

Особенности распространения фемтосекундных лазерных импульсов в молекулярной газовой среде в условиях эффективного выстраивания молекул

А.В.Гуляев, О.В.Тихонова

Исследовано распространение фемтосекундных лазерных импульсов в молекулярной газовой среде с учетом вращательной динамики молекул под действием этих импульсов. На основе совместного численного решения волнового уравнения, описывающего эволюцию лазерного импульса, и уравнения Шредингера, задающего изменение квантового состояния молекул среды, проанализированы вращательная динамика молекул в лазерном поле и эволюция лазерного импульса с учетом их взаимного влияния. Обнаружено эффективное динамическое выстраивание молекул вдоль направления поляризации лазерного излучения, вызывающее изменение пространственно-временного профиля импульса, а также значительное уширение и деформацию его спектра по мере распространения в среде. Физические механизмы обнаруженных эффектов проанализированы на основе приближенного аналитического решения задачи, найденного для случая предварительного возбуждения среды импульсом накачки (схема накачка – зондирование).

Ключевые слова: ультракороткие лазерные импульсы, распространение излучения, ориентационная нелинейность.

1. Введение

Прогресс в области экспериментальной техники, позволивший получить рекордно короткие лазерные импульсы, открывает широкие возможности для наблюдения новых физических эффектов в задачах взаимодействия лазерного излучения с веществом. Сравнительно недавно стало понятно, что вопреки стандартной иерархии характерных молекулярных энергий [1] в сильных полях вращательная динамика молекулы может протекать гораздо быстрее ее колебательной динамики за счет одно-временного заселения большого числа возбужденных вращательных состояний [2, 3]. При этом взаимодействие молекулы с лазерным УКИ может способствовать эффективному заселению высоких вращательных состояний под действием резких неадиабатических фронтов импульса. Кроме того, в случае гомоядерных молекул заселение колебательно-вращательных состояний в пределах исходного терма возможно только при переходах Λ -типа через верхнее электронное состояние. По сравнению с возбуждением колебательных состояний такие переходы в случае вращательных состояний оказываются гораздо более эффективными за счет малого различия между энергиями начального и конечного состояний, пропорционального вращательной постоянной. В результате под действием поля возникает эффективная вращательная динамика возбужденных молекул, которая приводит к специфической эволюции поляризационного отклика и оптических свойств такой молекулярной среды. Поляризационный отклик сре-

ды характеризуется в этом случае так называемой ориентационной нелинейностью [4, 5], связанной с процессом выстраивания молекул в лазерном поле и его инерционностью во времени.

При распространении лазерного импульса в молекулярной среде данного типа могут возникать нелинейные физические эффекты, связанные с взаимным влиянием импульса и среды, такие как самовоздействие и самофокусировка лазерного излучения и др. [6]. Важно отметить, что в случае сильных лазерных полей, когда возбуждение вращательных степеней свободы происходит эффективно, традиционно используемые для слабых полей разложение поляризационного отклика в ряд по степеням поля [6, 7] и различные пертурбативные подходы (см., напр., [8]) оказываются некорректными. В этом случае вращательную динамику молекулы необходимо рассматривать за рамками теории возмущений с учетом эффектов сильного поля, а возникающий поляризационный отклик должен быть определен непосредственно из решения нестационарного уравнения Шредингера.

Эффективное заселение вращательных состояний под действием сильного лазерного поля неоднократно исследовалось как теоретически, так и экспериментально [2, 9–15]. Однако теоретический анализ обычно проводился в режиме заданного поля, т. е. без учета обратного влияния среды на воздействующий лазерный импульс.

Таким образом, распространение лазерного излучения в молекулярной среде в режиме эффективного выстраивания молекул является важной и пока еще не решенной задачей, которая требует корректного описания взаимодействия импульса со средой за рамками теории возмущений и учета взаимовлияния поля и среды.

В настоящей работе решена самосогласованная задача о распространении фемтосекундных лазерных импульсов в молекулярной газовой среде с ориентационной нелинейностью при эффективном вращательном движении молекул и проанализировано взаимовлияние пространственно-временной эволюции лазерного импульса и динамики по-

А.В.Гуляев, О.В.Тихонова. НИИ ядерной физики им. Д.В.Скобелева МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119234 Москва, Воробьевы горы; Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: GulyaevAV@gmail.com, OVTikhonova@mail.ru

Поступила в редакцию 11 февраля 2013 г., после доработки – 24 апреля 2013 г.

ляризации отклика. Результаты получены на основе совместного численного решения волнового уравнения, описывающего эволюцию лазерного импульса, и нестационарного уравнения Шредингера, задающего изменение квантового состояния молекул среды в различных точках пространства. Исследованы временная динамика выстраивания молекул в лазерном поле, а также дисперсия лазерного импульса и пространственно-временная эволюция его спектра в процессе распространения. Для случая распространения пробного импульса в первоначально возбужденной импульсом накачки среде (схема накачка–зондирование) развита аналитическая теория, позволяющая найти приближенное решение, которое хорошо согласуется с данными точного численного расчета (при средних глубинах проникновения) и объясняет возникающие физические эффекты. Полученные результаты сравниваются с результатами работ [16, 17], базирующихся на понятии зависящего от времени показателя преломления среды, введение которого постулируется феноменологически без теоретического обоснования.

2. Математическая постановка задачи

Рассмотрим взаимодействие газовой среды, состоящей из легких двухатомных гомоядерных молекул, по характеристикам близких к молекуле H_2 , с импульсами титан-сапфирового лазера длительностью порядка нескольких десятков фемтосекунд. В работах [3, 18] было показано, что в поле низкочастотного излучения титан-сапфирового лазера ($h\omega_{las} = 1.55$ эВ) при умеренных интенсивностях (вплоть до $I = 10^{14}$ Вт/см²) степень ионизации молекулярного иона водорода H_2^+ оказывается пренебрежимо малой, а заселение первого возбужденного («разлетного») термина молекулы происходит в режиме, соответствующем теории возмущений. Аналогично и в нашем случае при не слишком высоких интенсивностях (до $I = 10^{14}$ Вт/см²) можно пренебречь ионизацией и диссоциацией за счет переходов в вышележащие термы молекулы. Кроме того, заселение связанных колебательно-вращательных состояний исходного (основного) термина происходит за счет переходов Λ -типа через верхний электронный терм. При этом малость вращательной постоянной по сравнению с колебательным квантом приводит к гораздо более эффективному заселению под действием лазерного поля вращательных состояний по сравнению с колебательными. Таким образом, в нашем случае для выбранной частоты лазерного излучения имеется некоторый диапазон интенсивностей, для которого именно вращательная динамика является определяющей, а эволюцией других степеней свободы молекулы можно пренебречь.

В рамках приближения Борна–Оппенгеймера при рассмотрении только одного (основного) термина молекулы и усреднения по электронным координатам нестационарное уравнение Шредингера, описывающее вращательную динамику гомоядерной молекулы с учетом возможного перезаселения состояний при переходах Λ -типа, имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Phi_1 = \left(T_n - \frac{1}{2} E^2 \Delta \alpha \cos^2 \theta \right) \Phi_1, \quad (1)$$

где $T_n = -B\Delta_{\theta\varphi}$ – оператор кинетической энергии ядер, связанной с вращениями; $\Delta \alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$ – разность продольной (вдоль оси молекулы) и поперечной поляризуе-

мости молекулы; $B = \hbar^2 / (2\mu R_0^2)$ – вращательная постоянная; μ – приведенная масса молекулы; R_0 – равновесное межъядерное расстояние; θ – угол между осью молекулы и вектором напряженности электрического поля E . Второе слагаемое в правой части (1) фактически представляет собой эффективную энергию взаимодействия поля с наведенным диполем и может быть аккуратно получено из системы уравнений для волновых функций ядерной подсистемы в условиях малого заселения возбужденных термов (режим теории возмущений для электронной подсистемы), как это было сделано в [7] для случая колебательных состояний молекулы. Условия правомерности уравнения (1) включают в себя кроме прочего узкую локализацию спектра импульса, т.е. малость ширины частотного спектра по сравнению с разностью энергий электронных состояний, что в рассматриваемом случае выполняется с хорошим запасом.

Характерные времена релаксации газовой среды при нормальных условиях лежат в наносекундном диапазоне [9], поэтому вплоть до субнаносекундного диапазона взаимодействие отдельной молекулы с электрическим полем лазерного импульса можно рассматривать в рамках нестационарного уравнения Шредингера (1), не прибегая к формализму матрицы плотности, причем при комнатных и более низких температурах заселением всех возбужденных вращательных состояний можно пренебречь. Поэтому начальное условие для уравнения (1) соответствует основному вращательному состоянию с $J = 0$.

Уравнение (1) решалось совместно с волновым уравнением, которое характеризует распространение лазерного импульса в молекулярной газовой среде. На входе в среду задавался линейно поляризованный лазерный импульс с широким (плоским) волновым фронтом, что исключает из рассмотрения процессы фокусировки и дефокусировки лазерного излучения, которые необходимо принимать во внимание для узких лазерных пучков. В этом случае волновое уравнение может быть записано в виде

$$\frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P(z, t)}{\partial t^2}, \quad (2)$$

$$E(z = 0, t) = E_0(t) = \varepsilon_0(t) \cos \omega_{las} t.$$

Здесь функция $E_0(t)$ задает временной профиль лазерного импульса на входе в среду; ее огибающая $\varepsilon_0(t) = \sin^2[\omega_{las} t / (2q)]$; ω_{las} – частота лазерного излучения; q – количество оптических циклов, определяющее абсолютную длительность лазерного импульса.

Поляризация молекулярной среды, входящая в правую часть уравнения (2), вычислялась как средний дипольный момент единицы объема и в рамках однотермового приближения ее проекция на направление поля

$$P_E = N E \langle \Phi_1 | \Delta \alpha \cos^2 \theta | \Phi_1 \rangle, \quad (3)$$

где N – концентрация молекул в среде, а зависящая от времени волновая функция Φ_1 получена из решения уравнения (1). Таким образом, поляризация среды $P(z, t)$ вычисляется непосредственно усреднением оператора $\cos^2 \theta$ по квантовому состоянию молекул. Отметим, что согласно выражению (3) поляризация молекулярной среды имеет ненулевое значение только тогда, когда электрическое поле не равно нулю. Следовательно, в данном приближе-

нии не учитываются эффекты, обусловленные возникновением сигнала остаточной поляризации, что может быть важно в задаче распространения предельно коротких лазерных импульсов длительностью в один-два цикла поля, как это было показано в [19]. Корректное рассмотрение эффектов, связанных с остаточной поляризацией, требует полного учета хотя бы двух электронных термов молекулы.

Для получения точного решения задачи распространения импульса в исследуемой молекулярной среде уравнение (1) решалось численно в каждой точке среды (вдоль оси z) совместно с волновым уравнением (2). При этом в каждой точке с координатой z величина поля в момент времени t определяется зависимостью поляризации среды от времени, которая обусловлена влиянием поля во все предыдущие моменты времени. Подобная задача чрезвычайно трудоемка и требует привлечения значительных вычислительных ресурсов. Уравнение (1) решалось с использованием разложения функции Φ_1 по собственным вращательным состояниям (сферическим функциям $Y_J^{(0)}$):

$$\Phi_1(\theta, t) = \sum_{J=0} C_J(t) Y_J^{(0)}(\theta).$$

Такое разложение сводит уравнение (1) к системе бесконечного числа обыкновенных дифференциальных уравнений для зависящих от времени амплитуд вероятности нахождения молекулы в различных собственных вращательных состояниях:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} C_J &= BJ(J+1)C_J - \frac{1}{2}E^2 \Delta\alpha(\beta_J^{(J+2)} C_{J+2} \\ &+ \beta_J^{(J-2)} C_{J-2} + \beta_J^{(J)} C_J), \dots \end{aligned} \quad (4)$$

где матричные элементы $\beta_J^{(J')} = \langle Y_J^0 | \cos^2\theta | Y_{J'}^0 \rangle$ определяются выражениями

$$\beta_J^{(J+2)} = \sqrt{\frac{(J+1)^2(J+2)^2}{(2J+1)(2J+3)^2(2J+5)}},$$

$$\beta_J^{(J)} = \frac{2J^2 + 2J - 1}{(2J+3)(2J-1)},$$

$$\beta_J^{(J-2)} = \sqrt{\frac{J^2(J-1)^2}{(2J-3)(2J-1)^2(2J+1)}}.$$

При решении уравнения (2) использовался разностный метод с применением девятиточечного шаблона на основе неявно-явной схемы [20]. Параметры выбранной сетки соответствовали разбиению с шагом 0.01 длины волны входящего излучения по пространству и 0.001 периода поля по времени. Для сокращения необходимых временных ресурсов (до разумного уровня) при решении указанной самосогласованной задачи был разработан специальный алгоритм, позволяющий с высокой точностью проводить интегрирование по глубине распространения вплоть до сотен длин волн исходного излучения за счет динамической подстройки расчетной области к пространственно-временной области фактического движения импульса. При решении задачи использовались

следующие значения параметров: $N = 3 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$, $B \simeq 0.015 \text{ эВ}$, $\Delta\alpha \simeq 5.3 \times 10^{-24} \text{ см}^3$, что близко к характеристикам молекулы H_2 .

3. Результаты и обсуждение

Исследуем характер поляризационного отклика молекулярной среды. Выражение (3) показывает, что он пропорционален величине $\langle \Phi_1 | \cos^2\theta | \Phi_1 \rangle$. Это означает, что поляризационный отклик такой среды включает в себя ряд новых частот (соответствующих вращательному спектру молекул) по сравнению с первоначальным спектром распространяющегося лазерного импульса. Таким образом, в процессе распространения спектр лазерного импульса может уширяться за счет комбинационного рассеяния на вращательных подуровнях. При этом процесс эволюции импульса при распространении будет напрямую зависеть от степени выстраивания молекул в лазерном поле, которое характеризуется как раз величиной $\langle \cos^2\theta \rangle$ [2], причем максимальная выстроенность молекул вдоль направления поля соответствует $\langle \cos^2\theta \rangle = 1$.

На рис.1,а,б представлена временная динамика величины $\langle \cos^2\theta \rangle$ при возбуждении вращательных состояний молекулы H_2^+ в поле лазерных импульсов титан-сапфирового лазера длительностью 30 оптических циклов при различных пиковых интенсивностях. Видно, что в процессе лазерного воздействия периодически происходит эффективное выстраивание молекул вдоль направления поля, обусловленное заселением большого числа вращательных состояний. При этом процесс выстраивания сложным немонотонным образом зависит от интенсивности возбуждающего лазерного поля, что может приводить к совершенно различному характеру вращательной динамики в постимпульсном режиме (момент окончания импульса показан стрелкой на рис.1). На протяжении лазерного импульса величина $\langle \cos^2\theta \rangle$ в случае легких молекул испытывает несколько осцилляций, а значит характерное время вращательной динамики оказывается меньше длительности лазерного импульса. Но в то же время центральная частота лазерного поля в несколько раз превышает частоту изменения параметра выстраивания, поэтому даже для легких молекул можно считать динамику выстраивания медленной по сравнению с периодом оптических колебаний. Таким образом, в рассматриваемом случае реализуется специфический режим взаимодействия молекулярной среды с лазерным импульсом. На рис.1,в приведены спектры возбуждающего импульса и возбуждаемого им поляризационного отклика. Видно, что в спектре поляризации среды присутствуют новые частоты, а это при выполнении условий фазового синхронизма может обеспечить процесс уширения спектра лазерного импульса по мере его прохождения через молекулярную среду.

При распространении в среде мощного фемтосекундного лазерного импульса возможны режимы, в которых за счет инерционности процесса выстраивания молекул распространяющийся лазерный импульс не успевает сам «почувствовать» влияние созданного им поляризационного отклика. В данных режимах несмотря на нелинейность среды процесс уширения спектра в результате самовоздействия может оказаться подавленным. В связи с этим особый интерес представляет задача последовательного распространения двух импульсов (схема накачка-зондирование). В такой схеме второй импульс будет проходить по заранее возбужденной среде, молекулы ко-

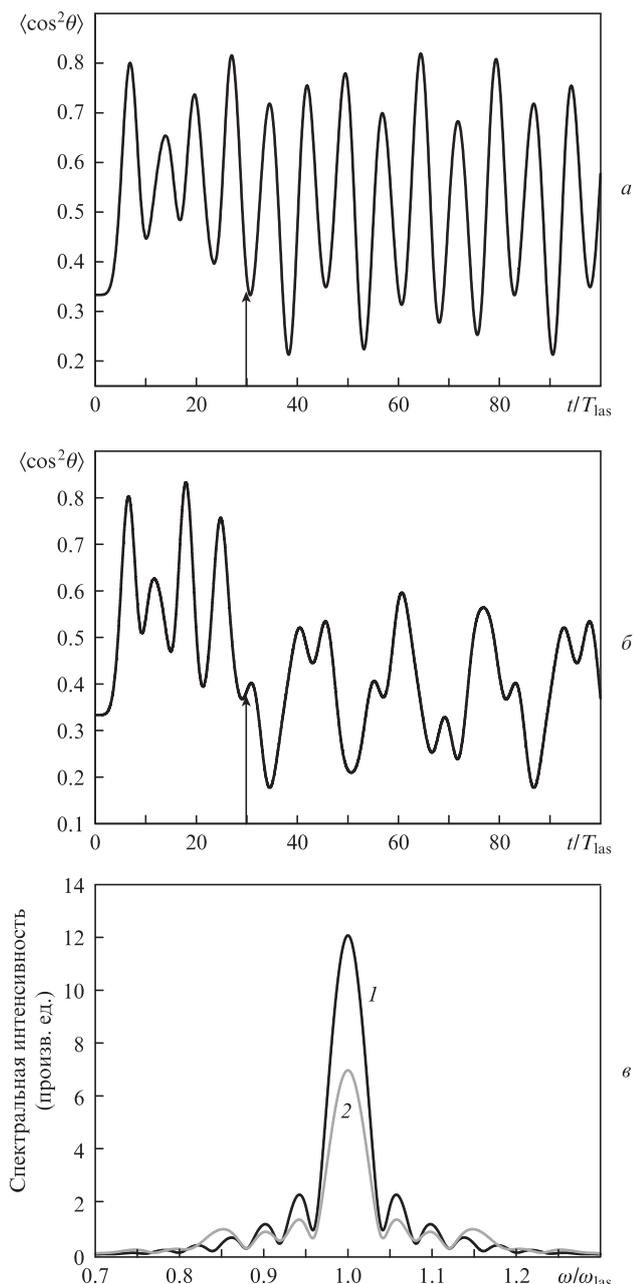


Рис.1. Динамика степени выстраивания $\langle \cos^2 \theta \rangle$ в течение лазерного воздействия и в постимпульсном режиме для импульса с пиковой интенсивностью $I = 6 \times 10^{12}$ (а) и 7×10^{12} Вт/см² (б), а также спектральная интенсивность импульса накачки (1) и сигнала поляризации (2) при $I = 6 \times 10^{12}$ Вт/см² (в). Момент окончания импульса показан стрелкой; $T_{\text{las}} = 2\pi/\omega_{\text{las}}$.

торой могут характеризоваться высокой степенью выстраивания вне зависимости от параметров распространяющегося пробного импульса, что может привести к большему уширению спектра.

При этом если второй (пробный) импульс значительно «слабее» импульса накачки, то можно считать, что он практически не влияет на квантовое состояние среды и распространяется в среде с поляризацией, изменение которой во времени было задано первым импульсом, причем можно добиться получения специфического временного профиля поляризационного отклика путем варьирования характеристик импульса накачки. В этом случае задача описания процесса распространения существенно упрощается, т. к. уравнение Шредингера и волновое урав-

нение расцепляются и пропадает необходимость решать самосогласованную задачу. Тогда поляризационный отклик можно представить в виде $P(z, t) = A(z, t)E(z, t)$, где $A(z, t)$ включает в себя $\langle \cos^2 \theta \rangle$, является заданной функцией координат и времени и не зависит непосредственно от напряженности поля пробного импульса. В этом смысле можно назвать поляризацию «квазилинейной», т. к. она линейно возрастает с ростом напряженности поля. В то же время рассматриваемый случай существенно отличается от линейного. Как уже было отмечено, в спектре поляризационного отклика амплитуды частотных компонент распределены иначе, чем в спектре лазерного импульса: спектр поляризации представляет собой свертку спектра электрического поля и функции $\langle \cos^2 \theta \rangle$. В результате, несмотря на линейную связь спектров, существенную роль при распространении могут играть нелинейные эффекты, связанные с изменением частоты.

Сходство данного случая с линейным позволяет предположить наличие схожих физических механизмов, отвечающих за распространение импульсов в линейной и в исследуемой среде. В частности, если функция $A(z, t)$ медленно меняется во времени и в пространстве (по сравнению с длительностью импульса), то можно сказать, что поляризационный отклик является практически линейным. Подобная аналогия позволяет ввести величину $n(z, t) = \sqrt{1 + 4\pi A(z, t)}$, близкую по смыслу к показателю преломления среды, которая при этом изменяется во времени в каждой точке среды. Однако нет оснований предполагать, что результатами влияния такого «показателя преломления» на процесс распространения будут изменение групповой скорости импульса как целого и пространственно-временная модуляция фазовых скоростей различных спектральных компонент, формирующих импульс (подобное предположение было сделано в [16] без учета пространственной зависимости $n(z, t)$). Вопросы о физическом смысле введенной величины и ее роли в наблюдаемой эволюции импульса при его распространении требуют отдельного изучения.

Для ответа на эти вопросы получим приближенное аналитическое решение уравнения (4), описывающее распространение пробного импульса в среде, вращательная динамика которой обусловлена воздействием заданного импульса накачки. Пренебрегая при распространении поперечными эффектами и рассматривая лазерные импульсы с линейной поляризацией, воспользуемся аналогом уравнения медленно меняющихся амплитуд [6], а именно: будем искать решение волнового уравнения в виде $E(z, t) = \varepsilon(z, t) \times \exp\{i[k(z, t)z - \omega t]\}$, где волновое число $k(z, t)$ может зависеть и от координаты вдоль оси распространения, и от времени, а огибающая $\varepsilon(z, t)$ слабо изменяется за один цикл центральной частоты импульса.

При подстановке данного разложения в волновое уравнение (2) некоторыми возникающими слагаемыми можно пренебречь. Во-первых, выделение быстро осциллирующей части в выражении для напряженности электрического поля лазерного импульса обеспечивает малость вторых производных огибающей как по временной, так и по пространственной координате. Во-вторых, в уравнении присутствуют члены с порядком малости, определяемым непосредственно функцией $A(z, t) = N\Delta\alpha\langle \Phi_1 | \cos^2 \theta | \Phi_1 \rangle$. Действительно, порядок величины $A(z, t)$ при типичных для газовых сред концентрациях и характеристиках молекулы H_2^+ можно оценить как $10^{-4} - 10^{-5} \ll 1$. В результате выражение для «показателя преломления» также можно

приближенно записать в виде $n(z, t) \simeq 1 + 2\pi A(z, t)$, что иллюстрирует малость его изменения. В-третьих, как уже было отмечено, изменение $A(z, t)$ во времени описывается временной зависимостью функции $\langle \Phi_1 | \cos^2 \theta | \Phi_1 \rangle$, а максимальная частота ее изменения непосредственно связана с количеством возбужденных импульсом накачки вращательных состояний. С учетом разницы между характерной вращательной энергией и энергией кванта на центральной частоте излучения титан-сапфирового лазера ($B/(\hbar\omega_{\text{las}}) \propto 10^{-2}$) можно говорить о том, что функция $A(z, t)$ также является медленно меняющейся за один цикл лазерного поля, если максимальный номер заселенного вращательного состояния не превышает десяти. При этом для тяжелых молекул данное ограничение является гораздо более мягким, чем в рассмотренном случае. Сказанное позволяет упростить волновое уравнение путем отбрасывания слагаемых, пропорциональных A^2 , высшим порядкам частных производных медленно меняющихся функций, а также их произведениям (учитывая, что $\partial A/\partial t > \partial \varepsilon_0/\partial t$).

Естественно записать уравнение для медленно меняющихся амплитуд в бегущих координатах. При этом логично предположить $k(z, t) = \omega n(z, t)/c$, что должно выполняться при непрерывном переходе от случая слабой зависимости $A(z, t)$ от координат и времени к случаю линейной среды. Тогда бегущие координаты будут определяться выражениями

$$\xi = z, \quad \tau = t - zn/c. \quad (5)$$

До сих пор мы не обсуждали вид зависимости функции $A(z, t)$ от пространственной координаты. Рассмотрим ситуацию, когда фемтосекундный импульс накачки распространяется по невозбужденной молекулярной среде, которая за счет инерционности процесса выстраивания молекул не успевает существенно изменить его первоначальную структуру. В этом случае можно считать, что все влияние среды на импульс накачки сводится к влиянию на скорость его распространения. Для импульса накачки среда оказывается линейной, а показатель преломления n_0 может быть получен из выражения для $n(z, t)$ путем замены среднего значения квадрата косинуса угла выстраивания θ величиной $1/3$, что соответствует неориентированному состоянию молекулярной среды. В разных точках среды такой импульс накачки будет обеспечивать одинаковые зависимости функции A от времени, а пространственная зависимость сведется к эффекту задержки, т. е. $A(z, t) = A(t - zn_0/c)$. При этом с точностью до членов порядка A^2 можно записать $A(z, t) \simeq A(t - zn/c)$, т. к. величина $n - n_0 \simeq 2\pi A - \text{const} \sim A$.

Учитывая описанные параметры малости, перейдем к бегущим координатам и оставим только слагаемые низших порядков малости. Тогда волновое уравнение примет вид

$$2ik(\tau) \frac{\partial \varepsilon}{\partial \xi} = \left(-2i \frac{k}{c} \frac{\partial n}{\partial \tau} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 A}{\partial \tau^2} \right) \varepsilon. \quad (6)$$

Уравнение (6), где $A(\tau)$ и $n(\tau)$ суть функции только переменной τ , имеет ограниченную по глубине распространения лазерного импульса область применимости, т. к. в процессе его получения были отброшены, в том числе, слагаемые, растущие пропорционально различным степеням z . Последнее слагаемое, пропорциональное второй

производной $A(\tau)$, было специально оставлено в уравнении, т. к., с одной стороны, это самое большое по величине слагаемое из тех, что задают действительную часть правой части уравнения при малых глубинах проникновения в среду, а с другой – именно оно может быть значительным в случае заселения большого числа вращательных состояний легких молекул, когда динамика величины $\langle \Phi_1 | \cos^2 \theta | \Phi_1 \rangle$ протекает быстро.

Правая часть уравнения (6) не зависит от переменной ξ , поэтому нетрудно записать его решение, являющееся приближенным аналитическим решением исходной задачи:

$$E(z, t) = \varepsilon_0(\tau) \exp(-i\omega\tau) \exp \left[-\xi \frac{1}{c} \frac{\partial n(\tau)}{\partial \tau} - i \frac{2\pi}{kc^2} \frac{\partial^2 A}{\partial \tau^2} \right], \quad (7)$$

где $\varepsilon_0(\tau)$ – начальная огибающая лазерного импульса. Для получения напряженности электрического поля необходимо взять действительную часть решения (7). Данное решение описывает несколько эффектов, связанных с влиянием пространственно-временной динамики «показателя преломления» среды на процесс распространения лазерного импульса. Во-первых, решение предсказывает замедление всего импульса в среде, связанное с движением огибающей импульса $\varepsilon_0(\tau)$ с определенной «групповой скоростью». «Групповая скорость» при этом может определяться как скорость движения переднего фронта или максимума импульса. Во-вторых, решение (7) характеризует фазовую скорость $v_{\text{ph}} = c/n(\tau)$ (второй сомножитель в (7)) и ее зависимость от пространственной и временной координат через зависимость от τ . Чем больше выстроены молекулы, тем больше замедляются соответствующие части лазерного импульса, и наоборот – выстраивание молекул «против» поля приводит к убыстрению спектральных компонент. Модуляция фазовой скорости обуславливает генерацию более высоких и более низких частот за счет того, что $\partial v_{\text{ph}}/\partial \tau \propto -\partial n/\partial \tau$, причем знак $\partial n/\partial \tau$ определяется временной зависимостью величины $\langle \cos^2 \theta \rangle$ (а конкретно, ее производной по времени) в течение действия лазерного импульса.

В-третьих, аналитическое решение предсказывает наличие еще одного важного эффекта, влияющего на эволюцию лазерного импульса, а именно процесса модулированного поглощения энергии импульса средой, который вызывает перераспределение вкладов различных частотных компонент и определяет форму пространственно-временного профиля лазерного импульса. При возбуждении большого числа вращательных состояний необходимо также учитывать быструю динамику величины $\langle \cos^2 \theta \rangle$, которая может в этом случае давать поправку к значению $n(\tau)$ в моменты эффективного выстраивания молекул. Таким образом, эволюция импульса в среде в основном определяется зависимостью $n(\tau)$, и путем подбора задержки пробного импульса относительно импульса накачки оказывается возможным создание специфического режима распространения пробного импульса, энергия и спектр которого будут изменяться контролируемым образом.

На рис.2 приведены результаты численного расчета изменения временного профиля и спектра пробного импульса длительностью 30 оптических циклов с пиковой интенсивностью $I = 10^{10}$ Вт/см², распространяющегося в молекулярной среде, возбужденной импульсом с $I = 6 \times 10^{12}$ Вт/см² (эволюция выстраивания молекул под действием импульса накачки представлена на рис.1,а), а также аналитическое решение (7). При сравнительно небольшой длитель-

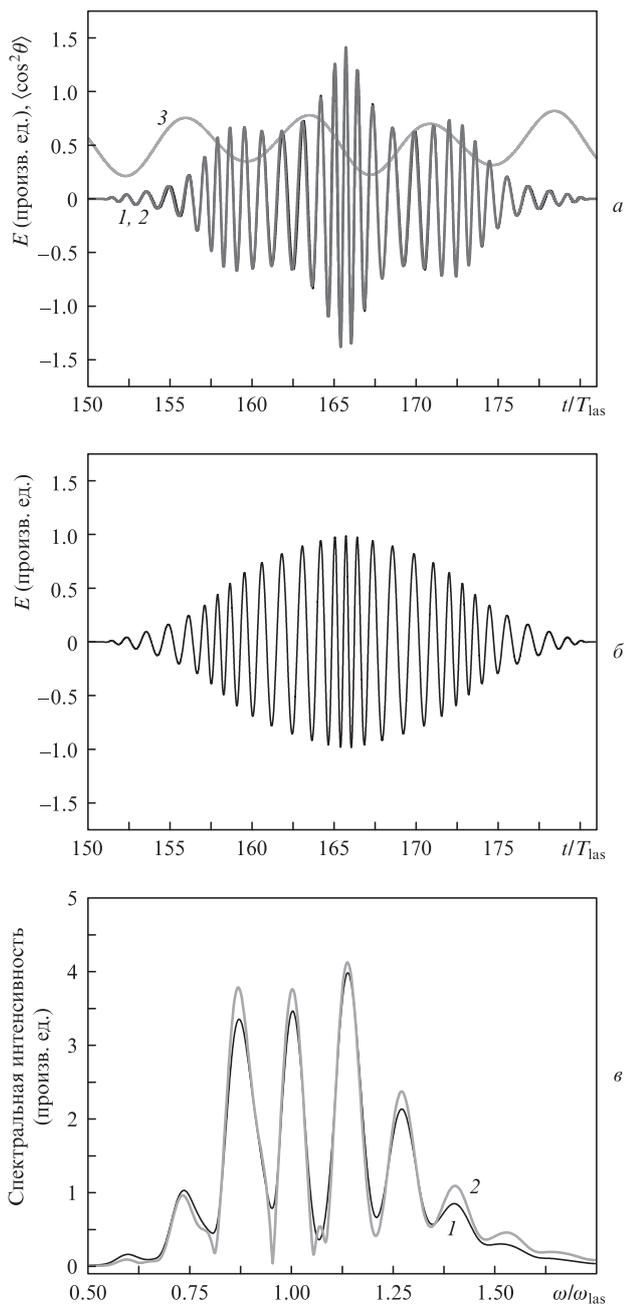


Рис.2. Временные профили пробного лазерного импульса длительностью 30 оптических циклов при глубине проникновения $150\lambda_{\text{las}}$, полученные при точном численном решении (1) и аналитическом решении (7) (2), и профиль величины $\langle \cos^2\theta \rangle$ (3) (а), аналитическое решение без учета поглощения (б), а также спектры лазерного импульса при той же глубине проникновения, полученные при точном численном (1) и аналитическом (2) решениях (в).

ности пробного импульса (~75 фс) данный случай является случаем «длинного» импульса в том смысле, что за время действия лазерного импульса молекулы переориентируются несколько раз. В результате разные части импульса «чувствуют» различные значения «показателя преломления», что приводит к сильной модуляции структуры импульса. На рис.2,а показаны зависимости напряженности электрического поля лазерного импульса от времени (точное численное и аналитическое решения) при глубине проникновения $150\lambda_{\text{las}}$ ($\lambda_{\text{las}} = 2\pi c/\omega_{\text{las}}$), а также профиль величины $\langle \cos^2\theta \rangle$, характеризующей заданную импульсом накачки динамику выстраивания молекул. Полученные ре-

зультаты демонстрируют превосходное согласие (практически точное совпадение) аналитического приближения (7) с точным решением задачи. Таким образом, при рассматриваемых глубинах проникновения аналитическое решение верно описывает основные механизмы, отвечающие за распространение лазерного импульса.

Основной вклад в изменение частоты лазерного излучения при его распространении вносит величина

$$\frac{\partial(\omega\tau)}{\partial t} - \omega = -z \frac{\partial k(z,t)}{\partial t} \propto -\frac{\partial n(z,t)}{\partial t},$$

характеризующая производную фазы импульса по времени (второй множитель в решении (7)). При этом, как было отмечено ранее, направление уширения спектра зависит от знака производной $\partial n(z,t)/\partial t$: более высокие частоты возникают в интервалах времени, когда производная $\partial \langle \cos^2\theta \rangle / \partial t < 0$, и наоборот. На рис.2,а видны корреляции между знаком производной среднего значения квадрата косинуса угла выстраивания молекул и увеличением/уменьшением частоты лазерного излучения, что соответствует аналитическому решению.

Кроме того, несмотря на кажущуюся малость, множитель $\exp[-\xi c^{-1} \partial n(\tau)/\partial \tau]$ также вносит весомый вклад в изменение профиля лазерного импульса, описывая перераспределение энергии внутри импульса и задавая дополнительную временную модуляцию. Аналитическое решение, полученное отбрасыванием указанного экспоненциального множителя, приведено на рис.2,б и демонстрирует его недостаточность по сравнению с точным решением. Следовательно, влияние зависящего от времени «показателя преломления» на процесс распространения пробного импульса не сводится только к изменению фазовой скорости частотных компонент импульса. Существенным эффектом здесь оказывается также модулированное поглощение, связь которого с производной «показателя преломления» также хорошо отражается на форме огибающей импульса, представленной на рис.2,а. В результате фактор $n(z,t)$ имеет более широкий физический смысл, чем просто показатель преломления среды в его традиционном понимании.

Аналитическое решение верно описывает также и динамику спектра импульса (рис.2,в): уширение в данном случае происходит как в сторону низких, так и в сторону высоких частот. При этом специфическая форма результирующего спектра обусловлена тем, что одинаковые частоты генерируются в различных частях лазерного импульса (см. рис.2,а), в результате чего имеет место интерференционная изрезанность спектра. Пренебрежение поглощением при рассмотрении эволюции спектра приводит к заниженным оценкам спектра в области высоких частот за счет пренебрежения связью между поглощением и изменением частоты. При этом уширение спектра слабо зависит от задержки между пробным импульсом и импульсом накачки, т. к. «длинные» импульсы испытывают несколько колебаний величины $\langle \cos^2\theta \rangle$, и суммарный эффект фактически не зависит от начальной фазы. Но наличие модулированного поглощения может приводить к тому, что временные профили таких импульсов будут достаточно сильно различаться.

Более интересным является случай «коротких» импульсов, когда можно добиться влияния на эволюцию импульса всего одного выбранного максимума величины $\langle \cos^2\theta \rangle$. В этом случае при определенных значениях задержки в течение всего импульса знак производной функ-

ции $n(z, t)$ может оставаться постоянным, обеспечивая уширение спектра только в одну сторону (высоких или низких частот). При этом фазовая скорость будет изменяться монотонно на протяжении импульса, что приведет к возникновению монотонно chirпированного импульса (аналогичный эффект был описан в [16, 17] для импульсов большой (пикосекундной) длительности в случае медленной молекулярной динамики тяжелых молекул).

Вследствие такого уширения спектра chirпированность лазерного импульса допускает простую реализацию процедуры последующей его компрессии. На рис.3 приведены результаты численных расчетов для случая распространения короткого импульса длительностью пять оптических циклов при тех же условиях возбуждения молекулярной среды и различных задержках пробного импульса относительно импульса накачки. Результаты точного численного расчета подтверждают приведенные рассуждения. Так, при задержке $\delta t = 6.5 T_{\text{las}}$ ($T_{\text{las}} = 2\pi/\omega_{\text{las}}$) (рис.3,а, в) пробный импульс преимущественно приходится на возрастающий участок величины $n(z, t)$, что соответствует уменьшению фазовой скорости к хвосту импульса. Поэтому задний фронт импульса вытягивается, увеличивая длительность импульса, а спектр уширяется в основном в сторону низких частот. Когда задержка соответствует противоположной фазе величины $\langle \cos^2\theta \rangle$, наблюдается обратный эффект (рис.3,б, г, задержка $\delta t = 32.5 T_{\text{las}}$): частота импульса возрастает к хвосту, а его спектр смещается в коротковолновую область. Таким образом, подбором задержки между импульсом накачки и пробным импульсом можно управлять направлением уширения спектра проб-

ного импульса, а также знаком chirпирования. Кроме того, важной является и сама величина $\langle \cos^2\theta \rangle$. В случае больших параметров выстраивания молекул в течение пробного импульса «групповая скорость» импульса оказывается меньше. В результате на рис.3,б имеет место заметное отставание импульса от такового, распространяющегося в неориентированной среде, в отличие от рис.3,а, на котором замедления не наблюдается. Отметим также, что аналитическое решение и в случае «коротких» импульсов правильно предсказывает их эволюцию, однако точное совпадение с численным решением (при рассматриваемых глубинах распространения) имеет место только при $\delta t = 6.5 T_{\text{las}}$. Причины этого обсуждаются ниже.

Отдельный интерес представляет собой оптимизация процедуры уширения спектра за счет специального выбора задержки между импульсом накачки и пробным импульсом. При этом подобная задача имеет смысл только для случая «коротких» импульсов, длительность которых позволяет им испытать влияние единственной осцилляции профиля $\langle \cos^2\theta \rangle$. Аналитическое решение (7) предсказывает, что максимального уширения спектра можно добиться, расположив пробный импульс в области монотонности функции $n(z, t)$. В этом случае смещение спектра импульса будет происходить в одну сторону. Таким образом, для рассмотренного возбуждающего импульса, увеличив задержку пробного импульса длительностью пять циклов поля до $\delta t = 34.4 T_{\text{las}}$, следует ожидать роста эффективности получения высокочастотных компонент на выходе среды.

На рис.4,а проиллюстрировано сказанное: увеличение межимпульсной задержки до $\delta t = 34.4 T_{\text{las}}$ приводит к

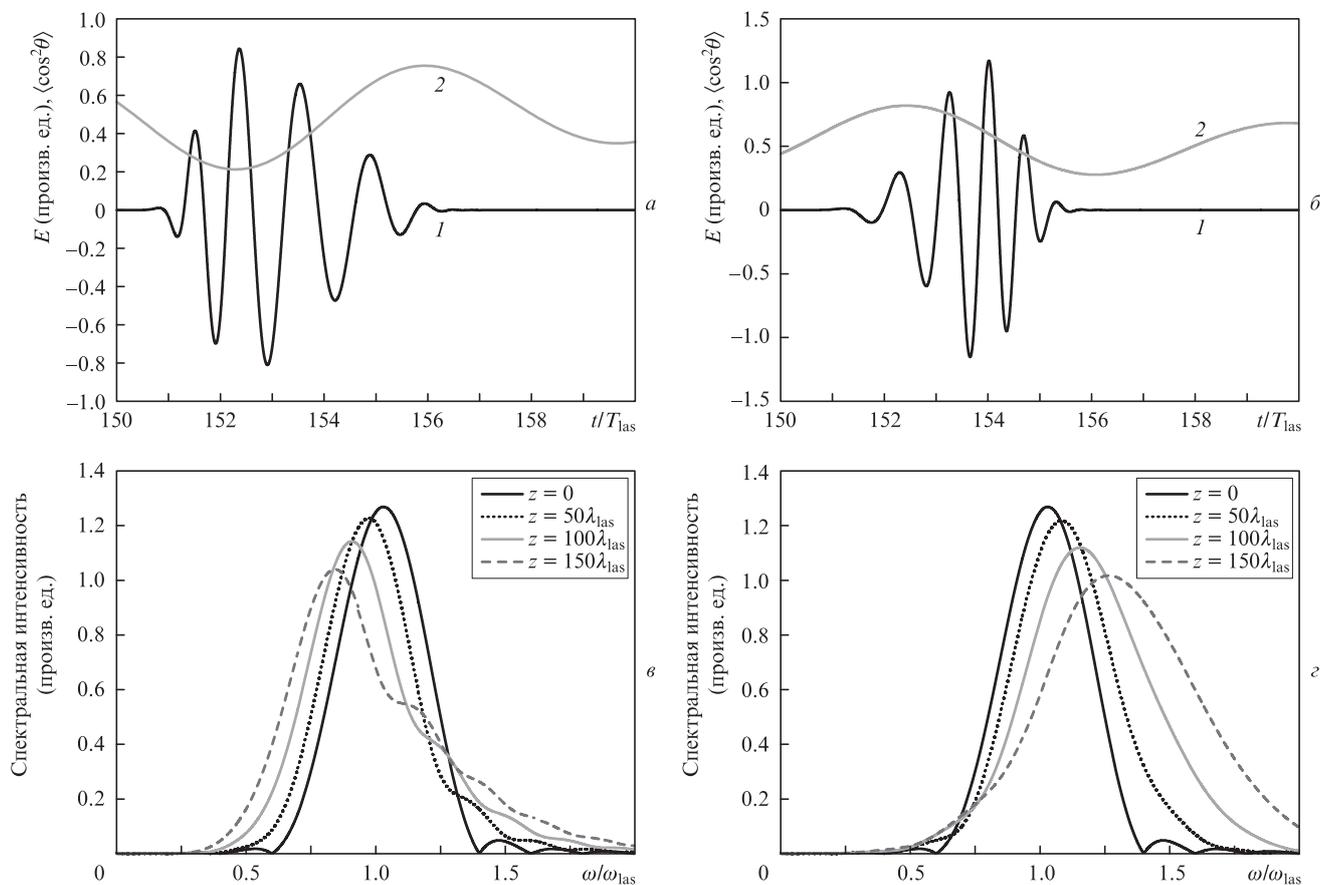


Рис.3. Временные профили (1) пробного лазерного импульса длительностью пять оптических циклов при глубине распространения $150\lambda_{\text{las}}$ и профиль величины $\langle \cos^2\theta \rangle$ (2) (а, б), а также эволюция спектра импульса (в, г) с увеличением глубины распространения z при задержках пробного импульса относительно импульса накачки $\delta t = 6.5 T_{\text{las}}$ (а, в) и $32.5 T_{\text{las}}$ (б, г).

тому, что лазерный импульс целиком захватывает область, в которой производная $n(z, t)$ отрицательна, причем максимуму импульса соответствует большее значение производной, чем при задержке $\delta t = 32.5T_{las}$. На рис.4,б приведены рассчитанные с помощью аналитической формулы спектры пробного импульса при глубине проникновения $150\lambda_{las}$ для двух указанных значений задержки пробного импульса. Однако точное решение в данном случае существенно отличается от результатов расчета по аналитической формуле. Из точного численного решения (рис.4,в) видно, что результирующие спектры в двух случаях различаются незначительно. Таким

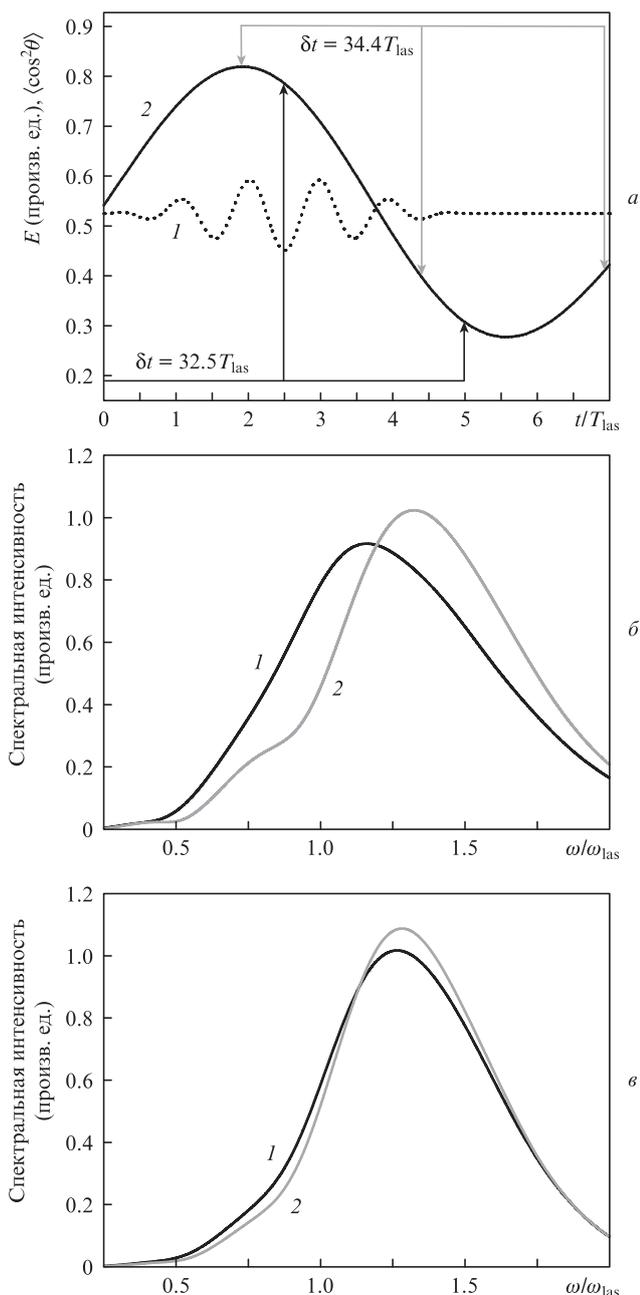


Рис.4. Иллюстрация расположения импульса (1) относительно временного профиля $\langle \cos^2\theta \rangle$ (2) при двух задержках пробного импульса относительно импульса накачки (стрелки показывают положение начала, максимума и конца импульса) (а) и спектры пробного лазерного импульса длительностью пять оптических циклов при глубине проникновения $150\lambda_{las}$ для $\delta t = 32.5T_{las}$ (1) и $34.4T_{las}$ (2), полученные при аналитическом (б) и точном численном (в) решении.

образом, имеется расхождение результатов точного и аналитического решения при $\delta t = 32.5T_{las}$.

Это связано с тем, что аналитическое приближенное уравнение (6) было получено в предположении, что во всех точках среды пробный импульс испытывает влияние одной и той же функции $A(\tau)$ (правая часть уравнения не зависит от переменной ξ). В действительности применимость подобного допущения ограничена. Как мы видели раньше, распространение лазерного импульса может характеризоваться значительным уменьшением групповой скорости по сравнению со скоростью импульса накачки за счет «попадания» пробного импульса в максимум «показателя преломления» (см. рис.3,б). В результате с увеличением глубины проникновения пробный импульс «дрейфует» относительно временного профиля $n(\tau)$, и существенной оказывается именно пространственно-временная зависимость $n(z, t)$, т.к. импульс в разных точках среды «встречает» различные фазы «показателя преломления». Захват лазерного импульса и привязка его к временной зависимости $n(\tau)$ возможны только вблизи ее минимума (именно этот случай иллюстрирует рис.3,а), что соответствует движению пробного сигнала со скоростью импульса накачки. Полученное аналитическое решение верно описывает замедление переднего фронта импульса, но при этом не может описать эффект, связанный с «дрейфом» импульса к минимуму величины $\langle \cos^2\theta \rangle$, характеризующемуся слабой степенью выстроенности молекул. Данный эффект проявляется при уширении спектра в коротковолновую область и демонстрирует необходимость получения точного численного решения задачи в случае «коротких» лазерных импульсов.

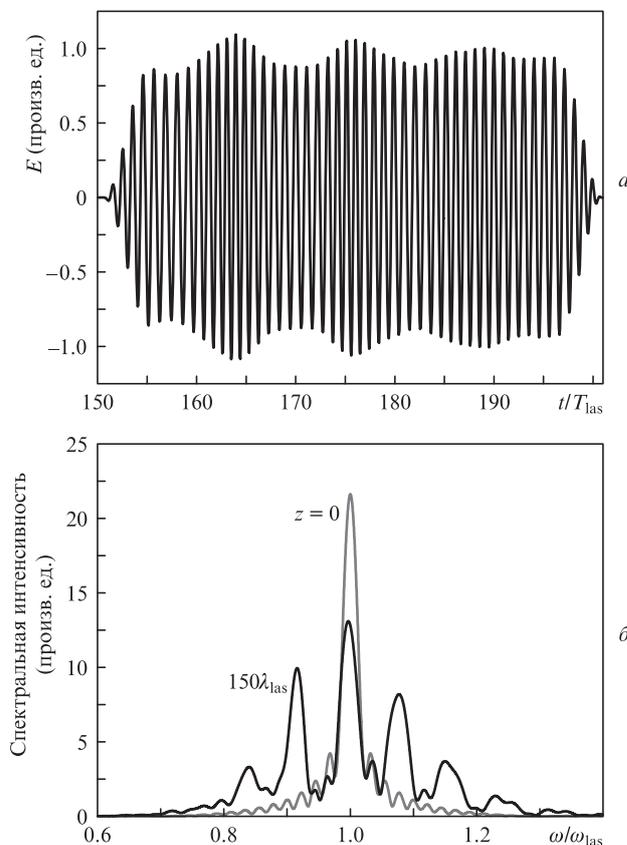


Рис.5. Временной профиль лазерного импульса длительностью 50 оптических циклов с пиковой интенсивностью $I = 3 \times 10^{12}$ Вт/см² (а) и спектры этого импульса при его распространении в молекулярной среде на глубину проникновения $z = 150\lambda_{las}$ и на входе в среду ($z = 0$) (б).

Использование точного решения необходимо также при рассмотрении задачи о самовоздействии импульса в процессе его распространения. При исследовании самовоздействия «расцепить» пространственно-временную эволюцию профиля лазерного импульса и динамику среды не представляется возможным, поэтому получение аналитического приближения затруднительно. На рис.5 приведены результаты точного численного решения самосогласованной задачи для импульса длительностью 50 оптических циклов с пиковой интенсивностью $I = 3 \times 10^{12}$ Вт/см²: волновое уравнение, описывающее трансформацию лазерного импульса, и система уравнений Шредингера, задающих динамику квантового состояния молекул среды, решались совместно. Видно, что в процессе самовоздействия проявляют себя уже описанные эффекты: временной профиль импульса испытывает сильные деформации (рис.5,а), а его спектр существенно уширяется (рис.5,б). При этом имеет место сильная модуляция результирующего спектра с появлением целого набора новых доминирующих частот.

4. Заключение

В данной работе детально исследован процесс распространения коротких лазерных импульсов в молекулярной среде, характеризующейся ориентационной нелинейностью. Получено численное решение самосогласованной системы, состоящей из волнового уравнения, характеризующего пространственно-временную эволюцию импульса, и уравнения Шредингера, описывающего динамику вращательного состояния молекул среды. Разработанный подход позволяет корректно подойти к описанию эволюции квантового состояния молекул среды и вычислению поляризационного отклика из первых принципов, выходя за рамки приближенных феноменологических представлений.

Проанализирована эволюция временного профиля и спектра пробного импульса, распространяющегося в первоначально возбужденной импульсом накачки молекулярной среде. Подобная схема перспективна с точки зрения контролируемого уширения спектра пробного импульса и широких возможностей для оптимизации этого процесса. Найдено приближенное аналитическое решение данной задачи, которое верно описывает основные особенности распространения пробного импульса, а также позволяет понять физические механизмы наблюдаемых эффектов и раскрывает ограниченность их описания

с использованием феноменологически введенного показателя преломления среды. Для «коротких» пробных импульсов при точном решении обнаружена возможность контролируемого направленного уширения спектра импульса, сопровождающегося приобретением импульсом определенного чирпа, что представляет большой интерес с точки зрения получения самосжимающихся импульсов. Кроме того, обнаружен эффект «дрейфа» лазерного импульса относительно профиля зависящего от времени показателя преломления среды в область с меньшей степенью выстроенности молекул, что может приводить к тенденции самоделения для импульсов большой длительности. Все обнаруженные эффекты еще больше проявляются при распространении одиночного импульса в условиях взаимовлияния импульса и среды.

Настоящая работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 12-02-31793 мол_а и 12-02-00064).

1. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Квантовая механика (нерелятивистская теория)* (М.: Наука, 1974).
2. Stapelfeldt H., Seideman T. *Rev. Mod. Phys.*, **75**, 543 (2003).
3. Popov A.M., Tikhonova O.V., Volkova E.A. *Laser Phys.*, **13**, 1069 (2003).
4. Келих С. *Молекулярная нелинейная оптика* (М.: Наука, 1981).
5. Делоне Н.Б., Крайнов В.П., Сухарев М.А. *Труды ИОФ РАН*, **57**, 27 (2000).
6. Ахманов С.А., Никитин С.Ю. *Физическая оптика* (М.: изд-во МГУ, 1998).
7. Ильинский Ю.А., Келдыш Л.В. *Взаимодействие электромагнитного излучения с веществом* (М.: изд-во МГУ, 1989).
8. Oleinikov P.A., Platonenko V.T. *Laser Phys.*, **3**, 618 (1992).
9. Волкова Е.А., Попов А.М., Тихонова О.В. *Квантовая электроника*, **34**, 216 (2004).
10. Friedrich B., Herschbach D. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 4623 (1995).
11. Андрюшин А.И., Федоров М.В. *ЖЭТФ*, **116**, 1551 (1999).
12. Seideman T. *J. Chem. Phys.*, **115**, 5965 (2001).
13. Ellert Ch., Corkum P.B. *Phys. Rev. A*, **59**, 3170 (1999).
14. Larsen J.J., Hald K., Bjerre N., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 2470 (2000).
15. Tsubouchi M., Whitaker B.J., Wang L., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 4500 (2001).
16. Kalosha V., Spanner M., Herrmann J., Ivanov M. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 103901 (2002).
17. Bartels R.A., Weinacht T.C., Wagner N., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 013903 (2002).
18. Mendez C.R., Vazquez de Aldana J.R., Plaja L., et al. *Laser Phys. Lett.*, **1**, 25 (2004).
19. Gulyaev A.V., Tikhonova O.V. *Laser Phys.*, **20**, 1051 (2010).
20. Мак-Кракен Д., Дорн У. *Численные методы и программирование на фортране* (М.: Мир, 1997).