

Влияние пространственной неоднородности поля на нелинейно-оптический отклик атома

А.В.Андреев, А.Б.Козлов

Развита теория взаимодействия центросимметричного атома со сверхсильным пространственно-неоднородным лазерным полем, которая в двухуровневом приближении описывает динамику пространственно-нелокальных взаимодействий, обусловленную изменением населенностей уровней. Предложена модель, в рамках которой учтены пространственно-нелокальные – магнитодипольные, квадрупольные и обусловленные градиентом пондеромоторного потенциала поля – взаимодействия. Рассмотрено взаимодействие однородной среды центросимметричных атомов со сверхсильным лазерным полем, являющимся суперпозицией двух плоскостных УКИ, распространяющихся под углом друг к другу. Для атомного отклика развита теория возмущений, которая справедлива в полях умеренной интенсивности. Результаты численных расчетов сравниваются с результатами теории возмущений. Исследованы особенности нелинейно-оптического отклика атома в сверхсильном поле. В приближении заданного поля численно рассчитано угловое распределение излучения второй и третьей гармоник для различных поляризаций внешнего поля.

Ключевые слова: сверхмощные лазерные импульсы, генерация гармоник, пространственно-неоднородное поле.

Введение

В последние годы наблюдается устойчивый интерес к физике распространения сверхмощных фемтосекундных световых импульсов и их взаимодействию как с одиночными атомами, так и с плотными средами. Этот интерес обусловлен нелинейно-оптическими процессами, которые нельзя описать в рамках традиционных приближений нелинейной оптики [1–5]. Достигнутый в настоящее время уровень оптических технологий позволяет генерировать лазерные импульсы длительностью менее 5 фс [6], что составляет всего несколько периодов оптических колебаний.

В последнее время широко исследуются нелинейно-оптические эффекты в изотропных средах, запрещенные согласно свойствам симметрии среды [7]. К таким эффектам относится, например, ГВГ. Как известно, в изотропных средах, обладающих центральной симметрией, ГВГ запрещена в электродипольном приближении [8]. Однако если со средой взаимодействует пространственно-неоднородное поле, например жестко сфокусированный лазерный импульс [9] или две плоские волны, распространяющиеся под углом друг к другу [10], то запрет на ГВГ может быть снят.

Можно выделить три основных механизма ГВГ в изотропной среде пространственно-неоднородным полем. Во-первых, сильное поле может ионизовать часть атомов и создать неоднородное распределение свободных электронов в пространстве. Это распределение определяется пространственной структурой возбуждающего поля; ГВГ в неоднородной плазме хорошо исследована [11, 12].

Второй механизм получил в литературе название «ГВГ, индуцированная постоянным полем» [13–18]. В этом, как и в первом, случае сильное поле ионизует часть атомов среды. Начальные распределения электронов и ионов в пространстве совпадают, но со временем происходит разделение зарядов, которое вызывает образование макроскопического постоянного электрического поля, что приводит к ГВГ.

В настоящей работе исследуется третий механизм ГВГ в пространственно-неоднородном поле. ГВГ может происходить за счет пространственно-нелокальных взаимодействий атома с полем. Условие синхронизма, т.е. условие эффективного преобразования энергии основной волны в энергию волны второй гармоники, может быть выполнено за счет пространственно-неоднородной структуры внешнего поля. При этом причиной ГВГ является изменение сверхсильным пространственно-неоднородным полем симметрии волновых функций атомных электронов.

Третий механизм будет преобладать над первым и вторым, если вероятность ионизации атомов среды мала и длительность импульса существенно меньше времени возникновения индуцированного постоянного поля. Ряд экспериментальных и теоретических работ подтвердил возможность ГВГ за счет пространственно-нелокальных взаимодействий.

ГВГ при неколлинеарном взаимодействии двух волн была рассмотрена в работе [19]. В этой работе установлено, что вторая гармоника наиболее эффективно генерируется в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами двух волн и имеет s-поляризацию. Ниже будет показано, что это выполняется лишь в рамках теории возмущений, когда не учитывается изменение населенностей.

В общем случае амплитуда второй гармоники зависит также и от поляризации волн, взаимодействующих со средой. В работе [20] развита теория взаимодействия ато-

ма со сверхсильным пространственно-неоднородным полем, результаты которой были использованы для объяснения экспериментов по ГВГ в пространственно-периодических средах [10].

В настоящей работе рассматривается взаимодействие однородной среды centrosимметричных атомов со сверхсильным пространственно-неоднородным полем, являющимся суперпозицией двух плосковолновых импульсов, распространяющихся под углом друг к другу. Анализ проводится на основе неукороченных уравнений для поля и уравнений для среды в двухуровневом приближении.

Для УКИ умеренной интенсивности, когда можно не учитывать ионизацию, наибольшую населенность имеют основной и первый возбужденный уровни, связанные друг с другом дипольно-разрешенным переходом; наличие остальных уровней учитывается в рамках теории возмущений.

В рассматриваемой модели с точностью до первой производной по пространству от векторного потенциала поля будем учитывать пространственно-нелокальные – магнитодипольные, квадрупольные и обусловленные градиентом пондеромоторного потенциала поля – взаимодействия. Система уравнений для атомного отклика, соответствующая данной модели, позволяет исследовать как резонансное, так и нерезонансное взаимодействие атома с импульсом поля. Вследствие отказа от приближения медленно меняющихся амплитуд и фаз длительность УКИ также может быть произвольной.

Предлагаемый в работе подход по сравнению с традиционной теорией возмущений обладает тем преимуществом, что позволяет исследовать динамику отклика атома, связанную с динамикой населенностей уровней в процессе взаимодействия. Вклад различных пространственно-неоднородных взаимодействий изменяется во времени, т. е. отклик атома является нестационарным.

1. Уравнения динамики атомного отклика

Атомный отклик на внешнее электромагнитное поле удобно характеризовать набором переменных, которые являются квантовомеханическими средними от гамильтониана свободного атома \hat{H}_0 и операторов дипольного момента атома $\hat{d} = e\hat{r}$, канонического импульса электрона \hat{p} и скорости электрона \hat{v} . Вместо операторов импульса и скорости электрона обычно вводятся операторы плотности тока $\hat{j} = e\hat{p}/m$ и $\hat{J} = e\hat{v}$.

В результате имеем дело с набором переменных

$$\begin{aligned} d &= \int \Psi^* \hat{d} \Psi dV, \quad j = \int \Psi^* \hat{j} \Psi dV, \quad J = \int \Psi^* \hat{J} \Psi dV, \\ E &= \int \Psi^* \hat{H}_0 \Psi dV, \end{aligned} \quad (1)$$

где E – энергия электронной подсистемы атома. В дипольном приближении разность плотностей тока j и J пропорциональна векторному потенциалу поля A . Учет пространственно-нелокальных взаимодействий атома с внешним полем приводит к различию в динамике плотностей тока j и J .

В рамках предлагаемого нами подхода изменение векторного потенциала поля в пределах размеров орбит атомных электронов будем учитывать с точностью до первой производной. Другими словами, наряду с дипольными взаимодействиями будут учтены простран-

ственно-нелокальные взаимодействия: магнитодипольные, квадрупольные и обусловленные градиентом пондеромоторного потенциала поля. Следует отметить, что в двухуровневом атоме переменные d и j пропорциональны двум квадратурным компонентам поляризации.

Рассмотрим атомный отклик среды в рамках модели двухуровневого атома. В этом случае $E = R\hbar\omega_0/2$, где R – разность населенностей атомных уровней, ω_0 – частота атомного перехода. Модель двухуровневого атома не позволяет учесть все пространственно-нелокальные взаимодействия атома с внешним полем, что обусловлено правилами отбора для матричных элементов перехода в centrosимметричном атомном потенциале. Если два уровня связаны электродипольным переходом, то магнитодипольные и квадрупольные переходы между ними запрещены. Таким образом, модель двухуровневого атома с электродипольным переходом учитывает лишь дипольные и обусловленные градиентом пондеромоторного потенциала поля взаимодействия.

Чтобы корректно учесть все пространственно-нелокальные взаимодействия, необходимо обобщить модель двухуровневого атома. Рассмотрим два атомных состояния, между энергетическими уровнями которых разрешен электродипольный переход. Будем предполагать, что атом с вероятностью, близкой к единице, находится в одном из этих состояний, другими словами, что сумма населенностей этих двух уровней близка к единице. Населенность всех остальных атомных состояний будем считать малой, но отличной от нуля.

Учтем изменение населенности этих состояний за счет магнитодипольных и квадрупольных взаимодействий атома с внешним полем. Вероятность переходов, обусловленных этими взаимодействиями, мала по сравнению с вероятностью рассматриваемого электродипольного перехода. Это позволяет нам пренебречь изменением энергии атома за счет указанных пространственно-нелокальных взаимодействий, т. е. считать, что магнитодипольные и квадрупольные переходы приводят к изменению поляризации атома, но не изменяют его энергию. При взаимодействии сверхсильного поля с атомом существенную роль играет штарковский сдвиг уровней, учет которого проведем в рамках теории возмущений.

Пусть электромагнитное поле распространяется в однородной среде с концентрацией атомов N/V . В рамках сделанных предположений система уравнений для векторного потенциала поля A и атомных переменных (1) принимает вид

$$\begin{aligned} \text{rot rot } A + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} &= \frac{4\pi N}{c} \frac{J}{V}, \\ \frac{\partial d_x}{\partial t} &= \left(1 - \frac{2|d|^2}{\hbar^2 c^2} A^2\right) j_x + \frac{2|d|^2 \omega_0}{\hbar c} R A_x - \frac{e}{mc} d_\beta \nabla_\beta A_x, \\ \frac{\partial j_x}{\partial t} &= -\omega_0^2 \left(1 - \frac{2|d|^2}{\hbar^2 c^2} A^2\right) d_x + \frac{e}{mc} j_\beta \nabla_\beta A_x \\ &\quad + \frac{e\omega_0 |d|^2}{mc^2 \hbar} R \nabla_x A^2, \\ \frac{\partial R}{\partial t} &= -\frac{2\omega_0}{\hbar c} d_x A_x - \frac{e}{\hbar\omega_0 mc^2} j_x \nabla_x A^2, \\ J &= j - \frac{e^2}{mc} A - \frac{e}{mc} (d\nabla)A, \end{aligned} \quad (2)$$

где $|d|$ – матричный элемент дипольного момента перехода; e и m – заряд и масса электрона; c – скорость света; α и β – координатные индексы, принимающие значения x, y, z . Система уравнений (2) вследствие отказа от приближения медленно меняющихся амплитуд и фаз позволяет исследовать как резонансное, так и нерезонансное взаимодействие двухуровневого атома с УКИ электромагнитного поля любой длительности.

2. Теория возмущений

Рассмотрим особенности нелинейно-оптического отклика атома, обусловленные пространственной неоднородностью внешнего поля, в рамках стационарной теории возмущений, т. е. в предположении, что населенность атомных уровней не изменяется. Будем предполагать, что ни одна из гармоник внешнего поля не находится в резонансе с частотой атомного перехода.

В качестве малого параметра теории возмущений выберем отношение частоты Раби $\Omega_R = 2|d|E_0/\hbar$ к частоте атомного перехода ω_0 , где E_0 – амплитуда напряженности электрического поля. Такой выбор оправдан, если амплитуда внешнего поля существенно меньше внутриатомного поля.

Пусть атом взаимодействует с полем, являющимся суперпозицией двух плоских волн, распространяющихся под углом 2θ друг к другу. Выберем систему координат, в которой волновые векторы имеют следующий вид: $\mathbf{k}_1 = \{0, k \sin \theta, k \cos \theta\}$, $\mathbf{k}_2 = \{0, -k \sin \theta, k \cos \theta\}$ (см. рис.1). В общем случае обе волны поляризованы эллиптически:

$$\begin{aligned} A_1 &= \frac{A_0}{2} (e_x a \cos \Phi_1 + e_{y1} b \sin \Phi_1), \\ A_2 &= \frac{A_0}{2} (e_x c \cos \Phi_2 + e_{y2} d \sin \Phi_2), \end{aligned} \quad (3)$$

где A_0 – амплитуда векторного потенциала; a, b, c, d – безразмерные константы, описывающие эллипсы поляризации; e_{y1} и e_{y2} – единичные орты, связь которых с ортами исходной системы координат имеет вид $e_{y1} = e_y \cos \theta - e_z \sin \theta$, $e_{y2} = e_y \cos \theta + e_z \sin \theta$. Фазы первой и второй волн удовлетворяют выражениям $\Phi_1 = \omega t - \mathbf{k}_1 \mathbf{r} + \delta$ и $\Phi_2 = \omega t - \mathbf{k}_2 \mathbf{r} - \delta$ соответственно, где δ – произвольный фазовый сдвиг; ω – частота внешнего поля.

Далее используем традиционную терминологию: s-компонента вектора – компонента, перпендикулярная плоскости, которую образуют волновые векторы; p-компонента вектора – компонента, лежащая в плоскости,

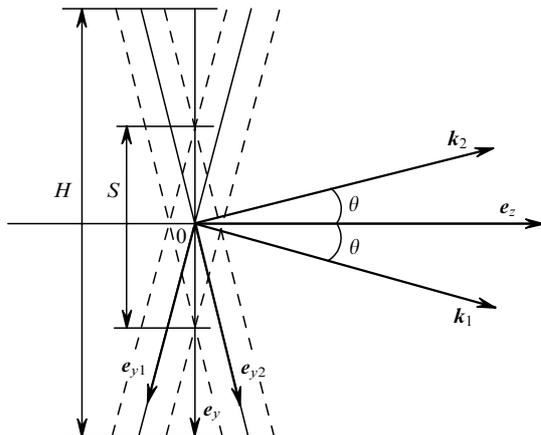


Рис.1. Геометрия внешнего поля.

которую образуют волновые векторы. Таким образом, константы a, c определяют s-компоненту внешнего поля, а константы b, d – p-компоненту.

Пространственно-неоднородное поле, взаимодействуя с атомом, изменяет его свойства симметрии. Степень нарушения центральной симметрии невозмущенного атома можно характеризовать постоянным дипольным моментом, индуцируемым внешним полем. Интегрируя уравнения (2) с учетом указанных выше предположений, несложно получить выражение для постоянно-го дипольного момента, который имеет отличную от нуля только поперечную p-компоненту:

$$d_y(0) = \frac{e}{2mc^2} \frac{k\omega^2 |d|^2 R_0 A_0^2}{\hbar\omega_0(\omega_0^2 - \omega^2)} \sin \theta (ac + bd \cos 2\theta) \sin 2\xi, \quad (4)$$

где R_0 – начальная инверсия населенностей; $\xi = k \sin \theta y - \delta$. Дипольный момент промодулирован по поперечной координате, его знак зависит от отношения частоты внешнего поля к частоте атомного перехода. Отметим, что необходимым условием наличия постоянного дипольного момента, индуцируемого в атоме, является интерференция двух волн.

Исследуем поле отклика среды центросимметричных атомов на частоте второй гармоники. Из уравнений (2) несложно получить выражения для плотности тока на частоте второй гармоники. Подставляя эти выражения в волновое уравнение и интегрируя его в приближении заданного поля, для однородной среды длиной L нетрудно найти поле ее отклика на частоте второй гармоники. Независимо от поляризации внешнего поля p-компонента второй гармоники равна нулю. Выражение для s-компоненты второй гармоники имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} E_x(2\omega) &= -\frac{4\pi}{c^2 k_2} \frac{N}{V} \frac{e}{mc^2} \frac{k\omega^4 \omega_0 |d|^2 R_0 A_0^2 \sin 2\theta}{\hbar(\omega_0^2 - \omega^2)(\omega_0^2 - 4\omega^2)} \\ &\times (ad - bc) L \frac{\sin \Delta L}{\Delta L} \sin(2\omega t - k_2 z), \end{aligned} \quad (5)$$

где k_2 – модуль волнового вектора второй гармоники; $\Delta = k_2 - 2k \cos \theta$ – фазовая расстройка. Из выражения (5) следует, что s-поляризованная вторая гармоника распространяется в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами двух волн, взаимодействующих со средой.

Амплитуда второй гармоники зависит от поляризации внешнего поля. Так, например, если со средой взаимодействуют две s-поляризованные или две p-поляризованные волны, то поле отклика на частоте второй гармоники равно нулю. Напротив, если со средой взаимодействуют s-поляризованная и p-поляризованная волны, то поле отклика второй гармоники отлично от нуля. При взаимодействии со средой двух циркулярно поляризованных волн важную роль играет направление вращения вектора напряженности электрического поля. Если у обеих волн эти направления совпадают, то поле отклика второй гармоники равно нулю. В противном случае поле отклика на частоте второй гармоники отлично от нуля.

3. Двухуровневый атом в сверхсильном поле

Рассмотрим особенности нелинейно-оптического отклика двухуровневого атома при взаимодействии со сверхсильным внешним полем. Термин «сверхсильное»

соответствует полю, для которого частота Раби имеет порядок частоты атомного перехода. Пусть внешнее поле является суперпозицией двух s-поляризованных плоских волн, распространяющихся под углом друг к другу. Будем считать, что все гармоники внешнего поля не находятся в резонансе с частотой атомного перехода.

Численное исследование системы уравнений (2) проведем при следующих параметрах: $R_0 = -1$, т. е. атом до взаимодействия с импульсом поля находится в невозбужденном состоянии; угол $\theta = \pi/6$; длительность импульса по уровню e^{-1} составляет 15 периодов поля; разность фаз взаимодействующих волн $2\delta = \pi/2$, что соответствует максимальному поперечному градиенту пондеромоторного потенциала поля. Расчеты были проведены для двух различных частот внешнего поля: в первом случае частота поля была меньше частоты атомного перехода ($\omega/\omega_0 = 0.75$), во втором она превышала частоту атомного перехода ($\omega/\omega_0 = 1.25$).

Компьютерное моделирование атомного отклика позволяет заключить, что все нечетные гармоники атомного отклика s-поляризованы, а все четные – р-поляризованы. С увеличением амплитуды внешнего поля амплитуда плотности тока на частоте внешнего поля претерпевает отклонение от линейной зависимости, которая характерна для слабых полей (рис.2,а). Теория возмущений приводит к следующему выражению для показателя преломления среды:

$$n^2(\omega) = 1 - \frac{4\pi}{c} \frac{N}{V} \frac{c^2}{\omega^2} \left[\frac{e^2}{mc} + \frac{2|d|^2 \omega_0^3 R_0}{\hbar c (\omega_0^2 - \omega^2)} - \frac{|d|^4 \omega_0^3 \omega^2 (3\omega_0^2 + \omega^2) R_0}{\hbar c^3 (\omega_0^2 - \omega^2)^3} A_0^2 \cos^2 \xi \right]. \quad (6)$$

Это соотношение хорошо объясняет характер зависимостей, представленных на рис.2,а.

Руководствуясь формулой (6), рассмотрим самофокусировку линейно поляризованного гауссова пучка в однородной среде двухуровневых атомов. Условие самофокусировки может быть представлено в виде

$$\frac{R_0 \omega_0^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)} \frac{P}{P_0} \geq 1, \quad (7)$$

где P – мощность лазерного излучения;

$$P_0 = \frac{\hbar^3 c^3 (\omega_0^2 - \omega^2)^2 n_0}{16\pi(N/V)|d|^4 \omega_0 (3\omega_0^2 + \omega^2)} \quad (8)$$

– критическая мощность лазерного излучения; n_0 – возмущенный внешним полем показатель преломления среды. Положительный безразмерный множитель $R_0 \omega_0^2 \times (\omega_0^2 - \omega^2)^{-1}$ в выражении (7) соответствует самофокусировке, а отрицательный – самодефокусировке. Таким образом, для самофокусировки лазерного пучка в невозбужденной среде необходимо, чтобы частота поля превышала частоту атомного перехода. Для среды с концентрацией двухуровневых атомов $N/V = 10^{19} \text{ см}^{-3}$, обладающих дипольным моментом перехода $|d| = 1 \text{ Д}$, и отношения частоты поля к частоте атомного перехода $\omega/\omega_0 = 1.25$ критическая мощность P_0 , необходимая для самофокусировки пучка, составляет $\sim 30 \text{ кВт}$.

Зависимость амплитуды р-компоненты плотности тока на частоте второй гармоники от частоты Раби, нор-

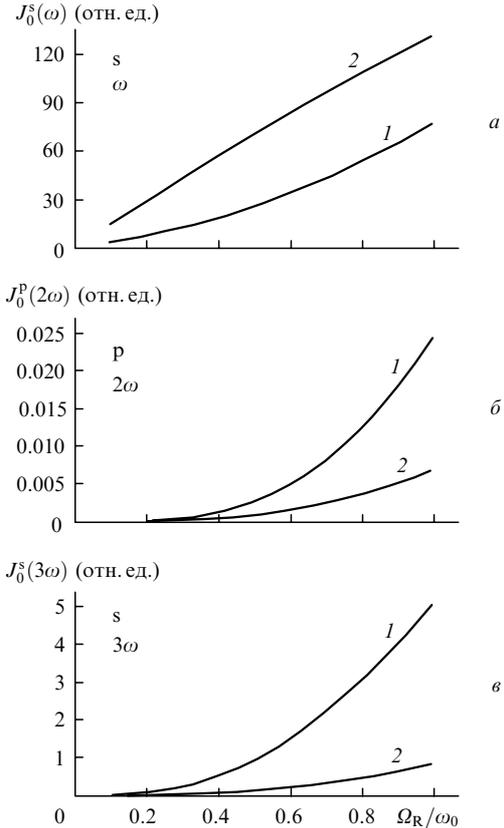


Рис.2. Зависимости амплитуд s- или р-компоненты плотности тока на частотах внешнего поля (а), второй гармоники (б) и третьей гармоники (в) от частоты Раби, нормированной на частоту атомного перехода при $\omega/\omega_0 = 0.75$ (1) и 1.25 (2).

мированной на частоту атомного перехода, представлена на рис.2,б. Второй порядок теории возмущений не дает вклада в атомный отклик на частоте второй гармоники. Следовательно, отклик на частоте второй гармоники есть следствие четвертого и более высоких порядков теории возмущений. Это означает, что для слабых полей характерна зависимость плотности тока в виде функции четвертой степени от амплитуды внешнего поля.

С увеличением амплитуды внешнего поля эта зависимость испытывает насыщение, т. е. показатель степенной функции становится меньше четырех. В сильном поле традиционная для слабых полей кубическая зависимость амплитуды плотности тока на частоте третьей гармоники от амплитуды внешнего поля испытывает насыщение (рис.2,в), другими словами, показатель степенной функции становится меньше трех.

4. Угловой спектр поля отклика среды

Рассмотрим взаимодействие однородной среды двухуровневых атомов с суперпозиционным полем двух плосковолновых импульсов, распространяющихся под углом друг к другу. Штриховые линии на рис.1 ограничивают области, размер которых определяется длительностью импульсов. Поперечные размеры среды двухуровневых атомов и области перекрытия волновых пакетов равны H и S соответственно.

Атомный отклик однородной среды длиной L , взаимодействующей с полем двух плоских волн, которые распространяются под углом друг к другу, является периодической функцией поперечной координаты y . Это

обстоятельство позволяет представить поле отклика среды в виде ряда Фурье:

$$\mathbf{E}^{s,p} = \sum_{m=1}^{+\infty} \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \left(\frac{1}{4q_{mp}} \frac{\sin \Delta_{mp} L}{\Delta_{mp}} \right) \vec{\mathcal{E}}_{mp}^{s,p}, \quad (9)$$

где $q_{mp} = (k_m^2 - p^2 k^2 \sin^2 \theta)^{1/2} - z$ -компонента волнового вектора; k_m – модуль волнового вектора m -й гармоники; $\Delta_{mp} = q_{mp} - mk \cos \theta$ – фазовая расстройка волновых векторов. Индекс m нумерует гармоники несущей частоты, а индекс p – различные направления распространения поля отклика среды. Дискретный набор направлений распространения поля отклика обусловлен периодической структурой возбуждающего поля.

Условие фазового синхронизма для m -й гармоники, распространяющейся в направлении, которое характеризуется параметром p , имеет вид

$$\left(\frac{n_m}{n} \right)^2 = 1 + \left[\left(\frac{p}{m} \right)^2 - 1 \right] \sin^2 \theta, \quad (10)$$

где n_m и n – показатели преломления среды для m -й гармоники и падающего на среду поля соответственно.

Введем в рассмотрение угол φ_{mp} между направлением распространения поля m -й гармоники, которое соответствует параметру p , и осью z . Вообще говоря, угол φ_{mp} зависит от отношения показателей преломления среды на соответствующих частотах, но если для некоторого направления распространения поля отклика, отвечающего параметру p , выполнено условие фазового синхронизма, то угол φ_{mp} определяется следующим выражением:

$$\sin \varphi_{mp} = \frac{p}{m} \sin \theta \left\{ 1 + \left[\left(\frac{p}{m} \right)^2 - 1 \right] \sin^2 \theta \right\}^{-1/2}. \quad (11)$$

Задачей численного моделирования был расчет углового спектра поля отклика среды $\vec{\mathcal{E}}_{mp}^{s,p}$ для различных поляризаций внешнего поля. Мы использовали следующие параметры для численного расчета: $\theta = \pi/6$, $\omega/\omega_0 = 0.75$, $R_0 = -1$ (среда до взаимодействия с полем не возбуждена), $\Omega_R/\omega_0 = 0.2$, длительность импульса по уровню e^{-1} составляет 15 периодов поля, $S = 30\lambda$, где λ – длина волны лазерного излучения, $H = 60\lambda$.

На рис.3 показаны угловые спектры амплитуды поля отклика среды на частоте второй и третьей гармоник для поляризаций внешнего поля (s, s), (s, p) и (p, p). Направление распространения, определяемое (11), и условие фазового синхронизма (10) для каждой из спектральных компонент углового спектра зависят от угла между волновыми векторами волн и показателей преломления среды на соответствующих частотах. Знак параметра p отвечает знаку проекции волнового вектора поля отклика на ось y .

В случае s,s-поляризации внешнего поля отклик среды на частоте второй гармоники р-поляризован, а поляризация поля на частоте третьей гармоники совпадает с поляризацией внешнего поля. Спектральная компонента поля отклика на частоте второй гармоники ($p = 0$, рис.3,а,г) имеет двугорбую структуру, обусловленную видом производной профиля внешнего поля по поперечной координате. Излучение второй гармоники, соответствующее этой компоненте, распространяется под малым углом к оси z , который обратно пропорционален

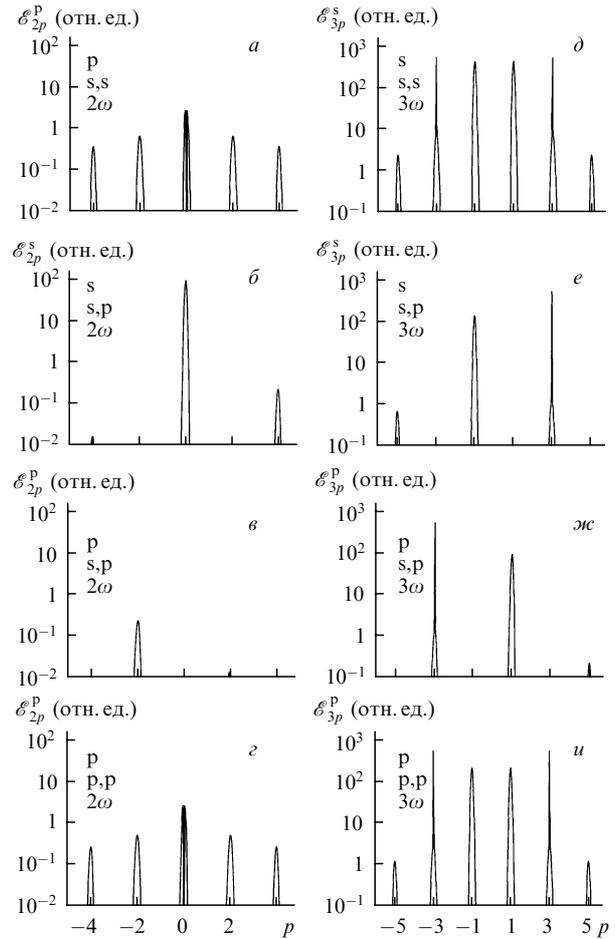


Рис.3. Угловые спектры амплитуд поля отклика s- и p-компонент второй и третьей гармоник при s,s-, s,p- и p,p-поляризациях внешнего поля.

длительности импульса. Спектральные компоненты с $p = \pm 2$ (рис.3,а-г) соответствуют ГВГ в направлении распространения падающих на среду импульсов.

ГВГ происходит вследствие неколлинеарного взаимодействия двух волн. Это обстоятельство приводит к тому, что угловой спектр второй гармоники содержит только «широкие» спектральные компоненты, ширина которых обратно пропорциональна поперечному размеру области перекрытия волновых пакетов S . Угловой спектр поля отклика на частоте третьей гармоники наряду с «широкими» спектральными компонентами содержит и «узкие» спектральные компоненты с $p = \pm 3$, которые соответствуют генерации третьей гармоники в направлении распространения падающих импульсов. Ширина этих спектральных компонент обратно пропорциональна поперечному размеру среды H , т. к. каждый из импульсов независимо генерирует вторую гармонику во всем объеме среды двухуровневых атомов, а не только в области перекрытия волновых пакетов.

В случае s,p-поляризации падающие импульсы не создают интерференционного поля; отклик среды при этом асимметричен относительно оси z (рис.3, б, в, е, ж). Угловой спектр излучения на частотах второй и третьей гармоник содержит излучения обеих поляризаций, выходящие, однако, из среды под разными углами. Наиболее эффективная ГВГ наблюдается в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами падающих импульсов ($p = 0$). Как и предсказывает теория возмущения

ний, вторая гармоника, генерируемая в этом направлении, s-поляризована.

Поляризация излучения третьей гармоники, распространяющейся в направлении $p = \pm 1$ (рис.3, *e, жс*), совпадает с полученной по теории возмущений. Распространяющийся в направлении $p = +3$ s-поляризованный импульс генерирует третью гармонику, распространяющуюся в том же направлении и обладающую той же поляризацией, что подтверждают результаты численного расчета (рис.3, *e*). Аналогичное утверждение справедливо и для p-поляризованного импульса поля, распространяющегося в направлении $p = -3$ (рис.3, *жс*).

В случае r,p-поляризации поле отклика на частотах второй и третьей гармоник r-поляризовано. При этом s-компонента атомного отклика равна нулю. Для r,p-поляризованного внешнего поля дополнительно исследовалась зависимость поля отклика от длительности импульса и амплитуды внешнего поля. Из общезначимых соображений ясно, что амплитуда «широких» спектральных компонент пропорциональна объему области перекрытия волновых пакетов. Если $S < H$, то этот объем пропорционален квадрату длительности импульса.

Однако это справедливо не для всех спектральных компонент. Спектральная компонента с $p = 0$ (рис.3, *z*) имеет двугорбую структуру, которая обусловлена видом производной от огибающей внешнего поля. Данное обстоятельство приводит к линейной зависимости амплитуды спектральной компоненты с $p = 0$ от длительности импульса. «Узкие» спектральные компоненты с $p = \pm 3$ (рис.3, *и*) генерируются во всем объеме среды двухуровневых атомов, поэтому их амплитуды линейно зависят от длительности импульса.

Численные расчеты подтверждают приведенные качественные рассуждения. Амплитуды спектральных компонент второй гармоники с $p = \pm 2$ и $p = \pm 4$ являются функцией четвертой степени амплитуды внешнего поля, т. е. эти компоненты генерируются за счет нелинейности четвертого порядка. Спектральная компонента с $p = 0$ генерируется за счет нелинейности второго порядка. Что касается спектральных компонент третьей гармоники с $p = \pm 1$ и $p = \pm 3$, то они являются функциями третьей степени амплитуды внешнего поля, а компоненты с $p = \pm 5$ – функцией пятой степени.

Рассмотрим теперь основные результаты численного расчета для случаев, когда один из импульсов или оба импульса циркулярно поляризованы. Если первый импульс s- или r-поляризован, а второй импульс циркулярно поляризован, то, как и предсказывает теория возмущений, наиболее интенсивный сигнал на частоте второй гармоники имеет s-поляризацию и распространяется в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами исходных импульсов.

В отличие от ранее рассмотренных случаев поляризация второй и третьей гармоник в общем случае является эллиптической. Так, например, излучение третьей гармоники с $p = -1$ имеет поляризацию, близкую к циркулярной. В спектре отклика на частоте третьей гармоники присутствует только одна «узкая» спектральная компонента с $p = +3$, соответствующая третьей гармонике, генерируемой во всем объеме среды двухуровневых атомов линейно поляризованным импульсом поля.

Генерация третьей гармоники циркулярно поляризованным импульсом малоэффективна, поэтому «узкая» спектральная компонента с $p = -3$, соответствующая

излучению третьей гармоники в направлении распространения циркулярно поляризованного импульса, отсутствует. Поле отклика на частоте второй гармоники на порядок меньше поля на частоте третьей гармоники.

Если со средой взаимодействуют два циркулярно поляризованных импульса, то следует различать два случая. В первом случае оба импульса имеют или правовинтовую, или левовинтовую циркулярную поляризацию, во втором случае один импульс имеет правовинтовую, а другой левовинтовую циркулярную поляризацию. Как и предсказывает теория возмущений, наиболее эффективная ГВГ будет наблюдаться во втором случае. Эффективность генерации третьей гармоники каждым из циркулярно поляризованных импульсов в отдельности мала, поэтому в угловом спектре третьей гармоники отсутствуют «узкие» спектральные компоненты.

Наиболее интенсивные спектральные компоненты третьей гармоники с $p = \pm 1$ соответствуют излучению, распространяющемуся под углом $\varphi_{31} \approx 11^\circ$ к оси z . Поляризация этого излучения будет близка к циркулярной поляризации. Во втором случае амплитуды второй и третьей гармоник имеют один и тот же порядок. Следует отметить, что в обоих случаях угловой спектр поля отклика среды симметричен относительно продольной оси z .

Заключение

Таким образом, развитая теория взаимодействия атома со сверхсильным пространственно-неоднородным лазерным полем в двухуровневом приближении описывает динамику пространственно-нелокальных взаимодействий, обусловленную изменением населенностей уровней. В рамках предложенной модели с точностью до первой производной векторного потенциала поля по пространству возможен учет пространственно-нелокальных – магнитодипольных, квадрупольных и обусловленных градиентом пондеромоторного потенциала поля – взаимодействий. Развитая модель применима для анализа как резонансных, так и нерезонансных взаимодействий атома с УКИ поля произвольной длительности.

Сравнение численных расчетов с результатами стационарной теории возмущений показало, что в рамках стационарной теории возмущений вторая гармоника генерируется только в направлении биссектрисы угла между волновыми векторами волн, взаимодействующих со средой. Поле отклика на частоте второй гармоники s-поляризовано, и его амплитуда зависит от поляризации внешнего поля. Учет динамики населенностей уровней атома и конечной длительности импульса приводит к появлению в угловом спектре поля отклика новых спектральных компонент.

Исследованы особенности нелинейно-оптического отклика атома в сильном поле. Изменение населенностей уровней приводит к возрастанию показателя преломления первоначально невозбужденной среды с увеличением амплитуды поля, если частота поля превышает частоту атомного перехода. При выполнении обратного условия показатель преломления среды убывает. Атомный отклик на частотах второй и третьей гармоник с ростом амплитуды внешнего поля испытывает насыщение.

Численно рассчитаны угловые спектры поля отклика второй и третьей гармоник для различных поляризаций внешнего поля. Получены аналитические выражения для условия фазового синхронизма и зависимости углового

распределения поля отклика от угла между волновыми векторами взаимодействующих волн и показателей преломления среды на соответствующих частотах.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 99-02-16093), УНЦ «Фундаментальная оптика и спектроскопия» и программы «Университеты России».

1. Платоненко В.Т., Стрелков В.В. *Квантовая электроника*, **25**, 582 (1998).
2. Ким А.В., Рябикин М.Ю., Сергеев А.М. *УФН*, **169**, 58 (1999).
3. Бабин А.А., Киселёв А.М., Правденко К.И., Сергеев А.М., Степанов А.Н., Хазанов Е.А. *УФН*, **169**, 80 (1999).
4. Фёдоров М.В. *УФН*, **169**, 66 (1999).
5. Andreev A.V., Kozlov A.B. *Proc.SPIE*, **3735**, 75 (1999).
6. Nisoli M., De Silvestri S., Svelto O., Szipocs R., Ferencz K., Spielmann Ch., Sartania S., Krausz F. *Optics Letts*, **22**, 522 (1997).
7. Ахманов С.А., Хохлов Р.В. *Проблемы нелинейной оптики* (М., ВИНТИ, 1964).
8. Kleinman D.A. *Phys.Rev.*, **126**, 1977 (1962).
9. Bethune D.S. *Phys.Rev.A*, **23**, 3139 (1981).
10. Андреев А.В., Андреева О.А., Балакин А.В., Буше Д., Масселин П., Ожередов И.А., Прудников И.Р., Шкуринов А.П. *Квантовая электроника*, **28**, 75 (1999).
11. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М., Наука, 1989).
12. Mossberg T., Flusberg A., Hartmann S.R. *Optics Comms*, **25**, 121 (1978).
13. Kim D., Mullin C.S., Shen Y.R. *J.Opt.Soc.Amer B*, **14**, 2530 (1997).
14. Miyazaki K., Sato T., Kashiwagi H. *Phys.Rev.Letts*, **43**, 1154 (1979).
15. Malcuit M.S., Boyd R.W., Davis W.V., Rzewski K. *Phys.Rev.A*, **41**, 3822 (1990).
16. Dinev S. *J.Phys.B*, **21**, 1681 (1988).
17. Jamroz W., LaRocque P.E., Stoicheff B.P. *Optics Letts*, **7**, 148 (1982).
18. Hakuta K., Marmet L., Stoicheff B.P. *Phys.Rev.Letts*, **66**, 596 (1991).
19. Bethune D.S., Smith R.W., Shen Y.R. *Phys.Rev.A*, **17**, 277 (1978).
20. Андреев А.В. *ЖЭТФ*, **116**, 793 (1999).

A.V.Andreev, A.B.Kozlov. Effect of the spatial inhomogeneity of a field on the nonlinear optical response of an atom.

A theory of the interaction of a centrally symmetric atom with a superstrong spatially inhomogeneous laser field is developed. The theory describes, in the two-level approximation, the dynamics of the spatially nonlocal interactions caused by a change in the level populations. A model is proposed that takes into account spatially nonlocal magnetic dipole and quadrupole interactions, as well as the interactions caused by the gradient of the pondermotive potential of the field. The interaction of a homogeneous medium consisting of centrally symmetric atoms with a superstrong laser field representing a superposition of two plane-wave ultrashort pulses propagating at an angle to each other is considered. A perturbation theory is developed for the atomic response, which is valid for fields of the moderate strength. The results of numerical calculations are compared with the results of the perturbation theory. The properties of the nonlinear optical response of an atom in a superstrong field are studied. The angular distribution of radiation of the second and third harmonics is calculated for different polarisations of an external field in the given field approximation.