеют го-

раздо меньшую величину, поскольку  $\langle n_1 l_1 \| j_1 \| n_3 l_1 \rangle \sim \mu^2$  при  $n_3 \neq n_1$ , а матричные элементы  $\langle n_1 l_1 \| j_1 \| n_3 (l_1 \pm k) \rangle \sim \mu^k$ .

Обратимся к анализу диагональных элементов атомного тока. С учётом вышеизложенного, в полях субатомной напряжённости наибольшую величину имеет следующее диагональное слабое:

$$\begin{aligned} \langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_1 l_1 m_1 \rangle = & \sum_n k(n_1 l_1, nl) \langle n_1 l_1 \| j_0 \| n_1 l_1 \rangle \langle n_1 l_1 \| r \| nl \rangle \langle nl \| j_1 \| n_1 l_1 \rangle \times \\ & \times \sum_{m=-1}^{+1} \mathbf{n}^{(m)} Y_{1m}(\mathbf{e}) \sum_{m'} \langle l_1 m_1 | Y_{1m}(\mathbf{n}) | l m' \rangle \langle l m' | Y_{1m}^*(\mathbf{n}) | l_1 m_1 \rangle, \end{aligned} \quad (27)$$

где  $l = l_1 \pm 1$ . Для краткости мы ввели коэффициент  $k(n_1 l_1, nl)$ , явный вид которого определяется выражением (26). Проводя суммирование по  $m'$ , для угловой зависимости матричных элементов (27) получаем

$$\mathbf{F}_{l_1 m_1}(\mathbf{n}, \mathbf{e}) = \sum_{m=-1}^{+1} \mathbf{n}^{(m)} Y_{1m}(\mathbf{e}) C_m(l_1 m_1), \quad (28)$$

где

$$\begin{aligned} C_1(l_1 m_1) &= (l_1 - m_1 + 1)(l_1 - m_1 + 2) / [(2l_1 + 1)(2l_1 + 2)(2l_1 + 3)], \\ C_0(l_1 m_1) &= 2(l_1 + m_1 + 1)(l_1 - m_1 + 1) / [(2l_1 + 1)(2l_1 + 2)(2l_1 + 3)], \\ C_{-1}(l_1 m_1) &= (2l_1 + 1)(2l_1 + 2)(2l_1 + 3) / [(2l_1 + 1)(2l_1 + 2)(2l_1 + 3)]. \end{aligned} \quad (29)$$

Из (29), в частности, следует, что  $C_m(l_1 = 0) = 1/3$  и  $\sum_{m_1=-l_1}^{l_1} C_m(l_1 m_1) = 1/3$ .

Таким образом, из выражений (28)–(29) видно, что направление тока отклика атома совпадает с направлением внешнего поля лишь в случаях, когда атом находится в состоянии с равным нулю угловым моментом  $l_1 = 0$ , или же когда ансамбль атомов находится в неполяризованном состоянии, т. е. амплитуды населённости подуровней сверхтонкой структуры атома одинаковы:  $a_{n_1 l_1 m_1}(t) = a_{n_1 l_1}(t)$ . Действительно, в этих случаях получаем

$$-i \sqrt{12\pi} \sum_{m_1} \mathbf{F}_{l_1 m_1}(\mathbf{n}, \mathbf{e}) = -i \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \sum_{m=-1}^{+1} \mathbf{n}^{(m)} Y_{1m}(\mathbf{e}) = \mathbf{e}. \quad (30)$$

Вместе с тем, как следует из формулы (29), в общем случае направление тока отклика атома зависит как от направления внешнего поля, так и от направления углового момента атома. Учитывая, что собственные значения гамильтонианов краевых задач свободного атома и атома во внешнем поле зависят лишь от квантовых чисел  $n$  и  $l$ , под диагональными матричными элементами тока можно понимать элементы  $\langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_1 l_1 m_1' \rangle$ . Однако, как мы видели, в присутствии внешнего поля уровни сверхтонкой структуры атома расщепляются, и поэтому угловая зависимость указанных матричных элементов будет отличаться от (30). Следовательно, диагональные матричные элементы тока отдельного атома имеют тензорную структуру и зависят как от направления углового момента атома, так и направления внешнего поля.

Перейдём теперь к анализу недиагональных матричных элементов атомного тока. Учитывая свойства приведённых матричных элементов  $\langle n' l' \| j_l \| n'' l'' \rangle$ , несложно видеть, что в полях

субатомной напряжённости наибольшую величину будут иметь следующие недиагональные матричные элементы атомного тока:

$$\begin{aligned} \langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_2 l_2 m_2 \rangle &= \\ &= k(n_1 l_1, n_2 l_2) \langle n_1 l_1 \| j_0 \| n_1 l_1 \rangle \langle n_1 l_1 \| r \| n_2 l_2 \rangle \langle n_2 l_2 \| j_0 \| n_2 l_2 \rangle \sum_{m=-1}^{+1} \mathbf{n}^{(m)} \langle l_1 m_1 | Y_{1m}(\mathbf{n}) | l_2 m_2 \rangle, \end{aligned} \quad (31)$$

где  $l_2 = l_1 \pm 1$  и  $k(n_1 l_1, n_2 l_2)$ , как и ранее, является коэффициентом, явный вид которого определяется выражением (26). Как видно из (31), в отличие от диагональных матричных элементов, угловая зависимость недиагональных матричных элементов определяется лишь направлением углового момента атома и не зависит от направления внешнего поля:

$$\mathbf{F}_{l_1 m_1, l_2 m_2}(\mathbf{n}) = \sum_{m=-1}^{+1} \mathbf{n}^{(m)} \langle l_1 m_1 | Y_{1m}(\mathbf{n}) | (l_1 \pm 1) m_2 \rangle.$$

В полях субатомной напряжённости из (22) следует, что  $\langle nl \| j_0 \| nl \rangle \approx 1$ , и поэтому

$$\langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_2 l_2 m_2 \rangle = k(n_1 l_1, n_2 l_2) \langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{r} | n_2 l_2 m_2 \rangle.$$

Следовательно, правила отбора для недиагональных матричных элементов тока на переходах  $l_1 \rightarrow l_2 = l_1 \pm 1$  совпадают с правилами отбора для оператора дипольного момента, которые однозначно связаны с направлением углового момента атома. Таким образом, направления матричных элементов  $\langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_2 l_2 m_2 \rangle$  в неполяризованной системе атомов полностью хаотичны.

В отсутствие резонансов между частотой поля и частотами атомных переходов амплитуды населённости уровней при субатомных напряжённости поля могут быть рассчитаны по теории возмущений. Полагая  $|a_{N_0}(t)| \approx 1$ , из (18) получаем

$$\begin{aligned} a_{N_0}(t) &= a_{N_0} \exp[-i\Phi_0(t)], \\ a_{N_1}(t) &= a_{N_0} \exp[-i\Phi_1(t)] \int_{-\infty}^t M_{N_1 N_0}(t') \exp\{i[\Phi_1(t') - \Phi_0(t')]\} dt', \end{aligned}$$

где  $\Phi_i(t) = \hbar^{-1} \int_{-\infty}^t M_{N_i N_i}(t') dt'$ . Как мы отмечали ранее, для субатомных напряжённости поля наибольшую величину имеют матричные элементы переходов  $l_0 \rightarrow l_1 = l_0 \pm 1$ . Для этих переходов составные матричные элементы  $M_{nm} = \sum_k V_{nk}^{-1} E_k V_{km}$ , которые являются коэффициентами при амплитудах населённости уровней в системе дифференциальных уравнений (18), имеют следующий вид:

$$\begin{aligned} M_{N_1 N_0}(t) &= \sqrt{12\pi} i^{l_0 - l_1} (-1)^{m_0} \sqrt{(2l_1 + 1)(2l_0 + 1)} \langle n_1 l_1 \| j_1 \| n_0 l_0 \rangle \times \\ &\times \left( E_{n_1 l_1} \langle n_1 l_1 \| j_0 \| n_1 l_1 \rangle + E_{n_0 l_0} \langle n_0 l_0 \| j_0 \| n_0 l_0 \rangle \right) \begin{pmatrix} l_1 & 1 & l_0 \\ -m_1 & m_1 - m_0 & m_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & 1 & l_0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} Y_{1(m_0 - m_1)}(\mathbf{e}). \end{aligned}$$

В частности, для диагональных матричных элементов имеем

$$M_{N_1 N_1}(t) = E_{n_1 l_1} (\langle n_1 l_1 \| j_0 \| n_1 l_1 \rangle)^2.$$

Используя вышеприведённые формулы, для недиагонального слагаемого полного атомного тока получаем следующую формулу:

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_{N_1 N_0}(t) &= a_{N_1}^*(t) a_{N_0}(t) \langle n_1 l_1 m_1 | \mathbf{J} | n_0 l_0 m_0 \rangle = |a_{N_0}|^2 k_1(n_1 l_1, n_0 l_0) \times \\ &\times \langle n_1 l_1 || j_0(t) || n_1 l_1 \rangle \langle n_1 l_1 || r || n_0 l_0 \rangle \langle n_0 l_0 || j_0(t) || n_0 l_0 \rangle \exp\{i [\Phi_1(t) - \Phi_0(t)]\} \times \\ &\times \int_{-\infty}^t dt' \langle n_1 l_1 || j_1(t') || n_0 l_0 \rangle (E_{n_1 l_1} \langle n_1 l_1 || j_0(t') || n_1 l_1 \rangle + E_{n_0 l_0} \langle n_0 l_0 || j_0(t') || n_0 l_0 \rangle) \times \\ &\times \exp\{-i [\Phi_1(t') - \Phi_0(t')]\} \sum_{m=-1}^{+1} \mathbf{n}^{(m)} Y_{1m}[\mathbf{e}(t')] C_m(l_1 m_1, l_0 m_0), \quad (32) \end{aligned}$$

где

$$C_m(l_1 m_1, l_0 m_0) = \begin{pmatrix} l_1 & 1 & l_0 \\ -m_1 & m & m_0 \end{pmatrix}^2.$$

### 3. ГЕНЕРАЦИЯ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В АРГОНЕ

#### 3.1. Отклик атома на воздействие двух линейно поляризованных импульсов

Рассмотрим случай, когда атом взаимодействует с суперпозицией двух линейно поляризованных полей с произвольными направлениями поляризации  $\mathbf{e}_1$  и  $\mathbf{e}_2$ :

$$\mathbf{A}(t) = \mathbf{e}_1 A_1(t) + \mathbf{e}_2 A_2(t) = \mathbf{e}(t) A(t), \quad (33)$$

где  $A_1(t)$  и  $A_2(t)$  можно представить, например, в виде

$$A_1(t) = f_1(t) \cos(\omega_1 t + \varphi_1), \quad A_2(t) = f_2(t) \cos(\omega_2 t + \varphi_2),$$

здесь  $\omega_1$  и  $\omega_2$  — несущие частоты,  $f_1(t)$  и  $f_2(t)$  — профили амплитуды импульсов,  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  — постоянные фазовые сдвиги.

В целях наглядности интерпретации рассмотрим, например, следующий частный случай. Положим, что вектор  $\mathbf{e}_1$  направлен вдоль оси  $z$  в лабораторной системе отсчёта, а вектор  $\mathbf{e}_2$  лежит в плоскости  $yz$  и составляет угол  $\theta_0$  с направлением оси  $z$ . В этом случае векторы  $\mathbf{A}_1(t)$  и  $\mathbf{A}_2(t)$  имеют вид

$$\mathbf{A}_1(t) = [0, 0, A_1(t)], \quad \mathbf{A}_2(t) = [0, A_2(t) \sin \theta_0, A_2(t) \cos \theta_0].$$

Вектор  $\mathbf{A}(t)$  в этом случае будет всегда лежать в плоскости  $yz$  и составлять с осью  $z$  выбранной системы координат угол  $\theta(t)$ , определяемый выражением

$$\theta(t) = \text{Arctg} \frac{A_2(t) \sin \theta_0}{A_1(t) + A_2(t) \cos \theta_0}. \quad (34)$$

При этом вектор  $\mathbf{e}(t)$  и величина вектора  $\mathbf{A}(t)$  определяются выражениями

$$\mathbf{e}(t) = [0, \sin \theta(t), \cos \theta(t)], \quad A(t) = A_1(t) \cos \theta(t) + A_2(t) \cos [\theta_0 - \theta(t)]. \quad (35)$$

Как видно из (34), угол  $\theta(t)$  не зависит от времени только в случае, когда  $A_1(t) = A_2(t)$  или в случае коллинеарной поляризации падающих волн, т.е.  $\theta_0 = \pi n$ . Отметим, что при взаимодействии атома с полем двух неколлинеарно поляризованных импульсов направление вектора

поляризации суперпозиционного поля зависит от времени не только в случае отличия несущих частот импульсов, т. е.  $\omega_1 \neq \omega_2$ , но и в случае, когда импульсы, имея одинаковые несущие частоты  $\omega_1 = \omega_2$  и один и тот же профиль огибающей, несинхронны, т. е.  $A_2(t) = A_1(t - t_0)$ .

Сделаем ещё одно замечание. Случай  $A_1(t) = A_0 \cos \omega t$ ,  $A_2(t) = A_0 \sin \omega t$  и  $\theta_0 = \pi/2$  соответствует циркулярно поляризованной волне. В этом случае  $A(t) = A_0$  и, следовательно, приведённые матричные элементы  $\langle n'l' || j_l || n''l'' \rangle$  перестают зависеть от времени. Как видно из формул (27) и (31), отклик атома в этом случае определяется лишь временной зависимостью  $Y_{1m}[\mathbf{e}(t)]$ , и поэтому в полях субатомной напряжённости доминирующим является отклик на частоте возмущающего поля. Это явление имеет простую и наглядную интерпретацию. Как следует из формулы (13), при постоянных  $\langle n'l' || j_l || n''l'' \rangle$  радиальная часть волновых функций не зависит от времени и отклик атома связан с вращением электронного облака как целого. В то же время в случае линейно поляризованной волны радиальная волновая функция меняется во времени. Это означает, что внешнее поле совершает работу, связанную с перемещением электрона во внутриатомном потенциале.

### 3.2. Результаты численного моделирования

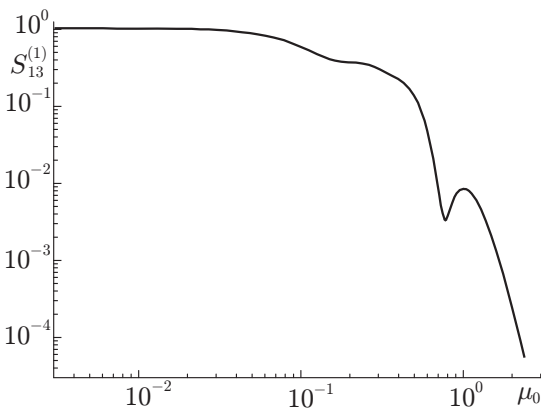


Рис. 1. Зависимость полноты базиса выбранных состояний атома аргона от безразмерной амплитуды напряжённости лазерного поля

Чтобы продемонстрировать эффекты, возникающие при взаимодействии атома с многокомпонентным полем, приведём результаты численного расчёта взаимодействия атома аргона с двухцветным лазерным излучением, представляющим собой суперпозицию линейно поляризованных полей первой и второй гармоник титан-сапфирового-лазера, угол между направлениями поляризации которых меняется в пределах от 0 до  $\pi$ . Спектр дискретных и непрерывных состояний атома аргона, как и любого атома, бесконечен. Естественно, что учёт бесконечного набора уровней атома в численном эксперименте не представляется возможным. Развиваемый подход даёт возможность строго математически оценить, какие уровни будут вовлечены в процесс отклика атома при заданном значении амплитуды поля. Действительно, волновые функции обоих базисов являются ортонормированными, поэтому из соотношений (7) получаем, что сумма  $S_N^{(n)} = \sum_{m=1}^N |V_{nm}|^2$  при  $N \rightarrow \infty$  должна быть равна единице. Рассчитывая сумму  $S_N^{(n)}$  с учётом  $N$  нижних уровней атома, мы можем определить, до каких значений амплитуды поля базис выбранных собственных функций является полным. На рис. 1 показана зависимость  $S_{13}^{(1)}$  для основного состояния от амплитуды поля при учёте 13 нижних уровней атома аргона. Из него видно, что базис выбранных функций является практически полным до значений напряжённости поля  $\mu_0 \leq 0,1$ .

На рис. 2 представлены спектры отклика атома, вычисленные при одинаковых значениях амплитуд напряжённости компонент поля, соответствующих  $\mu_{01} = \mu_{02} = 0,1$  и длительностях импульсов  $\tau_1 = \tau_2 = 4,25$  фс, но при различных углах между поляризациями:  $\theta_0 = 0$  (а) и  $\theta_0 = \pi/2$  (б). На рисунках представлены компоненты поля отклика атома с поляризацией, совпадающей с поляризацией падающего поля на основной частоте. При  $\theta_0 = 0$  спектр отклика демонстрирует дублетную структуру: в отклике атома присутствуют как чётные, так и нечёт-

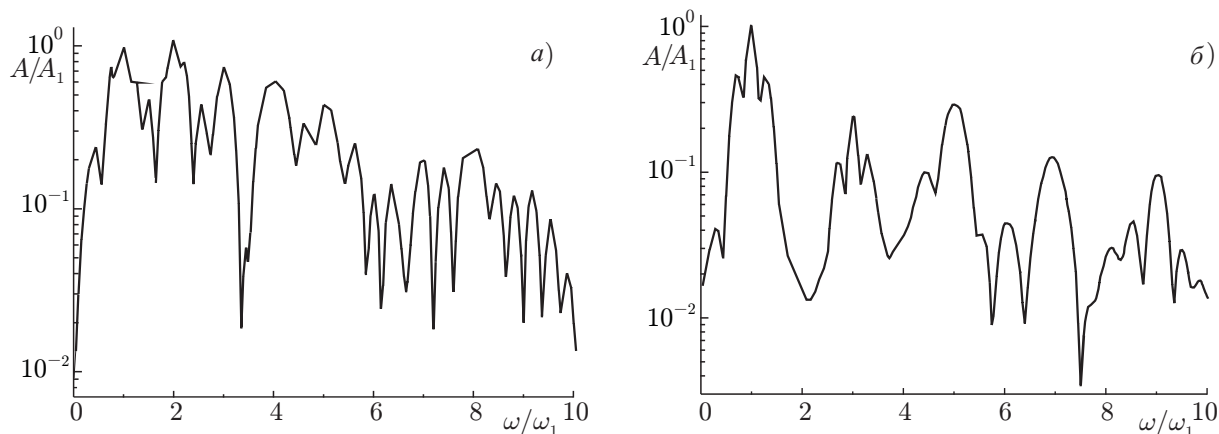


Рис. 2. Спектр отклика атома аргона, рассчитанный при двух различных углах между поляризациями компонент двухчастотного поля: (а)  $\theta_0 = 0$  и (б)  $\theta_0 = \pi/2$ . Безразмерные амплитуды компонент поля  $\mu_{01} = \mu_{02} = 0,1$ ; длительности импульсов  $\tau_1 = \tau_2 = 4,25$  фс

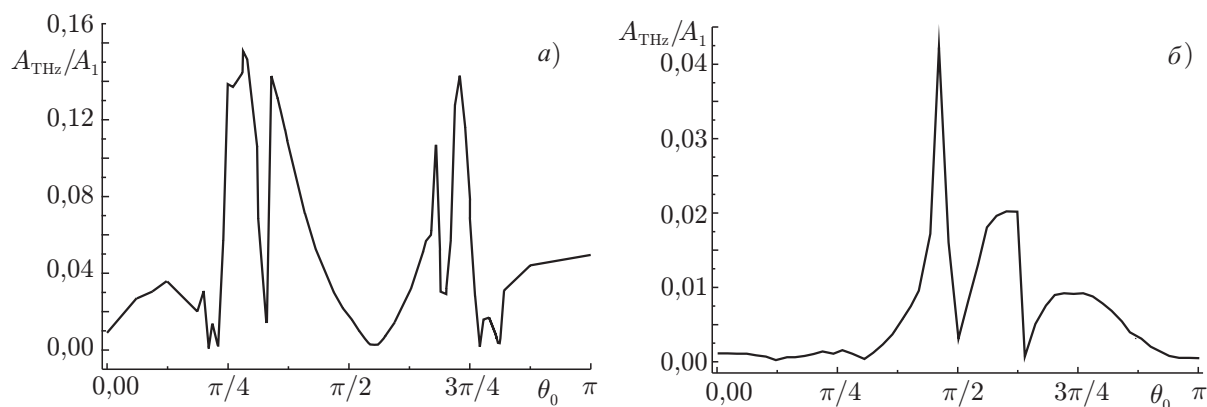


Рис. 3. Зависимость безразмерного выходящего терагерцового поля от угла между электрическими полями линейно поляризованных компонент двухцветного лазерного поля при временной задержке между импульсами  $t_{02} - t_{01} = 0$  (а) и  $t_{02} - t_{01} = 13,32$  фс (б). Безразмерные амплитуды компонент поля  $\mu_{01} = \mu_{02} = 0,1$ ; длительности импульсов  $\tau_1 = \tau_2 = 4,25$  фс

ные гармоники излучения. При  $\theta_0 = \pi/2$  спектр отклика не содержит компонент на частотах  $2\omega$  и  $4\omega$ , поскольку они имеют преимущественно ортогональную поляризацию. Однако компоненты на частотах  $6\omega$  и  $8\omega$  имеют вполне заметную величину, что говорит о тензорном характере тока отклика атома. Таким образом, меняя лишь угол между поляризациями компонент двухчастотного поля, мы можем существенно видоизменять профиль спектра отклика атома.

В последнее время значительное внимание уделяется исследованиям в области терагерцовой спектроскопии. В связи с этим спектр отклика в области частот  $\omega_0 = 1/\tau_0 \approx 10^{-4}\omega_1$  представляет практический интерес, поскольку при длительности воздействующих импульсов  $\tau_0$  порядка сотни фемтосекунд значения этой частоты лежат в терагерцовом диапазоне. На рис. 3 представлена зависимость амплитуды терагерцовой компоненты спектра отклика атома  $A_{\text{THz}}$  как функции угла между направлениями поляризации для двух значений времени задержки между импульсами на частотах  $\omega$  и  $2\omega$ :  $\Delta t = 0$  фс — рис. 3а,  $\Delta t = 13,32$  фс — рис. 3б. Представленные зависимости имеют сложную структуру. Рассмотрим рис. 3а. В области углов  $\theta_0 = \pi/4$  и  $\theta_0 = 3\pi/4$  наблюдается немонотонный характер зависимости: небольшое изменение угла может значительно изменить отклик атома в этом спектральном диапазоне. Указанное поведение согласуется с выражением (34), поскольку оно имеет скачкообразную структуру, которая существенно обога-

щает область низких частот. Действительно, поскольку фурье-образ ступенчатой функции имеет вид  $\pi\delta(\omega) + i/\omega$ , резкие скачки во временной зависимости приводят к возрастанию спектральных амплитуд вблизи  $\omega \approx 0$  и общему подъёму фона. Аналогичная немонотонность в зависимости выхода терагерцового излучения от угла наблюдается и на рис. 3б.

Отметим, что полученные результаты качественно совпадают с соответствующими экспериментальными данными, представленными в [20]. Как и на рис. 3а, в [20] области максимальной эффективности генерации терагерцового излучения лежат в окрестности углов  $\theta_0 = \pi/4$  и  $3\pi/4$ . Кроме того, как на рис. 3а, так и в [20], ширина области вариации угла между поляризациями, в которой генерация терагерцового сигнала наиболее эффективна, в окрестности угла  $\theta_0 = \pi/4$  больше, чем в окрестности  $\theta_0 = 3\pi/4$ .

Таким образом, численные расчёты показывают, что генерация терагерцового излучения в многочастотном поле происходит и в доионизационном режиме. Это свидетельствует о том, что аппарат описания отклика атома, основанный на использовании собственных волновых функций гамильтониана краевой задачи об атоме в поле, даёт единое описание нелинейно-оптического отклика атома как в полях субатомной, так и сверхатомной напряжённости.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты исследования, приведённого в настоящей статье, наглядно показывают, что последовательное квантово-механическое описание взаимодействия атома с электромагнитным полем, состояние поляризации которого произвольным образом меняется во времени, требует специального рассмотрения. Как следует из (25), зависимости от состояния поляризации поля диагональных, т.е.  $n = m$ , и недиагональных, т.е.  $n \neq m$ , матричных элементов тока отклика атома качественно различаются. Действительно, диагональные матричные элементы атомного тока (27), обусловленные наведённой полем анизотропией пространственного распределения волновой функции электрона в состоянии с энергией  $E_n$ , зависят от мгновенного направления поляризации лазерного поля. В то же время недиагональные матричные элементы, связанные с процессами перехода атомного электрона между различными энергетическими состояниями, см. (26), являются запаздывающими функциями состояния лазерного поля. Это вполне объяснимо, поскольку при таких переходах меняется величина углового момента электрона, а этот процесс заведомо является инерционным. Эти различия неизбежно скажутся на спектре отклика, если атом взаимодействует с импульсным лазерным полем, в особенности при взаимодействии с ультракороткими лазерными импульсами.

Спектр отклика ансамбля атомов, имеющего конечные пространственные размеры, зависит также от его макроскопических свойств. Действительно, столкновения атомов друг с другом приводят к тому, что направление углового момента отдельного атома меняется во времени. Естественно, что приведённые выше формулы позволяют рассчитывать спектр отклика многоатомных систем лишь в случае, когда длительность воздействующего лазерного импульса много меньше величины характерного времени изменения направления углового момента отдельного атома, т.е. релаксационного времени угловой диффузии, обусловленной столкновениями. Вместе с тем полученные формулы позволяют предсказать характер изменения отклика многоатомной системы в зависимости от соотношения длительности импульса и указанного времени релаксации. Действительно, векторы  $\mathbf{n}^{(m)}$ , входящие в формулы (27) и (31), связаны с направлением углового момента атома, которое вследствие релаксации за счёт столкновений меняется со временем. Как следует из формулы (28), направление поля отклика атома подстраивается к направлению вектора поляризации поля в данный момент времени. Однако формула (32) содержит интеграл от суммы произведений вида  $\sum_m C_m \mathbf{n}^{(m)}(t) Y_{1m}[\mathbf{e}(t')]$  и его величина существенно зависит от зна-



чения ориентационного времени релаксации. Таким образом, несложно видеть, что вклад диагональных и недиагональных матричных элементов атомного тока в отклик атома сопоставим лишь в случае, когда длительность лазерного импульса много меньше времени ориентационной релаксации. В случае, когда длительность импульса существенно превосходит величину ориентационного времени релаксации, спектр отклика атома обусловлен исключительно эффектами наведённой анизотропии, а переходы между различными стационарными состояниями атома, не приводя к появлению ярко выраженных пиков в спектре отклика атомного ансамбля, проявляются, в основном, в качестве пьедестала, определяющего значение частоты отсечки.

В качестве иллюстрации практических приложений развиваемого подхода в разделе 3 мы привели результаты численного моделирования генерации терагерцового поля в аргоне в двухцветном лазерном поле. Рассчитанные зависимости мощности терагерцового излучения от взаимной ориентации векторов электрических полей линейно поляризованных волн двухцветного лазерного поля находятся в хорошем согласии с экспериментально наблюдаемыми данными [20]. Как мы отмечали во Введении, традиционное описание механизмов генерации терагерцового излучения в многоцветном поле, следуя интерпретации одноимпульсных методов, привлекает процессы четырёхволнового смешения (выпрямления) в индуцированной лазером плазме. Вместе с тем общее выражение для тока атомного отклика, см. (26), показывает, что чисто атомная нелинейность, связанная с переходами электрона между состояниями дискретного спектра атома, также приводит к появлению отклика на терагерцовых частотах. Для того, чтобы подтвердить этот вывод при проведении численных экспериментов, мы выбрали интенсивность поля лазерного импульса ниже порога ионизации. Полученное согласие экспериментальных и теоретических данных свидетельствует в пользу развиваемой интерпретации. Дополнительным аргументом, подтверждающим её адекватность данной физической ситуации, служит наличие 6-ой и 8-ой гармоник основной частоты лазерного поля в спектре отклика атома, появление которых также обусловлено чисто атомной нелинейностью.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант 08-02-00448) и фонда «Династия».

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Делоне Н. Б., Крайнов В. П. Нелинейная ионизация атомов лазерным излучением. М.: Физматлит, 2001
2. Corkum P. B., Krausz F. // Nature Physics. 2007. V. 3. P. 381.
3. Попов В. С. // УФН. 2004. Т. 174. С. 921.
4. Ганеев Р. А. // УФН. 2009. Т. 179. С. 65.
5. Kaprowitz N., Lu X., Zhang X.-C. // J. Mod. Opt. 2009. V. 56. P. 1137.
6. Shan B., Ghimire S., Chang Z. // J. Mod. Opt. 2005. V. 52. P. 277.
7. New G. H. C., Ward J. F. // Phys. Rev. Lett. 1967. V. 19, No. 10. P. 556.
8. McPerson A., Gibson G., Jara H., et al. // J. Opt. Soc. Am. B. 1987. V. 4, No. 4. P. 595.
9. Antoine P., Huillier A. L., Lewenstein M., et al. // Phys. Rev. A. 1996. V. 53. P. 1725.
10. Corkum P. B., Burnett N. H., Ivanov M. Y. // Opt. Lett. 1994. V. 19. P. 1870.
11. Kovacev M., Mairesse Y., Priori E., et al. // Eur. Phys. J. D. 2003. V. 26. P. 79.
12. Platonenko V. T., Strelkov V. // J. Opt. Soc. Am. B. 1999. V. 16. P. 435.
13. Perry M. D., Crane J. K. // Phys. Rev. A. 1993. V. 48, No. 6. Art. no. 013405.
14. Bertrand J. B., Worner H. J., Bandulet H.-C., et al. // Phys. Rev. Lett. 2011. V. 106. Art. no. 023001.

15. Hamster H., Sullivan A., Gordon S., et al. // *Phys. Rev. E*. 1994. V. 49. P. 671.
16. Горбунов Л. М., Фролов А. А. // *ЖЭТФ*. 1996. Т. 110. С. 1757.
17. Cook D. J., Hochstrasser R. M. // *Opt. Lett.* 2009. V. 25, No. 16. P. 1210.
18. Karpowicz N., Zang X.-C. // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 102. Art. no. 093001.
19. Dai J., Karpowicz N., Zhang X.-C. // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 103. Art. no. 023001.
20. Kim K. Y., Taylor A. J., Glowina J. H., et al. // *Nature Photonics*. 2008. V. 2. P. 605.
21. Sprangle P., Penano J. R., Hafizi B., et al. // *Phys. Rev. E*. 2004. V. 69. 066415.
22. Corkum P. B. // *Phys. Rev. Lett.* 1993. V. 71, No. 13. P. 1994.
23. Gaarde M. B., Huillier A. L., Lewenstein M. // *Phys. Rev. A*. 1996. V. 54, No. 5. P. 4236.
24. Strelkov V. V. // *Phys. Rev. A*. 2006. V. 74. Art. no. 013405.
25. Antoine P., Huillier A. L., Lewenstein M., et al. // *Phys. Rev. A*. 1996. V. 53, No. 3. P. 1725.
26. Frolov M. V., Manakov N. I., Sarantseva T. S., et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 102. Art. no. 243901.
27. Frolov M. V., Manakov N. L., Silaev A. A., et al. // *Phys. Rev. A*. 2010. V. 81. Art. no. 063407.
28. Платоненко В. Т. // *Квантовая электроника*. 2001. Т. 31, № 1. С. 55.
29. Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M. Yu., et al. // *Phys. Rev. A*. 1994. V. 49, No. 3. P. 2117.
30. Бломберген Н. *Нелинейная оптика*. М.: Мир, 1966.
31. Андреев А. В., Стремоухов С. Ю., Шутова О. А. // *Уч. зап. КГУ. Физ.-мат. науки*. 2010. Т. 152, № 2. С. 10.
32. Eichmann H., Egbert A., Nolte S., et al. // *Phys. Rev. A*. 1995. V. 51, No. 5. Art. no. R3414.
33. Андреев А. В., Стремоухов С. Ю., Шутова О. А. // *ЖЭТФ*. 2010. Т. 138, № 6. С. 1060.
34. Андреев А. В. // *ЖЭТФ*. 1999. Т. 116. С. 793.
35. Андреев А. В., Стремоухов С. Ю., Шутова О. А. // *Теор. физика*. 2008. Т. 9. С. 36.
36. Andreev A. V., Stremoukhov S. Yu., Shoutova O. A. // *J. Russian Laser Research*. 2008. V. 29. P. 203.
37. Келдыш Л. В. // *ЖЭТФ*. 1964. Т. 47, № 5. С. 1945.
38. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. *Теория поля*. М.: Наука, 1967.
39. Бете Г., Солпитер Э. *Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами*. М.: Физматлит, 1960.
40. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*. М.: Наука, 1989.

Поступила в редакцию 26 октября 2010 г.; принята в печать 26 февраля 2011 г.

## RESPONSE OF AN ATOM INTERACTING WITH AN ARBITRARILY POLARIZED ELECTROMAGNETIC FIELD

*A. V. Andreev, S. Yu. Stremoukhov, and O. A. Shutova*

We develop the theory of interaction of the electromagnetic field and a single atom being in an arbitrary state and having an arbitrary direction of the angular momentum of the atomic electron with respect to the direction of the field polarization vector. It is shown that the atom response current has a tensor structure and depends on both the direction of the angular momentum of the atom, and the polarization vector of the external field. The tensor character of the response is determined by the externally induced anisotropic distribution density of the probability of spatial localization of the atomic electron. It is shown that the induced-anisotropy effects clarify the harmonic generation mechanism at play during the non-resonance interaction of laser radiation with atomic media. The

developed theory is applied to the analysis of the problem about the generation of terahertz waves in a two-color laser field. It is shown that the change in the mutual orientation of wave polarization vectors leads to a significant increase in the conversion of high-frequency fields to low-frequency ones. It is shown for the first time that the generation of terahertz waves is possible in the preionization regime, when the generation mechanism is related to atomic nonlinearity.