

# Нелинейный отклик молекулярной газовой среды, обусловленный ориентационными эффектами в поле интенсивного фемтосекундного лазерного импульса

Е.А.Волкова, А.М.Попов, О.В.Тихонова

*Методом прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера исследуется процесс возникновения ориентационной анизотропии молекулярной газовой среды при распространении в ней мощного фемтосекундного лазерного импульса. Рассчитан вклад исследуемой анизотропии в нелинейную поляризацию газовой среды. Показано, что возникающая ориентационная нелинейность, обусловленная эффективным выстраиванием молекул вдоль лазерного поля, сопровождается существенным перезаселением вращательных подуровней молекулы и не может быть описана в рамках теории возмущений. Обнаружено, что указанная нелинейность характеризуется различной степенью инерционности в зависимости от напряженности лазерного поля.*

**Ключевые слова:** фемтосекундные импульсы, вращательная динамика молекул, самофокусировка излучения, ориентационная нелинейность.

## 1. Введение

С появлением лазеров, позволяющих получать импульсы генерации фемтосекундной длительности и тераваттной мощности, исследование различных ранее известных нелинейно-оптических явлений приобретает новый физический интерес. Обычно количественное описание эффектов нелинейной оптики основано на разложении в ряд по амплитуде поля  $E$  различных феноменологических характеристик среды, например таких, как поляризация  $P$ . Функционал  $P(E)$  при разложении в ряд помимо линейного содержит еще квадратичное и кубичное по полю слагаемые и слагаемые высших порядков, характеризующиеся нелинейными восприимчивостями соответствующих порядков [1, 2]. Отметим, что применимость указанного подхода ограничена областью не слишком сильных полей. Однако появление лазерных источников большой мощности приводит к необходимости учета влияния именно сильного лазерного поля на различные характеристики среды. В этих условиях теория возмущений уже оказывается неприменимой, а разложение по степеням поля – некорректным. Одним из возможных способов рассмотрения нелинейных свойств среды за рамками теории возмущений является прямой квантовомеханический расчет нелинейной поляризации, основанный на численном интегрировании нестационарного уравнения Шредингера, и дальнейшее совместное решение нестационарного уравнения Шредингера и уравнений Максвелла, описывающих распространение лазерного излучения в среде.

Одним из наиболее интересных проявлений взаимо-

действия коротких мощных лазерных импульсов с молекулярной средой является обнаружение эффективной вращательной динамики молекул в условиях, когда такие процессы, как ионизация и диссоциация, оказываются несущественными. Возникающая ситуация находится в сильном противоречии с общеизвестным устоявшимся взглядом на электронную и колебательно-вращательную динамику молекул, в соответствии с которым молекулярные вращения являются самым медленным процессом и наблюдаются лишь при пико- и наносекундной длительности импульса [3]. Традиционная временная иерархия движений различных подсистем молекулы соответствует достаточно длинным пико- или наносекундным импульсам с большой длительностью включения. Специфика ультракоротких лазерных импульсов заключается в резком включении, которое приводит к существенному заселению большого числа вращательных подуровней, к эффективной вращательной динамике молекул и, как следствие, к ориентации оси молекулы в некотором направлении. Отметим, что эта проблема широко обсуждается в литературе, и процесс выстраивания в лазерном поле неоднократно исследовался как экспериментально, так и теоретически [4, 5].

Если такой режим реализуется в условиях подавления процессов ионизации и диссоциации (например, при выборе энергии кванта поля), то нелинейные свойства среды обуславливаются, в первую очередь, не электронным вкладом в высокочастотный эффект Керра, а ориентационной анизотропией молекул [6, 7]. Известно, что нелинейность керровского типа может приводить к явлению самофокусировки [1, 2], что неоднократно исследовалось в литературе (см. обзоры [8, 9] и ссылки в них).

В условиях сильного поля возникающая ориентационная нелинейность не может быть рассмотрена в рамках теории возмущений. Кроме того, обычно предполагается, что керровская нелинейность представляет собой безынерционный отклик среды, в то время как ориентационные эффекты имеют специфику, связанную с инер-

Е.А.Волкова, А.М.Попов, О.В.Тихонова. НИИ ядерной физики им. Д.В.Скобельцына при МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы

ционностью вращательных степеней свободы молекул, которая оказывается в существенной зависимости от напряженности лазерного поля. Поэтому возникает необходимость отказа от традиционно используемого построения модели среды.

Одним из подходов, который может быть использован для описания ориентационной керровской нелинейности молекулярной среды, является анализ квантовой динамики молекул в присутствии внешнего лазерного поля. В общем случае этот анализ должен быть проведен в рамках уравнения Неймана для матрицы плотности [10, 11]. Однако для молекулярной газовой среды в условиях ультракоротких лазерных импульсов длительностью  $\tau_p \approx 10 - 100$  фс характерное время столкновений атомов или молекул в газе при атмосферном давлении может быть оценено как  $T_c \approx 1/N\sigma v$ , где  $N \cong 10^{19} \text{ см}^{-3}$  – концентрация частиц,  $\sigma \cong 10^{-15} \text{ см}^2$  – сечение столкновения, а скорость теплового движения  $v$  составляет не более  $3 \times 10^5 \text{ см/с}$  даже для легких молекул. В таких условиях  $T_c$  оказывается примерно равно  $10^{-9}$  с, что на много порядков превышает длительность лазерного импульса. Таким образом, в рассматриваемых условиях столкновительной релаксацией можно пренебречь. Отметим, что релаксационные процессы, связанные с воздействием вакуумного электромагнитного поля, характеризуются по порядку величины такими же временами ( $\sim 10^{-9}$  с), что приводит к возможности вообще пренебречь релаксационным членом в уравнении Неймана. Фактически это означает, что взаимодействие молекулярной среды с лазерным излучением может быть исследовано на основе решения нестационарного уравнения Шредингера для отдельной молекулы в поле электромагнитной волны, а «смешанность» состояния ансамбля молекул учтена лишь выбором начального условия, соответствующего некогерентной суперпозиции различных колебательно-вращательных состояний с вероятностями заселения, определяемыми из распределения Гиббса.

В данной работе методом прямого численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера исследуется ориентационная анизотропия молекулярной газовой среды, возникающая в результате динамического выстраивания молекул в сильном лазерном поле ультракороткой длительности.

## 2. Численная модель

Согласно квантовомеханическому рассмотрению взаимодействие отдельной молекулы с лазерным полем излучения описывается нестационарным уравнением Шредингера

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \hat{H} \Psi \quad (1)$$

с гамильтонианом

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{T}_N + \frac{e^2}{R} - \mathbf{d} \cdot \mathbf{E},$$

где  $\hat{H}_e$  – гамильтониан электронной подсистемы молекулы;  $\hat{T}_N$  – оператор кинетической энергии ядер в системе центра масс молекулы;  $\mathbf{d}$  – оператор дипольного момента молекулы в системе центра масс, который в случае гомоядерной молекулы сводится к дипольному моменту только электронной подсистемы;  $R$  – межъядерное

расстояние в молекуле;  $\mathbf{E}$  – напряженность лазерного поля.

В рамках приближения Борна – Оппенгеймера решение уравнения (1) представимо в виде разложения по собственным функциям стационарной электронной задачи  $\varphi_i(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ :

$$\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}, t) = \sum_i \Phi_i(\mathbf{R}, t) \varphi_i(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \quad (2)$$

с коэффициентами разложения, характеризующими зависящие от времени ядерные части волновой функции различных электронных термов. В данной работе аналогично [12] в качестве модельной системы была выбрана двумерная (плоская) молекула, рассмотренная в одноэлектронном приближении. Выбор плоской геометрии диктовался необходимостью отдельного исследования электронной динамики системы с целью выявления диапазона лазерных параметров, при которых ионизация и диссоциация молекулы оказываются несущественными. Специальная серия расчетов, проведенных с целью исследования вероятностей ионизации молекулярной системы а также возбуждения различных электронных состояний молекулы, показала, что для выбранной частоты лазерного поля, соответствующей энергии кванта  $\hbar\omega = 1.55 \text{ эВ}$  ( $\lambda = 800 \text{ нм}$ ), вплоть до интенсивностей  $3 \times 10^{14} \text{ Вт/см}^2$  можно ограничиться рассмотрением всего лишь двух нижних термов в разложении (2). В этом случае система уравнений, характеризующая ядерные части волновых функций двух нижних термов  $\Phi_{1,2}(\mathbf{R}, \theta, t)$  имеет следующий вид:

$$i\hbar \frac{\partial \Phi_1(\mathbf{R}, \theta, t)}{\partial t} = [\hat{T}_N + V_{\text{eff}}^{(1)}(\mathbf{R})] \Phi_1(\mathbf{R}, \theta, t) - eE(t)[x_{12}(\mathbf{R}) \cos \theta + y_{12}(\mathbf{R}) \sin \theta] \Phi_2(\mathbf{R}, \theta, t), \quad (3)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi_2(\mathbf{R}, \theta, t)}{\partial t} = [\hat{T}_N + V_{\text{eff}}^{(2)}(\mathbf{R})] \Phi_2(\mathbf{R}, \theta, t) - eE(t)[x_{12}(\mathbf{R}) \cos \theta + y_{12}(\mathbf{R}) \sin \theta] \Phi_1(\mathbf{R}, \theta, t),$$

где  $V_{\text{eff}}^{(1,2)}$  – эффективная потенциальная энергия взаимодействия ядер, учитывающая электронную энергию соответствующего терма;  $\theta$  – угол между направлением действия электрического поля и осью молекулы. Величины  $x_{12}$  и  $y_{12}$  представляют собой матричные элементы проекций электронного дипольного момента перехода на молекулярную ось и на перпендикулярные оси направление. С учетом симметрии волновых функций двух нижних электронных состояний исследуемой модельной молекулы перпендикулярная компонента  $y_{12} \equiv 0$ .

Отметим, что система (3), характеризующая колебательно-вращательную динамику молекулы в плоскости межъядерной оси и поляризации поля, будет иметь аналогичный вид и в трехмерном случае, а динамика системы в трехмерном и двумерном случаях оказывается качественно сходной, если только начальное состояние в трехмерной модели характеризуется изотропным распределением по азимутальному углу  $\phi$ .

Система (3) решалась численно с использованием разложения искомым ядерных функций  $\Phi_{1,2}(\mathbf{R}, \theta, t)$  по собственным функциям оператора углового момента

$$\Phi_{1,2}(R, \theta, t) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_{1,2}^{(m)}(R, t) \frac{\exp(im\theta)}{\sqrt{2\pi}}.$$

Предполагалось, что в начальный момент времени система находится на нижнем терме в нижнем колебательном состоянии и в некотором вращательном состоянии  $|v = 0, m\rangle$ .

### 3. Результаты и обсуждение

#### 3.1. Нелинейная поляризация квантовой системы

С учетом (2) решение системы (3) позволяет получить полную зависящую от времени волновую функцию молекулы. Эта функция может быть использована для расчета различных феноменологических характеристик исследуемой молекулярной среды. В частности, среднее квантовое значение поляризации  $N$  одинаковых молекул (в предположении отсутствия столкновений между ними) представляет собой сумму  $N$  одинаковых квантовых средних дипольных моментов, рассчитанных для отдельной молекулы

$$\langle \mathbf{P} \rangle = N \langle \mathbf{d} \rangle, \quad (4)$$

где  $\langle \mathbf{d} \rangle = \langle \Psi | \mathbf{d} | \Psi \rangle$  вычисляется с использованием полной волновой функции системы (2). Поскольку дипольный момент ядерной подсистемы гомоядерной молекулы в системе центра масс равен нулю, в приближении двух термов для проекции поляризации на направление поля имеем

$$\begin{aligned} \langle P(t) \rangle_E &= N \int |\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}, t)|^2 e r \cos(\mathbf{E} \mathbf{r}) d^2 r d^2 R \\ &= 2Ne \operatorname{Re} \langle \Phi_2(\mathbf{R}, t) | x_{12}(R) \cos \theta | \Phi_1(\mathbf{R}, t) \rangle. \end{aligned} \quad (5)$$

Полученная в (5) поляризация содержит ориентационную нелинейную часть, возникающую за счет динамического выстраивания молекул в поле волны [12], а нелинейность электронной поляризуемости не учитывается. Ниже будет показано, что в условиях большого порядка многофотонности для электронного перехода между двумя нижними термами молекулы ориентационная нелинейность оказывается доминирующей и может на несколько порядков превышать кубичную безынерционную нелинейность, определяемую электронными переходами в молекуле.

Используя (3), в условиях, когда населенность верхнего терма мала, можно показать [2], что выражение (5) принимает вид

$$\langle P(t) \rangle_E = NE(t) \langle \Phi_1(\mathbf{R}, t) | \alpha_{\parallel}(R) \cos^2 \theta | \Phi_1(\mathbf{R}, t) \rangle, \quad (6)$$

где  $\alpha_{\parallel}$  – электронная поляризуемость молекулы вдоль направления межъядерной оси, которая в модели двух термов представима как

$$\alpha_{\parallel}(R) = e^2 |x_{12}(R)|^2 \frac{2[V_{\text{eff}}^{(2)}(R) - V_{\text{eff}}^{(1)}(R)]}{[V_{\text{eff}}^{(2)}(R) - V_{\text{eff}}^{(1)}(R)]^2 - (\hbar\omega)^2}, \quad (7)$$

а усреднение проводится с учетом возможных изменений межъядерного расстояния  $R$  и угла  $\theta$  между осью моле-

кулы и направлением поляризации поля. В условиях, когда изменение межъядерного расстояния в процессе динамики молекулы невелико, поляризуемость можно приближенно считать постоянной величиной, соответствующей начальному равновесному значению  $R_0$ . Тогда поляризация оказывается пропорциональной усредненному значению  $\cos^2 \theta$

$$\langle P(t) \rangle_E = NE(t) \alpha_{\parallel}(R_0) \langle \Phi_1(R, \theta, t) | \cos^2 \theta | \Phi_1(R, \theta, t) \rangle. \quad (8)$$

Отметим, что формула (6) имеет универсальный вид и справедлива как в двумерном, так и в трехмерном случаях. Выделяя в (6) отдельно линейную и нелинейную часть поляризации, получим

$$\langle P(t) \rangle_E = NE(t) (\langle \alpha_{\parallel} \cos^2 \theta \rangle_{t=0} + \langle \alpha_{\parallel} \Delta \cos^2 \theta \rangle). \quad (9)$$

Здесь первое слагаемое в скобках отвечает за квантовое среднее значение  $\cos^2 \theta$  в отсутствие поля и для равновесного распределения молекул по всем ориентациям равно 1/2 и 1/3 в двумерном и трехмерном случаях соответственно, а второе слагаемое  $\langle \alpha_{\parallel} \Delta \cos^2 \theta \rangle = \langle \alpha_{\parallel} \cos^2 \theta \rangle - \langle \alpha_{\parallel} \cos^2 \theta \rangle_{t=0}$  описывает ориентационный эффект. Таким образом, нелинейная поляризация оказывается пропорциональной полю и фактору  $\eta(E, t) = \langle \alpha_{\parallel} \Delta \cos^2 \theta \rangle$  как функции времени и амплитуды поля волны.

#### 3.2. Распространение лазерного излучения в нелинейной среде и условие самофокусировки

Волновое уравнение, характеризующее распространение излучения в среде, имеет следующий вид:

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \langle \mathbf{P} \rangle}{\partial t^2}, \quad (10)$$

где  $\mathbf{E}$  – напряженность электрического поля волны;  $\langle \mathbf{P} \rangle$  – поляризация, возникающая в среде. Выделяя в векторе линейную  $\langle \mathbf{P}_l \rangle$  и нелинейную  $\langle \mathbf{P}_n \rangle$  части поляризации, для решения вида

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0(\rho, z, t) \exp[i(kz - \omega t)]$$

в параболическом приближении получим, что

$$\begin{aligned} \Delta_{\perp} \mathbf{E}_0 + 2ik \left( \frac{\partial \mathbf{E}_0}{\partial z} + \frac{1}{c/n} \frac{\partial \mathbf{E}_0}{\partial t} \right) \\ = \frac{4\pi}{c^2} \exp[-i(kz - \omega t)] \frac{\partial^2 \langle \mathbf{P}_n \rangle}{\partial t^2}. \end{aligned} \quad (11)$$

Здесь  $k = (\omega/c)\sqrt{\varepsilon}$ ;  $n = \sqrt{\varepsilon}$  – линейный показатель преломления;  $\varepsilon$  – диэлектрическая проницаемость. Отметим, что в газе при атмосферном давлении  $n \approx 1$ . Выделяя из (9) выражение для нелинейной поляризации

$$\langle \mathbf{P}_n \rangle_E = N\eta(E_0, t) \mathbf{E}(t) \quad (12)$$

и учитывая плавность функции  $\eta(E_0, t)$  ( $\partial\eta/\partial t \ll \omega\eta$ ), перепишем (11) в системе отсчета, связанной с лазерным импульсом\*, в виде

$$ik \frac{\partial \mathbf{E}_0}{\partial z'} = -\frac{1}{2} \Delta_{\perp} \mathbf{E}_0 - \frac{2\pi\omega^2}{c^2} N\eta(E_0, t) \mathbf{E}_0. \quad (13)$$

\*С математической точки зрения такой переход соответствует замене переменных  $(z, t) \rightarrow (z' = z + (c/n)t, t)$ .

Это уравнение по структуре аналогично нестационарному уравнению Шредингера, где вместо волновой функции  $\Psi$  выступает амплитуда поля  $E_0$ , а вместо времени  $t$  – координата  $z'$ . Первое слагаемое в правой части (13) характеризует дифракционную расходимость излучения, а второе представляет собой аналог потенциала, который оказывается зависящим от поля  $E_0$ . В случае  $\eta > 0$  нелинейность второго слагаемого может приводить к режиму самофокусировки излучения. Очевидно, самофокусировка излучения наблюдается, если фокусирующие нелинейные свойства среды доминируют над дифракционной расходимостью, т. е. при выполнении условия

$$\frac{1}{2} A_{\perp} E_0 < \frac{2\pi k^2 N \eta(E_0, t) E_0}{n^2}. \quad (14)$$

Нетрудно видеть, что оценка порога самофокусировки зависит от вида функции  $\eta(E_0, t)$ . Наиболее существенным оказывается факт зависимости  $\eta$  от времени, которая определяется инерционностью ориентационных свойств среды. В частности, пока  $\eta = 0$ , уравнение (13) не содержит никаких нелинейностей и описывает распространение излучения в линейной среде.

### 3.3. Инерционность ориентационной нелинейности среды

Как было показано выше (см. (9)), нелинейная поляризация молекулярной среды, возникающая вследствие динамического выстраивания молекул в поле волны, определяется функцией  $\eta(E_0, t) = \langle \alpha_{\parallel} \Delta \cos^2 \theta \rangle$ , если населенность всех электронных термов, кроме начально заселенного, оказывается малой. Расчеты колебательно-вращательной динамики исследуемой модельной молекулы показали, что вплоть до интенсивностей лазерного излучения  $(1 - 2) \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> межъядерное расстояние остается практически постоянным и равным равновесному  $R_0$ , в то время как вращательное движение оказывает существенное влияние на динамику молекулы [12]. В этом случае поляризуемость принимает значение, соответствующее равновесному межъядерному расстоянию  $\alpha_{\parallel} = \alpha_{\parallel}(R_0)$ , а нелинейная поляризация оказывается пропорциональной фактору  $\langle \Delta \cos^2 \theta \rangle: \langle P_n \rangle \sim \eta \sim \langle \Delta \cos^2 \theta \rangle$ .

На рис.1 представлена временная зависимость  $\langle \cos^2 \theta \rangle$ , полученная численно для импульса сглаженной

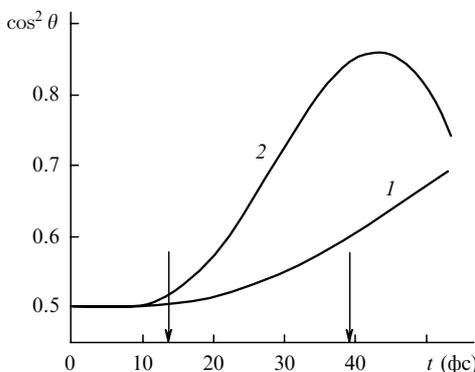


Рис.1. Зависимость квантовомеханического среднего значения  $\cos^2 \theta$  от времени для лазерного импульса с длительностями фронтов и «плато» 5 и 10 оптических циклов соответственно и интенсивностью  $P = 2 \times 10^{13}$  (1) и  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> (2). В начальный момент времени молекула находилась в нижнем колебательно-вращательном состоянии  $|v = 0, m = 0\rangle$ . Стрелками отмечены начало и конец «плато» импульса.

трапецидальной формы (длительности фронтов и «плато» составляют 5 и 10 оптических циклов соответственно) и для двух различных значений интенсивности для начального изотропного распределения молекул по углам. Возрастание величины  $\langle \cos^2 \theta \rangle$  свидетельствует о выстраивании молекул вдоль поля, что соответствует усилению фокусирующих свойств среды. Случай низких интенсивностей (кривая 1) характеризуется достаточно низкой степенью выстраивания в течение импульса. В полях с более высокой интенсивностью (кривая 2) степень выстраивания может достигать значений 0.8–0.9.

Качественно физический механизм выстраивания можно понять исходя из классического выражения для эффективной потенциальной энергии, характеризующей вращение молекулы в лазерном поле [13, 14]. Минимумы указанного эффективного потенциала как раз соответствуют углам 0 и  $\pi$  между осью молекулы и направлением распространения лазерного поля, а глубина оказывается пропорциональной лазерной интенсивности. Отметим, что выстраивание, представленное на рис.1, носит динамический характер, т. е. ориентирование вдоль поля сменяется режимом частичного перпендикулярного выстраивания, при этом время, необходимое для достижения максимального выстраивания вдоль поля, зависит от интенсивности лазерного излучения и составляет примерно 600 фс в слабых полях и около 40 фс для интенсивности  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>. Указанное время характеризует инерционность ориентационных свойств молекулярной среды и представляет собой время «срабатывания» ориентационной нелинейности в уравнении (13), т.е. на временах, заметно меньших характерного времени инерционности, нелинейность можно считать пренебрежимо малой.

Фактически порог самофокусировки (14) в этом случае позволяет оценить характерное время, начиная с которого фокусирующие свойства среды преобладают над дифракционной расходимостью пучка.

### 3.4. Порог фокусировки при адиабатически плавном включении импульса

Рассмотрим случай адиабатически плавного включения поля, приводящего к установившемуся режиму, при котором фактор  $\eta$ , характеризующий ориентационную нелинейность, принимает некоторое не зависящее от времени значение. Оно определяется напряженностью поля, а кроме того, существенным образом зависит от частоты лазерного излучения. Можно показать, что в случае достаточно низких частот (большого порядка многофотонности для электронного перехода между двумя нижними термами при равновесном межъядерном расстоянии) ориентационная нелинейность, обусловленная выстраиванием молекул вдоль поля, может существенно превосходить кубичную керровскую нелинейность, связанную с электронными переходами.

Действительно, поскольку ориентационные эффекты обусловлены эффективным заселением большого числа вращательных подуровней нижнего терма, дефект энергии не превышает в таком процессе сотых долей электронвольта. В то же время кубичная керровская электронная нелинейность, приводящая к самофокусировке, обусловлена переходом между двумя электронными состояниями. В случае низких частот такой процесс оказывается сильно нерезонансным, с дефектом энергии порядка разницы энергий электронных уровней  $\sim 10$  эВ.

Отношение нелинейных вкладов в поляризацию указанных двух процессов приблизительно равно отношению дефектов энергии, что приводит к доминирующей роли вращательной нелинейности с фактором  $\sim 10^2 - 10^3$ . Учет по теории возмущений рамановского перезаселения вращательных подуровней нижнего терма приводит к следующему аналитическому выражению для поляризации:

$$\langle P_n \rangle_E = \langle \cos^2 \theta \rangle N \alpha_{\parallel} E(t) = N \alpha_{\parallel} E(t) \left( \frac{1}{2} + \frac{\alpha_{\parallel} E_0^2}{64B} \right), \quad (15)$$

где  $B$  – вращательная постоянная молекулы.

С учетом (15) пороговое условие для процесса самофокусировки (14) приводит к оценке пороговой мощности излучения  $W = (cE_0^2/8\pi)\pi r_0^2$  ( $r_0$  – радиус лазерного пучка) в виде

$$W_{th} = \frac{Bcn^2}{k^2 N \alpha_{\parallel}^2}, \quad (16)$$

что составляет около  $10^8$  Вт для плотности молекулярной среды  $N = 10^{19}$  см $^{-3}$  и не зависит от радиуса лазерного пучка. Отметим, что полученные оценки справедливы лишь в области не слишком больших лазерных полей, для которых степень выстраивания молекул невелика.

В пределе сильного поля в установившемся режиме благодаря адиабатически плавному включению лазерного поля удается ориентировать молекулы вдоль поля и удерживать их в преимущественно выстроенном состоянии с высокой эффективностью (рис.2). Аналогичный результат был получен аналитически в [15]. В пределе сильных полей эффективность выстраивания равна единице, что обуславливает удвоение поляризации среды по сравнению с поляризацией изотропно распределенных по углу в начальный момент времени молекул. В этом случае пороговое условие для фокусировки превращается в ограничение снизу на величину минимального поперечного размера пучка ( $r \geq r_{min}$ ), который еще может быть удержан за счет фокусирующих свойств среды

$$r_{min} \approx 10\lambda. \quad (17)$$

Таким образом, в сильных полях имеет место насыщение лавинного характера процесса самофокусировки. Более высокая степень фокусировки не может быть достигнута за счет увеличения роли дифракционной расходимости

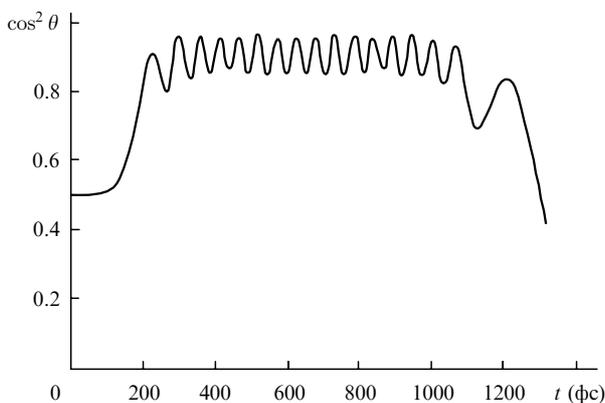


Рис.2. То же, что на рис.1 при длительности фронтов и «плато» импульса 150 и 200 оптических циклов соответственно и интенсивности  $P = 10^{14}$  Вт/см $^2$ .

пучка по сравнению с фокусирующими свойствами «потенциала».

### 3.5. Учет теплового движения молекул

Как было отмечено во Введении, в случае ультракоротких лазерных импульсов столкновениями в молекулярном газе плотностью  $N \sim 10^{19}$  см $^{-3}$  можно пренебречь, что позволяет не использовать формализм матрицы плотности. Однако наличие ненулевой температуры среды приводит к необходимости задания начального состояния системы в виде некогерентной суперпозиции различных вращательных состояний, вероятность заселения которых определяется распределением Больцмана. Это означает, что в более корректном подходе задача о динамике молекулы в поле должна быть решена отдельно для каждого начально заселенного вращательного уровня, а затем полученные вероятности и квантовые средние должны быть просуммированы с соответствующими весами. Для гомоядерной молекулы, в силу симметрии состояний относительно перемены ядер местами, на нижнем электронном терме могут быть заселены только вращательные состояния с четными номерами. Оценка максимального номера вращательного подуровня, который еще будет заселен вследствие теплового движения молекул, приводит к значению  $|m_{max}| = 6$  для комнатной температуры. Это означает, что начальное заселение всех вышележащих вращательных подуровней пренебрежимо мало и может не учитываться при усреднении результатов по некогерентному ансамблю молекул.

Проанализируем вращательную динамику молекулы в поле, первоначально находящейся на уровне с  $m = 2$ . При адиабатически плавном включении импульса в установившемся режиме оценка по теории возмущений в случае слабых полей приводит к следующему выражению:

$$\langle \cos^2 \theta \rangle = \frac{1}{2} - \frac{\alpha_{\parallel} E_0^2}{192B}. \quad (18)$$

Знак «минус» перед нелинейной частью означает, в отличие от (15), выстраивание молекул преимущественно перпендикулярно лазерной поляризации, а следовательно, и дефокусировку лазерного излучения. Таким образом, вклад состояний с  $m = 2$  в некогерентную суперпозицию приводит к уменьшению эффекта ориентации молекул и может нивелировать эффект самофокусировки.

Однако в случае прямоугольных импульсов аналитический результат, полученный в режиме теории возмущений для того же начального условия, свидетельствует о более сложном эффекте:

$$\langle \cos^2 \theta \rangle = \frac{1}{2} + \frac{\alpha_{\parallel} E_0^2}{32 \cdot 12B} \left( 1 - \cos \frac{12B}{\hbar} t \right) - \frac{\alpha_{\parallel} E_0^2}{32 \cdot 4B} \left( 1 - \cos \frac{4B}{\hbar} t \right). \quad (19)$$

В зависимости от момента времени нелинейная часть может быть как положительной, так и отрицательной. На малых временах правая часть (19) может быть разложена в ряд, что в первом порядке разложения приводит к следующему выражению:

$$\langle \cos^2 \theta \rangle = \frac{1}{2} + \frac{\alpha_{\parallel} E_0^2}{8\hbar^2} B t^2 + \dots \quad (20)$$

Заметим, что (20) в точности совпадает с разложением результата, полученным для начального состояния  $m = 0$  в случае мгновенного включения,

$$\langle \cos^2 \theta \rangle = \frac{1}{2} + \frac{\alpha_{\parallel} E_0^2}{64B} \left( 1 - \cos \frac{4B}{\hbar} t \right) \approx \frac{1}{2} + \frac{\alpha_{\parallel} E_0^2}{8\hbar^2} B t^2, \quad (21)$$

и соответствует выстраиванию молекулы вдоль поля, а следовательно, ведет к самофокусировке. Разложение (20) справедливо лишь при  $t \ll \hbar/12B \approx 30$  фс. При временах  $\sim 30$  фс в (20) нужно учитывать следующие члены разложения, в то время как (21) при этих условиях остается еще справедливым. Проведенный анализ прекрасно подтверждается результатами численных расчетов: на рис.3 представлены временные зависимости  $\langle \cos^2 \theta \rangle$ , полученные для прямоугольного импульса для двух различных начальных условий  $m = 0$  и 2. Нетрудно увидеть, что временная динамика на начальном отрезке времен  $t < 20$  фс для обоих случаев практически совпадает.

Аналогичные результаты могут быть получены и для импульса сглаженной трапециевидальной формы. На рис.4 представлена динамика  $\langle \cos^2 \theta \rangle$  в течение импульса с интенсивностью  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> и длительностью фронтов и «плато» в 5 и 10 оптических циклов соответственно для различных начальных условий ( $m = 0, 2, 4, 6$ ). Нетрудно увидеть, что дефокусирующие свойства среды имеют место лишь для начального состояния с  $m = 6$ . Суммарная величина  $\langle \cos^2 \theta \rangle$ , полученная путем усреднения парциальных вкладов с соответствующими весами ( $W_{m=0} = 0.5033$ ,  $W_{m=\pm 2} = 0.4542$ ,  $W_{m=\pm 4} = 0.0417$ ,  $W_{m=\pm 6} = 8 \times 10^{-4}$ ) представлена на том же рисунке жирной кривой и не сильно отличается от результата для  $m = 0$ .

Таким образом, учет в качестве начального условия некогерентной суперпозиции различных вращательных подуровней в случае коротких импульсов характеризуется интенсивным выстраиванием молекул вдоль поля, что соответствует режиму самофокусировки излучения. Отметим, что характерные длительности, на которых динамическая дезориентация молекул из-за теплового некогерентного заселения различных вращательных состояний не успевает проявиться, составляет 50–100 фс. Кроме того, для всех начальных состояний с  $m \neq 0$  ори-

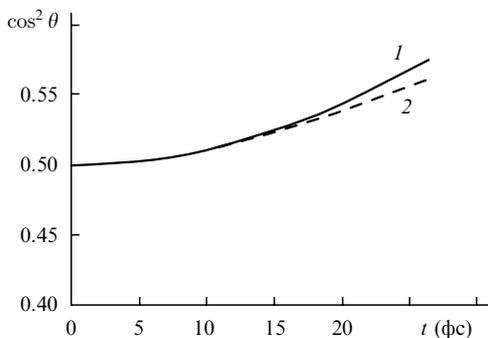


Рис.3. Зависимость квантовомеханического среднего значения  $\cos^2 \theta$  от времени для лазерного импульса прямоугольной формы длительностью 10 оптических циклов и интенсивностью  $P = 2 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>. В начальный момент времени молекула находилась в колебательно-вращательном состоянии с  $|v = 0, m = 0\rangle$  (1) и в состоянии  $|v = 0, m = 2\rangle$  (2).

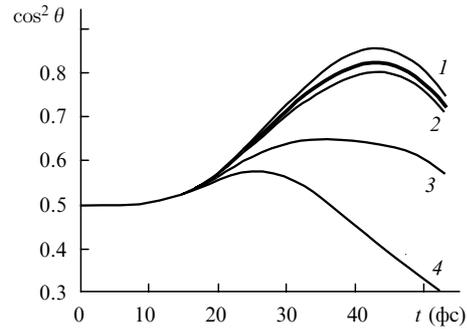


Рис.4. Зависимость квантовомеханического среднего значения  $\cos^2 \theta$  от времени, рассчитанная для различных начальных вращательных состояний молекулы:  $|m = 0\rangle$  (1),  $|m = \pm 2\rangle$  (2),  $|m = \pm 4\rangle$  (3),  $|m = \pm 6\rangle$  (4), а также суммарная величина  $\langle \cos^2 \theta \rangle$ , полученная путем некогерентного усреднения парциальных вкладов с весами, соответствующими распределению Больцмана с температурой  $T = 300$  К (жирная линия).

ентационная нелинейность ведет к самофокусировке лишь в случае импульсов с достаточно резким, неадиабатическим включением. Однако специальные расчеты показали, что адиабатически плавными можно считать лишь импульсы с характерным временем включения  $\sim 1$  пс. Большинство импульсов, использующихся в настоящее время для исследования динамики атомарных и молекулярных систем в сильных полях, характеризуется длительностью не более 100 фс. Такие ультракороткие импульсы имеют достаточно резкое включение и малую длительность, чтобы приводить к режиму самофокусировки, связанной с эффектом выстраивания молекул вдоль направления электрического поля волны.

#### 4. Заключение

Таким образом, анализ взаимодействия молекулы с интенсивным лазерным импульсом показал, что существует диапазон достаточно сильных полей, для которых имеет место эффективная вращательная динамика молекулы, сопровождающаяся пренебрежимо малой диссоциацией и ионизацией системы. В результате проведенных исследований обнаружено эффективное динамическое выстраивание недиссоциированных молекул, которое может приводить к ориентационной нелинейности и, как следствие, к режиму самофокусировки излучения в такой среде. Специфика исследуемой ориентационной анизотропии заключается в существенном перезаселении вращательных подуровней в процессе взаимодействия системы с импульсом, что соответствует режиму сильного поля и не может быть описано в рамках теории возмущений. Кроме того, обнаружено, что указанный эффект характеризуется инерционностью, степень которой существенным образом зависит от напряженности лазерного поля: характерное время возникновения в сильном поле значительной анизотропии может составлять всего несколько десятков фемтосекунд. На основе решения нестационарного уравнения Шредингера для молекулы в интенсивном лазерном импульсе рассчитан вклад динамического выстраивания молекул в нелинейную поляризацию среды, проанализированы пороговые условия возникновения режима самофокусировки. Обнаружено насыщение лавинного характера процесса самофокусировки в сильном поле. Показано, что в случае распространения ультракоротких лазерных импульсов

эффект дефокусировки, обусловленный некогерентным начальным заселением различных вращательных подуровней, не развивается за счет малой длительности импульса.

Отметим, что, хотя в расчетах была рассмотрена плоская модель молекулы, качественно все обсуждаемые эффекты будут иметь место и для трехмерных молекул. Поскольку эффект выстраивания реальных молекул фактически определяется различием продольной и поперечной компонент поляризуемостей, использование в расчетах приближения двух термов привносит только количественные различия и не уменьшает степени общности полученных выводов. Таким образом, эти результаты качественно отражают ориентационные эффекты и нелинейный отклик в лазерном поле для широкого класса молекулярных сред. Выбор более тяжелых молекул приводит к увеличению инерционности ориентационного отклика среды и, как следствие, к необходимости затягивания лазерного импульса для достижения режима самофокусировки. Для молекулярного водорода эффект самофокусировки можно ожидать в эксперименте в импульсах длительностью не менее 60 фс и интенсивностью не более  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>. В более коротких импульсах, которые в настоящее время получены экспериментально [16], ориентационная нелинейность не успевает развиваться за счет инерционных свойств среды. Ограничение, накладываемое на интенсивность, связано с эффективной ионизацией молекул и образованием плазмы, приводящей к эффекту дефокусировки излучения. Отметим, что интенсивности  $3 \times 10^{13} - 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> соответствуют режиму существенного перезаселения вращательных состояний, которое не может быть описано в

рамках теории возмущений. Указанная специфика эффекта самофокусировки может наблюдаться экспериментально.

Авторы выражают благодарность О.Г.Косаревой за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 03-02-16234) и INTAS (грант № 99-1495).

1. Ахманов С.А., Никитин С.Ю. *Физическая оптика* (М.: изд-во МГУ, 1998).
2. Ильинский Ю.А., Келдыш Л.В. *Взаимодействие электромагнитного излучения с веществом* (М.: изд-во МГУ, 1989).
3. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Квантовая механика* (М.: Наука, 1974).
4. Ellert Ch., Corcum P.V. *Phys. Rev. A*, **59**, 4623 (1995); Larsen J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 2470 (2000); Tsubouchi M., Whitaker B., Wang L., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 4500 (2001).
5. Friedrich B., Herschbach D. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 4623 (1995); Андрияшин А.И., Федоров М.В. *ЖЭТФ*, **116**, 1551 (1999); Seideman T. *J. Chem. Phys.*, **115**, 5065 (2001).
6. Келих С. *Молекулярная нелинейная оптика* (М.: Наука, 1981).
7. Делоне Н.Б., Крайнов В.П., Сухарев М.А. *Труды ИОФ РАН*, **57**, 27 (2000).
8. Кандидов В.П. *УФН*, **166**, 1309 (1996).
9. Kandidov V.P., Kosareva O.G., Golubtsov I.S., Liu W., Becker A., Akozbek N., Bowden C.M., Chin S.L. *Appl. Phys. B* (2003) (in press).
10. Oleinikov P.A., Platonenko V.T. *Laser Phys.*, **3**, 618 (1993).
11. Nibbering E.T.J., Grillon G., Franco M.A. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 650 (1997).
12. Popov A.M., Tikhonova O.V., Volkova E.A. *Laser Phys.*, **13**, 1069, (2003).
13. Зон Б.А., Кацнельсон Б.Г. *ЖЭТФ*, **69**, 1166 (1975).
14. Макаров В.П., Федоров М.В. *ЖЭТФ*, **70**, 1185 (1976).
15. Andryushin A.I., Fedorov M.V. *Laser Phys.*, **10**, 226 (2000).
16. Quaglia L., Brewczyk M., Cornaggia C. *Phys. Rev. A*, **65**, 031404(R) (2002).