

Высокоэффективный когерентный контроль квантового состояния атомов Ne и генерации околопороговых гармоник в комбинации УФ поля и его субгармоники

М. Ю. Емелин^{†*1)}, И. Р. Хайрулин^{†*}, М. М. Попова^{†×}, М. Ю. Рябикин^{†*}, В. А. Антонов^{†*}

[†]Институт прикладной физики им. А. В. Гапонова-Грехова РАН, 603950 Н. Новгород, Россия

^{*}Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского, 603950 Н. Новгород, Россия

[×]Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 сентября 2026 г.

После переработки 25 сентября 2026 г.

Принята к публикации 30 сентября 2026 г.

В настоящей работе предложен высокоэффективный метод когерентного управления квантовым состоянием среды, а также генерацией подпороговых и околопороговых гармоник, в комбинации ультрафиолетового поля и его субгармоники. Переход к ультрафиолетовому полю, генерируемому посредством нелинейно-оптического преобразования инфракрасного лазерного излучения в кристаллах, позволяет многократно повысить эффективность многофотонного возбуждения среды по сравнению с инфракрасным полем в результате уменьшения фотонной кратности переходов. В то же время, добавление к ультрафиолетовому полю его субгармоники позволяет управлять квантовым состоянием атома и спектром генерируемых гармоник посредством интерференции квантовых путей, в которых одно и то же финальное состояние системы “атом + поле” достигается с поглощением различного числа фотонов ультрафиолетового поля и его субгармоники. В качестве примера рассмотрен атом неона в комбинированном поле четвертой и второй гармоник иттербиевого лазера с длинами волн 257.5 и 515 нм, соответственно, частоты которых близки к резонансам с четырех- и семифотонными переходами в возбужденные состояния атома. Показано, что при оптимальном соотношении интенсивностей спектральных компонент поля изменение субцикловой задержки между ними приводит к существенному (на порядок величины) изменению эффективности возбуждения атома и позволяет управлять распределением населенности между возбужденными состояниями. Кроме того, вариация субцикловой задержки между ультрафиолетовым полем и излучением субгармоники оказывает существенное влияние на эффективность генерации подпороговых и околопороговых гармоник поля вакуумного ультрафиолетового диапазона и спектральный состав генерируемого излучения.

DOI: 10.7868/S3034576626110012

Введение. Исследование и управление электронной динамикой в атомах и молекулах представляют собой одну из актуальных проблем современной физики. Для ее решения необходим инструмент, обеспечивающий временное разрешение, сопоставимое с собственными временными масштабами динамики электрона. Такая возможность появилась с созданием технологий генерации фемтосекундных лазерных импульсов, и одним из наиболее известных примеров их применения для этих целей является управление динамикой фотосинтеза, за что в 1999 году Ахмед Зевейл был удостоен Нобелевской премии по химии.

В то же время фемтосекундные лазерные импульсы могут использоваться для управления динамикой электронов и в более легких молекулах и атомах благодаря методам, основанным на многофотонных когерентных процессах. Так, двухфотонные Раби-осцилляции наблюдались в эксперименте с возбуждением атомов криптона ультрафиолетовыми (УФ) фемтосекундными лазерными импульсами еще в 1996 г. [1]. После этого теоретически было показано, что путем подбора формы фемтосекундного лазерного импульса можно (а) управлять вероятностью многофотонного перехода [2, 3], (б) создавать различные суперпозиционные состояния как в атоме водорода [4], так и в многозарядных водородоподобных ионах [5], (в) контролировать перенос на-

¹⁾e-mail: emelinm@mail.ru

селенности в возбужденное состояние и поглощение лазерного излучения [6]. Последнее было продемонстрировано в экспериментах с атомами натрия [7, 8], а в среде атомов цезия была продемонстрирована возможность управления двухфотонным поглощением [9]. Также в работах [10, 11] теоретически была показана возможность управления степенью ионизации атома и выходом генерируемых высоких гармоник при изменении фазы заполнения в последовательности фемтосекундных импульсов. Дополнительные возможности для управления процессами внутри квантовых систем открывает chirпирование (частотная модуляция) лазерных импульсов. В частности, в работе [12] теоретически была показана возможность динамического управления инверсией населенностей в полупроводниках, а в экспериментах по многофотонной фемтосекундной фотоассоциации была продемонстрирована возможность управления выходом молекул димера магния [13]. Также стоит упомянуть теоретические работы [14, 15], в которых была показана возможность переноса населенности в верхнее возбужденное состояние при воздействии двухцветного поля с некротными частотами в условиях многофотонного резонанса.

При этом следует отметить, что эффективность заселения возбужденных состояний среды быстро падает с увеличением ее потенциала ионизации или длины волны возбуждающего лазерного поля. Так, если на переходе из основного в возбужденное состояние щелочных атомов лазерное поле инфракрасного (ИК) диапазона может вызывать двухфотонные осцилляции Раби [16], то возбуждение атомарных газов в ИК поле происходит, преимущественно, в результате подавленной туннельной ионизации (frustrated tunnel ionization) [17, 18]. При этом преимущественно заселяются высоковозбужденные (ридберговские) состояния, возбуждение атома является неизбежным (заселяются состояния в широком диапазоне значений главного квантового числа $n \gg 1$ и полного момента $J \leq n$), а экспериментально достижимая суммарная населенность возбужденных состояний, как правило, составляет доли процента [19–21].

С развитием и совершенствованием инструментария по генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) в газах появились новые подходы к изучению и управлению динамикой электронов в атомах. Использование стабильных и контролируемых источников аттосекундных импульсов вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) излучения позволило снизить фотонную кратность любого резонансного перехода для внешнего электрона в атомах до 1–2 фо-

тонов, что позволяет заметно увеличить вероятности резонансных процессов. При этом естественная комбинация и синхронизация таких импульсов с генерирующим лазерным полем на фундаментальной частоте ИК диапазона открывает дополнительные широкие возможности для управления электронными процессами в атомах. Так, комбинация ВУФ и ИК излучения позволила достичь высокой эффективности переноса населенности в верхнее состояние при двухфотонном возбуждении атомов гелия [22, 23]. В то же время, в эксперименте [24] была продемонстрирована возможность управления населенностью возбужденного состояния ионов аргона за счет динамического штарковского сдвига уровней, обусловленного ИК полем, и Раби-осцилляций на резонансном переходе, обусловленных ВУФ излучением. Кроме того, при использовании последовательности аттосекундных импульсов в комбинации с ИК полем была экспериментально показана возможность управления (а) степенью ионизации атомов гелия при изменении энергии гармоник в ВУФ диапазоне [25], (б) каналами ионизации при изменении интенсивности ИК поля [26] и (в) поглощением ВУФ излучения при изменении взаимной поляризации полей [27]. Более того, изменение субцикловой задержки (применительно к периоду ИК поля) открывает возможности по управлению динамикой электрона в атоме на субфемтосекундных временных масштабах и наблюдению проявлений такой динамики в экспериментально измеримых величинах. В частности, в ряде работ были продемонстрированы возможности управления (а) вероятностью ионизации атомов гелия [28–30], (б) поглощением аттосекундного излучения с проявлением как полуволновых [31, 32], так и четвертьцикловых [33, 34] осцилляций в спектрах поглощения в зависимости от субцикловой задержки, (в) выходом подпороговых гармоник как в атомах гелия [35], так и в атомах аргона [36] и даже (г) возможность управления отрывом электрона с внутренней оболочки атома аргона [37]. Также к показательным экспериментам с применением комбинации ВУФ и ИК излучения можно отнести наблюдение субциклового эффекта Штарка в оптическом поле [38], контроль двойного возбуждения и последующей автоионизации в атомах гелия [39], наблюдение интерференции различных путей ионизации, которая может приводить к почти полной прозрачности среды для ВУФ излучения [40], а также управление угловым моментом электрона в процессе двухфотонной ионизации атомов неона через промежуточное связанное состояние [41].

Отдельного упоминания заслуживают эксперименты с использованием лазеров на свободных электронах. При использовании внешней затравки на таких установках удастся добиться хорошей когерентности излучения, в том числе для двухцветных полей, и, например, в работе [42] продемонстрирована возможность управления асимметрией углового распределения фотоэлектронов при ионизации атомов неона двухкомпонентным излучением с длинами волн 63 и 31.5 нм путем изменения задержки между компонентами на масштабе единиц аттосекунд. Однако лазеры на свободных электронах – это существенно более масштабные установки, а эксперименты с их использованием, тем более с применением внешних затравок, существенно превосходят по сложности описанные выше подходы, поэтому подробнее мы на них останавливаться не будем.

Приведенный анализ литературы показывает, что предложенные к настоящему времени методы многофотонного когерентного управления электронной динамикой в атомах и молекулах, по большому счету, делятся на две группы. К первой группе относятся работы, подразумевающие использование одноцветного фемтосекундного лазерного импульса, последовательности таких импульсов, одноцветного импульса с частотной модуляцией, либо комбинации одноцветных импульсов с некрatными частотами. В этом случае можно говорить об управлении электронной динамикой на масштабе огибающей лазерного поля. Преимуществами таких схем является простота экспериментальной реализации и высокая доступная мощность управляющего излучения, генерируемого традиционными лазерными источниками. К недостаткам относятся необходимость использования многофотонных процессов высокой кратности для возбуждения высокоэнергетичных состояний среды и невозможность управления субфемтосекундной электронной динамикой. Вторая группа работ предполагает использование комбинации фемтосекундного лазерного импульса и ВУФ излучения его высоких гармоник. В этом случае открывается возможность управления внутриатомной динамикой электронов на субфемтосекундном масштабе. При этом фотонная кратность возбуждаемых резонансов зачастую снижается до 1–2, однако схема эксперимента заметно усложняется, так как требует предварительной генерации высоких гармоник от основного лазерного импульса, а доступная мощность управляющего излучения оказывается сильно ограничена невысокой эффективностью процесса ГГВП.

В настоящей работе мы предлагаем и теоретически исследуем метод когерентного управления

квантовым состоянием атома и характеристиками генерируемых гармоник, в значительной степени объединяющий достоинства ранее рассмотренных схем. Предлагаемый метод основан на использовании комбинации низших гармоник ИК поля в УФ и видимом диапазонах в качестве управляющего излучения. Переход от ИК к УФ управляющему полю позволяет в несколько раз сократить фотонную кратность используемых резонансов и на порядки величины повысить эффективность соответствующих нелинейно-оптических процессов. При этом эффективность генерации низших гармоник ИК поля в нелинейно-оптических кристаллах может достигать десятков процентов, что позволяет сохранить высокую мощность управляющего излучения. В свою очередь, использование двухкомпонентного поля с кратными частотами (добавление к УФ полю излучения его субгармоники) позволяет реализовать условия квантовой интерференции, исследовавшиеся ранее для комбинации ИК поля и его высоких гармоник, и необходимые для управления динамикой электрона на масштабе в доли лазерного периода.

Теоретические подходы. В качестве конкретного примера среды рассмотрим разреженный газ атомов Ne в двухцветном линейно поляризованном лазерном поле, электрическая компонента которого в общем виде может быть представлена выражением

$$E(t) = E_{\Omega} f_{\Omega}(t) \sin(\Omega t) + E_{\Omega/2} f_{\Omega/2}(t) \sin(\Omega t/2 + \vartheta), \quad (1)$$

где E_{Ω} и $f_{\Omega}(t)$ – амплитуда и медленно меняющаяся огибающая УФ поля на частоте Ω ; $E_{\Omega/2}$ и $f_{\Omega/2}$ – амплитуда и огибающая его субгармоники на частоте $\Omega/2$, а ϑ – фазовая задержка, характеризующая субцикловый сдвиг между ними. В качестве частотных компонент поля (1) будем рассматривать излучение четвертой и второй гармоник иттербиевого лазера с длинами волн в вакууме $\lambda_{UV} = 2\pi c/\Omega = 257.5$ нм и $\lambda_{VIS} = 4\pi c/\Omega = 515$ нм соответственно. Указанные гармоники могут быть получены с высокой эффективностью классическими методами нелинейной оптики, а также синхронизированы между собой на субцикловом временном масштабе. В рассматриваемых далее условиях УФ компонента поля будет являться основной, а ее субгармоника видимого диапазона – выступать в качестве малой добавки. При этом огибающие обеих частотных компонент поля, $f_{\Omega}(t)$ и $f_{\Omega/2}(t)$, будут полагаться одинаковыми и соответствующими импульсу с огибающей формы синус-квадрат с длительностью от нуля до нуля, равной $\Delta t_p = 96T$, где $T = 2\pi/\Omega$:

$$f_{\Omega}(t) = f_{\Omega/2}(t) \equiv f(t) = [\theta(t) - \theta(t - \Delta t_p)] \sin^2[\pi t / \Delta t_p]. \quad (2)$$

При этом полная длительность импульса $\Delta t_p \simeq 82$ фс, а соответствующая длительность по высоте интенсивности составляет

$$\Delta t_{1/2} = \Delta t_p \cdot [1 - (2/\pi) \arcsin(2^{-0.25})] \simeq 30 \text{ фс.}$$

Для моделирования электронной динамики в атоме Ne мы численно интегрировали нестационарное уравнение Шредингера (УШ), используя два различных подхода. Первый подход основан на разложении волновой функции атома по достаточно большому числу многоэлектронных стационарных состояний, как связанных, так и состояний континуума. При этом, как и в предшествующей работе [43], использовался метод адиабатического исключения состояний континуума [44] в приближении вращающейся волны. В этом случае континуум выступает в качестве “термостата”, переходы в который в результате однофотонной ионизации атома из учитываемых связанных состояний являются необратимыми. В результате нестационарное УШ сводится к замкнутой системе уравнений относительно амплитуд возбуждения связанных состояний (здесь и далее используются атомные единицы):

$$\frac{da_k}{dt} = -[iE_k + \gamma_k(t)]a_k + E(t) \sum_{s=1}^{K_{\max}} d_{sk}^{(z)} a_s, \quad (3)$$

где k пробегает значения от 1 до $K_{\max}$; $K_{\max}$ – общее число учитываемых связанных состояний, а $k = 1$ соответствует основному состоянию атома; E_k – энергия k -го состояния; $d_{sk}^{(z)}$ – проекция дипольного момента перехода из связанного состояния под номером s в связанное состояние под номером k на ось поляризации лазерного поля (здесь и далее, ось z); $\gamma_k(t)$ – скорость ионизации связанного состояния под номером k , определяемая выражением

$$\gamma_k(t) = \frac{\pi}{4} f^2(t) \sum_J [E_{\Omega/2}^2 |\langle E_k + \Omega/2, J | \hat{d}_z | k \rangle|^2 \times \\ \times \theta(E_k + \Omega/2) + E_{\Omega}^2 |\langle E_k + \Omega, J | \hat{d}_z | k \rangle|^2 \theta(E_k + \Omega)], \quad (4)$$

где $\langle \varepsilon, J | \hat{d}_z | k \rangle$ – z -проекция дипольного момента перехода из связанного состояния $|k\rangle$, в состояние континуума $|\varepsilon, J\rangle$ с энергией ε и полным моментом J , а в сумме по J учитываются только дипольно-разрешенные переходы.

Отметим, что данный подход показал хорошее согласие с результатами прямого численного решения нестационарного УШ при описании многофотонного возбуждения атома гелия и сопутствующей гене-

рации под- и околопороговых гармоник с частотами меньше или порядка потенциала ионизации атома [43]. Кроме того, этот подход является вычислительно быстрым, что позволяет рассматривать широкий диапазон значений параметров лазерного поля. Однако из-за того, что состояния континуума в модели (3) учитываются в качестве “термостата”, данная модель не учитывает рекомбинацию оторванного лазерным полем электрона, т.е. не описывает генерацию высоких гармоник по трехступенчатому механизму (в результате переходов между свободными и связанными состояниями активного электрона) [45, 46]. Кроме того, неучет обратимых переходов через континуум в модели (3) приводит к неточности в вычислении штарковских сдвигов учитываемых энергетических уровней, в частности, к отсутствию сдвига потенциала ионизации на пондеромоторную энергию электрона в поле [47], а также невозможности наблюдения интерференционной стабилизации атома [48].

Описание процесса расчета энергий E_k связанных состояний атома в отсутствие поля, а также дипольных моментов переходов между ними и в состояния континуума приведено в Приложении. Энергетическая диаграмма связанных состояний атома Ne, учитываемых в модели (3), представлена на рис. 1. До начала взаимодействия с лазерным полем (1) атом находится в основном состоянии, обозначенном как $|1\rangle$ (расшифровка обозначений состояний дана в таблице 1А в Приложении).

Из рисунка 1 видно, что рассматриваемая частота УФ поля $\Omega = 0.1769$ ат. ед., соответствующая длине волны 257.5 нм, близка к частотам четырехфотонных переходов из основного состояния $|1\rangle$ в низшие возбужденные состояния с полным моментом $J = 0, 2$, которые на рисунке (см. вставку) обозначены как $|k\rangle$, $k = 4, 5, \dots, 8$. Более того, частота $\Omega = 0.1769$ ат. ед. достаточна для их однофотонной ионизации, в результате чего возбуждение вышележащих состояний УФ полем оказывается малоэффективным. В то же время, субгармоника УФ поля с частотой $\Omega/2 = 0.0885$ ат. ед. и длиной волны 515 нм возбуждает семифотонные переходы из основного состояния $|1\rangle$ в нечетные состояния $|2\rangle$ и $|3\rangle$ с полным моментом $J = 1$ и близка к резонансу с восьмифотонными переходами в состояния $|k\rangle$ $k = 4, 5, \dots, 8$. Другими словами, субгармоника УФ поля близка к частотам однофотонных переходов из возбужденных состояний $|k\rangle$, $k = 4, \dots, 8$, в состояния $|2\rangle$ и $|3\rangle$.

Эффективность многофотонного возбуждения оценивалась по населенностям $|a_k(t)|^2$, низших возбужденных состояний атома Ne $|k\rangle$, $k = 2, \dots, 8$, после окончания лазерного импульса. Для оценки

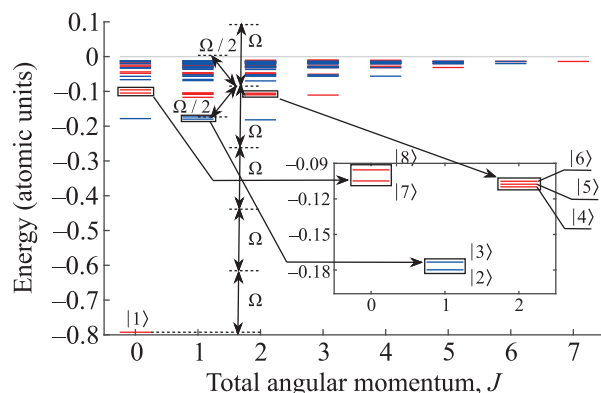


Рис. 1. (Цветной онлайн) Энергетическая диаграмма связанных состояний атома Ne, которые учитывались в модели (3). Красными горизонтальными линиями обозначены положения энергий четных состояний, синими линиями – нечетных состояний, серой линией – невозмущенный потенциал ионизации атома. Двойная стрелка большей длины обозначает энергию фотона УФ поля частоты Ω , короткая двойная стрелка – энергию фотона субгармоники видимого диапазона частоты $\Omega/2$. На вставке изображены энергии низших возбужденных связанных состояний, которые заселяются в линейно поляризованном лазерном поле в результате переходов из основного состояния. Основное и низколежащие возбужденные состояния на вставке обозначены номерами $|k\rangle$, $k = 1, \dots, 8$

эффективности генерации гармоник в условиях многофотонного возбуждения атома использовалось приближение оптически тонкой среды. В этом случае излучение гармоник пропорционально второй производной от индуцированного дипольного момента атома в заданном поле (1), которое выражается через амплитуды возбуждения связанных состояний следующим образом:

$$\ddot{d}_{ind}(t) = \frac{d^2}{dt^2} \left[\sum_{s,k} d_{sk}^{(a)} a_s^*(t) a_k(t) \right], \quad (5)$$

где суммирование ведется по всем учитываемым связанным состояниям.

Для оценки эффективности генерации гармоники в окрестности частоты $N\Omega$ мы использовали величину

$$S_N = \int_{(N-0.25)\Omega}^{(N+0.25)\Omega} s(\omega) d\omega, \quad \text{где} \quad (6a)$$

$$s(\omega) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \ddot{d}_{ind}(t) f(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (6b)$$

которая имеет смысл энергии N -й гармоники. Здесь $s(\omega)$ – спектральная плотность мощности произведения второй производной от индуцированного диполь-

ного момента атома на временной фильтр, соответствующий огибающей лазерного импульса $f(t)$. Использование подобной временной фильтрации позволяет исключить вклад излучения свободного распада индуцированной поляризации, которое возникает после окончания лазерного импульса, в спектр генерируемых гармоник.

Второй подход основан на прямом численном решении трехмерного нестационарного УШ для атома Ne в одноэлектронном приближении. В этом случае модельный потенциал для атома Ne строился таким образом, чтобы энергии начального и первых двух возбужденных состояний в модельном атоме были близки к энергиям нижних состояний реального атома, а топология электрона в начальном состоянии совпадала с топологией валентной орбитали в реальном атоме. В невозмущенном атоме Ne внешний электрон находится на $2p$ орбитали, поэтому модельный потенциал подбирался таким образом, чтобы энергия электрона именно в $|2p\rangle$ состоянии соответствовала потенциалу ионизации реального атома, и именно $|2p\rangle$ состояние считается заселенным до прихода лазерного импульса. Стоит отметить, что описанные требования к модели обусловлены предыдущими исследованиями, в которых было продемонстрировано влияние топологии начального состояния атома на его возбуждение и ионизацию, а также на свойства генерируемого при этом высокочастотного излучения гармоник [49]. В результате был получен модельный потенциал следующего вида:

$$U(r) = -\frac{1 + 8e^{-2.34r}}{r} - \frac{0.46}{r^2 + 0.46}, \quad (7)$$

где $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$.

Схема нескольких низших энергетических уровней в потенциале (7), а также условные переходы с участием фотонов УФ поля частоты Ω (длина волны 257.5 нм) и его субгармоники частоты $\Omega/2$ (длина волны 515 нм) представлены на рис. 2. Как видно из сравнения рис. 1 и 2, модельный потенциал (7) действительно хорошо воспроизводит энергии основного состояния $|2p\rangle$ и возбужденного состояния с топологией $|3s\rangle$, однако заметно занижает энергию (т.е. завывает потенциал ионизации) состояний с топологией $|3p\rangle$. В модели (7), как и в модели (3), поле субгармоники близко к резонансу с семифотонным переходом $|2p\rangle \leftrightarrow |3s\rangle$. В то же время, отстройка УФ поля от резонанса с четырехфотонным переходом $|2p\rangle \leftrightarrow |3p\rangle$ в модели (7) заметно больше, чем в модели (3), как и отстройка поля субгармоники от частоты однофотонного перехода $|3s\rangle \leftrightarrow |3p\rangle$.

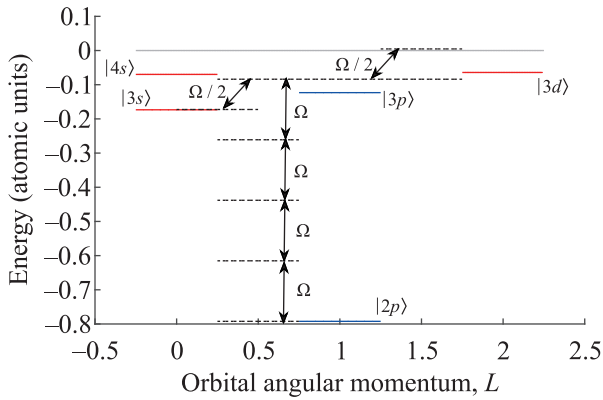


Рис. 2. (Цветной онлайн) Энергетическая диаграмма низших связанных состояний атома Ne в модели (7). Красными горизонтальными линиями обозначены положения энергий четных состояний, синими линиями – нечетных состояний, серой линией – невозмущенный потенциал ионизации атома. Длинная двойная стрелка обозначает энергию фотона УФ поля частоты Ω , короткая двойная стрелка – энергию фотона субгармоники частоты $\Omega/2$

Нестационарное УШ с модельным потенциалом (7) решалось путем прямого численного интегрирования методом операторного расщепления с использованием быстрого преобразования Фурье [50]. При этом нелинейный отклик атома на лазерное поле (1) вычислялся с использованием теоремы Эренфеста, в соответствии с которой вторая производная индуцированного дипольного момента атома может быть найдена как [51]:

$$\begin{aligned} \ddot{d}_{\text{ind}}(t) = -\frac{d^2}{dt^2}\langle z \rangle &= \left\langle \Psi(\mathbf{r}, t) \left| \frac{\partial U(r)}{\partial z} + E(t) \right| \Psi(\mathbf{r}, t) \right\rangle = \\ &= E(t) + R(t), \end{aligned} \quad (8)$$

где величина

$$R(t) = \int |\Psi(\mathbf{r}, t)|^2 \frac{\partial U(r)}{\partial z} d\mathbf{r} \quad (9)$$

представляет собой нелинейную часть атомного отклика, $\Psi(\mathbf{r}, t)$ – волновая функция активного электрона. Энергии генерируемых гармоник S_N , как и в модели (3), определялись в соответствии с выражением (6). Также для анализа условий многофотонного возбуждения атома рассчитывались населенности возбужденных состояний после окончания импульса.

Следует оговориться, что различие приближений, лежащих в основе моделей (3) и (7), предопределяет различие полученных с их помощью результатов. Так, в модели (3) точнее воспроизводятся связанные состояния реального атома Ne, что обеспечивает бо-

лее близкое к эксперименту описание штарковских сдвигов низших энергетических уровней и их роли в многофотонном возбуждении атома и генерации гармоник в результате переходов между связанными состояниями. В то же время модель (3) менее точно описывает процесс ионизации и не учитывает рекомбинацию, что приводит к недооценке штарковских сдвигов высоковозбужденных состояний [43] и неучету ионизационно-рекомбинационного (трехступенчатого) механизма ГГВП [45, 46]. В свою очередь, модель (7) учитывает динамику оторванного лазерным полем электрона и обратимые переходы через состояния континуума, и, как следствие, учитывает ионизационно-рекомбинационный механизм ГГВП, а также корректнее описывает штарковские сдвиги высоковозбужденных состояний и их роль в многофотонном возбуждении атома и ГГВП. Однако использование одноэлектронного приближения в модели (7) приводит к худшему описанию внутренней структуры реального атома Ne и сопутствующей неточности описания штарковских сдвигов низших энергетических уровней и переходов между ними. В итоге, использование существенно различающихся моделей позволяет проанализировать различные аспекты взаимодействия атома Ne с лазерным полем и выделить общие закономерности, нечувствительные к выбору модели.

Многофотонное возбуждение атома Ne однокомпонентным УФ полем. С целью упрощения дальнейшего анализа взаимодействия атомов неона с комбинацией УФ поля и его субгармоники (1), предварительно рассмотрим процесс многофотонного возбуждения атома Ne одночастотным УФ полем с длиной волны 257.5 нм. В этом случае в (1) необходимо положить амплитуду субгармоники $E_{\Omega/2} = 0$.

На рисунке 3 представлены результаты расчетов, полученных в рамках модели (3). На рисунке 3а построены зависимости населенностей низших возбужденных состояний после окончания лазерного импульса (1), т.е. в момент времени $t = \Delta t_p$, от интенсивности УФ поля $I_\Omega \propto E_\Omega^2$. Как следует из рис. 3а, при $I_\Omega < 10^{14}$ Вт/см² населенности возбужденных состояний близки к нулю. С ростом интенсивности эффективность возбуждения атома увеличивается. При этом наибольшая эффективность заселения достигается для состояния |6> (см. рис. 1 и табл. 1А Приложения) с полным моментом $J = 2$ при $I_\Omega = 2.26 \times 10^{14}$ Вт/см² и составляет приблизительно 0.17. Отметим, что при возбуждении атома ИК полем подобная населенность одиночного возбужденного состояния атома недостижима, см. теоретические и теоретико-экспериментальные работы [17–21].

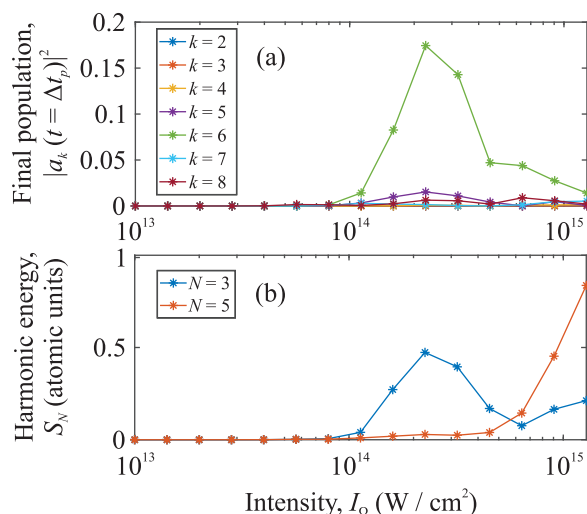


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости (а) финальной (по окончании лазерного импульса) населенности низших возбужденных состояний атома Ne, $|a_k|^2$, $k = 2, \dots, 8$ (см. рис. 1), а также (б) энергий 3-й и 5-й гармоник, S_N , от интенсивности УФ импульса частоты $\Omega = 0.1769$ ат. ед. ($\lambda_{UV} = 257.5 \text{ nm}$), полученные в рамках модели (3)

Населенности других возбужденных состояний оказываются существенно меньше населенности состояния $|6\rangle$. При больших интенсивностях I_Ω населенности всех рассматриваемых возбужденных состояний уменьшаются, что может объясняться растущей степенью ионизации, а также выходом поля из резонанса с переходами в рассматриваемые состояния в результате их растущего штарковского сдвига.

На рисунке 3b представлены зависимости энергий 3-й и 5-й гармоник, S_N , $N = 3, 5$, от пиковой интенсивности УФ импульса. Отметим, что при рассматриваемой длине волны лазерного поля 257.5 нм третья гармоника является подпороговой, тогда как 5-я гармоника – надпороговой в том смысле, что энергия ее фотона превышает невозмущенный потенциал ионизации атома. Из рисунка видно, что зависимость энергии третьей гармоники от интенсивности лазерного импульса качественно повторяет аналогичную зависимость населенности возбужденного состояния $|6\rangle$ и достигает своего наибольшего значения при интенсивности $I_\Omega = 2.26 \times 10^{14} \text{ Вт/см}^2$, соответствующей наиболее эффективному возбуждению данного состояния. В то же время, энергия пятой гармоники в рассматриваемой области значений интенсивности почти монотонно растет с ростом I_Ω . Отметим также, что найденная оптимальная интенсивность $I_\Omega = 2.26 \times 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ для рассматриваемого лазерного импульса оказывается недостаточной для обратного переноса возбуждения из состояния

$|6\rangle$ в основное состояние $|1\rangle$, и, таким образом, максимальная населенность состояния $|6\rangle$ достигается по окончании импульса.

Рисунок 4 аналогичен рис. 3, но на нем представлены результаты расчетов, полученные в рамках модели (7). Из сравнения данных рисунков следует, что зависимости, полученные в рамках моделей (3) и (7), обладают как общими чертами, так и существенными отличиями. В частности, резонансный рост населенности возбужденного состояния с топологией $3p$ в условиях четырехфотонного возбуждения атома УФ полем наблюдается в обеих моделях и при близких значениях интенсивности УФ поля – около $2.5 \times 10^{14} \text{ Вт/см}^2$. При этом максимальная населенность возбужденного состояния отличается более чем на 2 порядка. По-видимому, данное различие преимущественно обусловлено разницей величины составного матричного элемента многофотонного перехода, а также различием скоростей ионизации в моделях (3) и (7). Другим отличием модели (7) является наличие дополнительных максимумов населенности состояния $|3p\rangle$ при более высокой интенсивности лазерного поля. Последнее может быть обусловлено тем, что при больших значениях интенсивности в силу квадратичного эффекта Штарка канал однофотонной ионизации состояния $|3p\rangle$ закрывается, и с ростом интенсивности наблюдается последовательное попадание лазерного поля в однофотонные резонансы между состоянием $|3p\rangle$ и одним из более высоковозбужденных состояний. При этом в модели (3) для всех возбужденных состояний атома канал однофотонной ионизации остается открытым во всем диапазоне интенсивностей лазерного поля.

Сравнение рис. 3b и 4b позволяет говорить о том, что зависимости энергии 3-й гармоники не только качественно, но и количественно хорошо согласуются в рамках используемых моделей. Так, максимум выхода третьей гармоники наблюдается при одной и той же интенсивности УФ поля около $2.5 \times 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ и составляет $S_3 = 0.47$ ат. ед. для модели (3) и $S_3 = 0.78$ ат. ед. для модели (7). При этом количественная разница обусловлена лишь более мелким шагом по интенсивности вблизи резонанса в рамках модели (7). В то же время, зависимости энергии 5-й гармоники в моделях (3) и (7) оказываются принципиально разными. А именно, в модели (3) фактически отсутствует выраженный максимум выхода 5-й гармоники в условиях четырехфотонного резонанса ($I \approx 2.5 \times 10^{14} \text{ Вт/см}^2$), в то время как в модели (7) в этих условиях выход 5-й гармоники практически совпадает с выходом 3-й гармоники. Здесь стоит от-

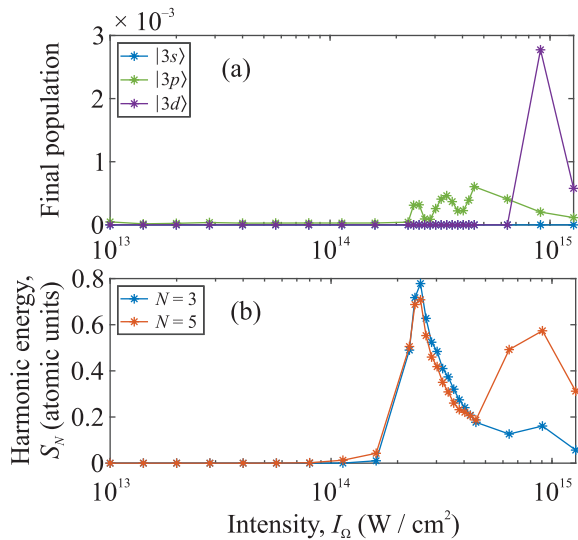


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости: (а) – финальной населенности низших возбужденных состояний атома Ne и (б) – энергий 3-й и 5-й гармоник от интенсивности лазерного поля при $\Omega = 0.1769$ ат. ед. ($\lambda_{UV} = 257.5$ нм), полученные в рамках модели (7)

метить, что 3-я и 5-я гармоники в условиях четырехфотонного резонанса генерируются в результате похожих двухфотонных переходов из возбужденного состояния атома в основное: 3-я гармоника генерируется с одновременным испусканием кванта лазерного поля, а 5-я гармоника – с одновременным поглощением кванта лазерного поля. По-видимому, в рамках модели (3) второй канал распада возбужденного состояния атома (соответствующий генерации 5-й гармоники) оказывается подавлен в силу адиабатического исключения состояний континуума. Кроме того, в модели (7) наблюдается еще один максимум выхода 5-й гармоники, обусловленный попаданием лазерного поля в пятифотонный резонанс между основным состоянием атома и возбужденным состоянием $|3d\rangle$ при интенсивности $I_\Omega \approx 9 \times 10^{14}$ Вт/см². Данный максимум отсутствует в рамках модели (3) в исследуемой области интенсивностей, что может быть обусловлено, в частности, различной величиной штарковских сдвигов энергетических уровней в моделях (3) и (7).

В целом, характер зависимостей, изображенных на рис. 3 и 4, вероятно, является более реалистичным в модели (7), т.е. на рис. 4. Также модель (7), по-видимому, количественно правильно описывает выход 5-й гармоники. По описанию 3-й гармоники имеет место паритет точности используемых моделей. В то же время населенности низших связанных состояний в условиях четырехфотонного резонанса, вероятно, количественно правильно описываются в

модели (3), так как сами эти состояния корректнее описываются в модели (3).

Многофотонное возбуждение атома Ne в комбинации УФ поля и его субгармоники. Резонансная генерация под- и околопороговых гармоник. Перейдем к рассмотрению взаимодействия атома Ne с лазерным полем (1), представляющим собой комбинацию УФ излучения с частотой $\Omega = 0.1769$ ат. ед. (длина волны 257.5 нм) и его субгармоники с частотой $\Omega/2 = 0.0885$ ат. ед. (длина волны 515 нм). В рамках модели (3) была проведена большая серия расчетов для разных комбинаций интенсивностей I_Ω и $I_{\Omega/2} \propto E_{\Omega/2}^2$, и различных значений фазовой задержки ϑ .

Характерный вид зависимостей энергий низших гармоник в спектре второй производной дипольного момента атома неона от интенсивностей спектральных компонент лазерного поля I_Ω и $I_{\Omega/2}$ представлен на рис. 5. Данный рисунок соответствует фазовой задержке $\vartheta = 0.15\pi$, выбор которой поясняется ниже. Оговоримся, что здесь и далее гармониками в спектре второй производной индуцированного дипольного момента мы называем все компоненты с частотами, кратными $\Omega/2$, и формально являющиеся гармониками низкочастотной компоненты лазерного поля (1), хотя они могут быть сгенерированы с поглощением различного числа квантов Ω и $\Omega/2$.

Отметим, что если в однокомпонентном УФ поле в рассматриваемом диапазоне энергий фотонов (от 2Ω до 5Ω) наблюдалась генерация только нечетных гармоник 3Ω ($N = 3$) и 5Ω ($N = 5$), то при добавлении излучения субгармоники спектр второй производной индуцированного дипольного момента обогащается новыми спектральными составляющими – в генерируемом излучении появляются компоненты на частотах 2.5Ω ($N = 2.5$), 3.5Ω ($N = 3.5$), 4Ω ($N = 4$) и 4.5Ω ($N = 4.5$). Из рисунка 5 наглядно видно, что эффективность генерации гармоник 3Ω и 5Ω максимальна в случае однокомпонентного УФ поля и монотонно спадает с ростом интенсивности субгармоники $I_{\Omega/2}$ почти во всем рассмотренном диапазоне интенсивностей. Остальные генерируемые спектральные компоненты от интенсивностей I_Ω и $I_{\Omega/2}$ зависят менее тривиально. При этом из всех спектральных компонент второй производной дипольного момента, возникающих при добавлении к УФ полю его субгармоники, максимально эффективно генерируется компонента 3.5Ω с длиной волны в вакууме 73.6 нм, частота которой близка к резонансам с дипольно-разрешенными переходами $|2\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ и $|3\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ из возбужденных в основное состояние атома. Энергия этой компоненты достигает глобаль-

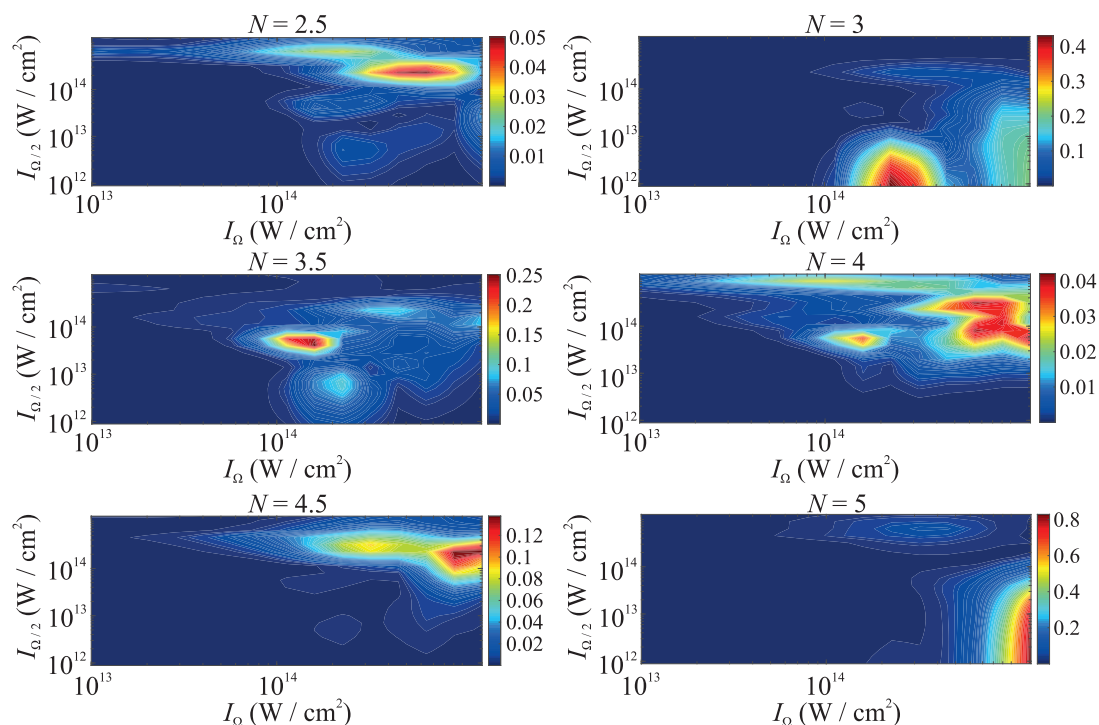


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости энергии низших гармоник в спектре второй производной дипольного момента атома Ne от интенсивностей спектральных компонент лазерного поля (1), I_Ω ($\lambda_{UV} = 257.5$ нм) и $I_{\Omega/2}$ ($\lambda_{VIS} = 515$ нм), при значении $\vartheta = 0.15\pi$, полученные в рамках модели (3)

ного максимума при значениях $I_\Omega = 1.6 \times 10^{14}$ Вт/см² и $I_{\Omega/2} = 4 \times 10^{13}$ Вт/см². Следует отметить, что при указанных значениях I_Ω и $I_{\Omega/2}$ энергии большинства остальных спектральных компонент также достигают локальных максимумов, хотя и гораздо меньшей величины. Кроме того, при этих значениях I_Ω и $I_{\Omega/2}$ достигается также максимальный контраст (отношение разности максимального и минимального значений к среднему значению) зависимостей энергий спектральных компонент второй производной дипольного момента на частотах $N\Omega$, S_N , и финальных (по окончании лазерного импульса) населенностей низших возбужденных состояний атома Ne от фазовой задержки поля субгармоники ϑ .

Вышеупомянутые зависимости изображены на рис. 6 при $I_\Omega = 1.6 \times 10^{14}$ Вт/см² и $I_{\Omega/2} = 4 \times 10^{13}$ Вт/см². Как следует из рисунка, при выбранной комбинации интенсивностей I_Ω и $I_{\Omega/2}$ фазовая задержка $\vartheta = 0.15\pi$ максимизирует энергию подпороговых гармоник поля и, в частности, спектральной компоненты на частоте 3.5Ω . Кроме того, при данном значении ϑ финальные (по окончании лазерного импульса) населенности низших возбужденных состояний атома Ne, $|a_k|^2$, $k = 2, \dots, 8$, также близки к своим максимумам. При этом, как и в случае

однокомпонентного лазерного поля (см. рис. 3), наиболее эффективно возбуждаемым состоянием атома Ne остается состояние $|6\rangle$, тогда как остальные состояния заселяются существенно меньше. Как следует из сопоставления рис. 6 и 3, при добавлении поля субгармоники финальная населенность резонансного состояния снижается, что объясняется перераспределением населенности между возбужденными состояниями (и, в частности, заселением высоковольтных состояний, населенности которых не изображены на рис. 3 и 6), а также ускоренной ионизацией из них. В условиях рис. 6 пиковая населенность состояния $|6\rangle$ составляет 1.7%, что, тем не менее, существенно больше характерных значений населенности одиночного возбужденного состояния, достижимых в ИК поле. Рисунок 6 наглядно демонстрирует возможность управления степенью возбуждения атома и эффективностью генерации спектральных компонент в его нелинейном отклике путем варьирования фазовой задержки излучения субгармоники, что эквивалентно изменению субцикловой задержки между компонентами лазерного поля (1). Так, энергия излучения на частоте 3.5Ω при изменении ϑ изменяется приблизительно в 13 раз, а финальная населенность состояния $|6\rangle$ – приблизительно в 8.5 раз.

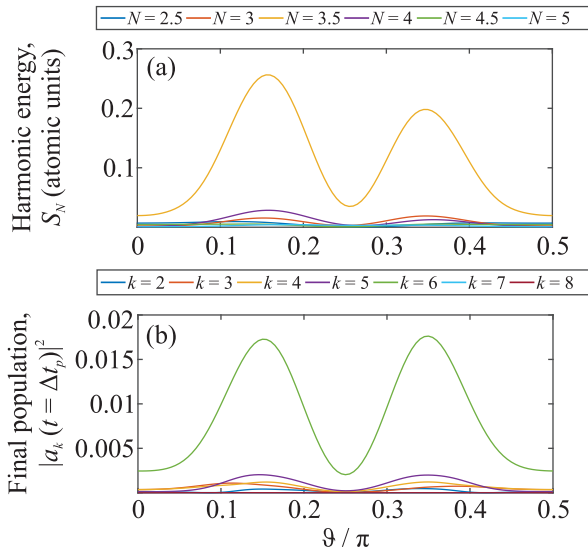


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимости: (а) – энергий компонент в спектре второй производной индуцированного дипольного момента атома Ne на частотах $N\Omega$, S_N , и (б) – финальных (после окончания импульса) населенностей низших возбужденных состояний, $|a_k|^2$, $k = 2, \dots, 8$ (см. рис. 1), от фазовой задержки поля субгармоники ϑ , полученные в рамках модели (3). Интенсивность УФ поля $I_\Omega = 1.6 \times 10^{14}$ Вт/см², интенсивность поля субгармоники $I_{\Omega/2} = 4 \times 10^{13}$ Вт/см²

При этом зависимости энергий спектральных компонент второй производной дипольного момента атома и населенностей связанных состояний являются периодическими функциями ϑ с периодом $\pi/2$.

Отметим, что нелинейный отклик и квантовое состояние атома неона чувствительны к фазовой задержке поля субгармоники ϑ только при определенном соотношении интенсивностей I_Ω и $I_{\Omega/2}$, обеспечивающем условия заметной квантовой интерференции многофотонных процессов с участием различного числа квантов поля основной частоты Ω и его субгармоники $\Omega/2$ (т.е. близости амплитуд интерферирующих квантовых путей). В том случае, если $I_\Omega \gg I_{\Omega/2}$ или $I_{\Omega/2} \gg I_\Omega$, возбуждение атома происходит преимущественно одной из спектральных компонент поля, и зависимости от ϑ становятся несущественными.

Провести аналогичное полномасштабное исследование с варьированием интенсивностей обеих компонент поля, I_Ω и $I_{\Omega/2}$, и фазовой задержки между ними ϑ в рамках модели (7) не представляется возможным в силу существенно большей ресурсоемкости таких расчетов. Поэтому для демонстрации возможности управления возбуждением атома и эффективностью генерации подпороговых гармоник путем изменения фазовой задержки поля субгармоники ϑ в рамках мо-

дели (7) была проведена одна серия расчетов с фиксированными значениями интенсивностей I_Ω и $I_{\Omega/2}$. Так как расчеты для одноцветного лазерного поля, приведенные в предыдущем разделе, показали, что четырехфотонный резонанс в атоме Ne наблюдается при одной и той же интенсивности в рамках обеих моделей, то интенсивности I_Ω и $I_{\Omega/2}$ двухкомпонентного поля (1) для расчетов в рамках модели (7) были выбраны из области глобального максимума эффективности генерации спектральной компоненты 3.5 Ω , обнаруженного в расчетах в рамках модели (3).

На рисунке 7 представлены зависимости энергий генерируемых гармоник, а также финальных населенностей низших возбужденных состояний атома Ne, от фазовой задержки ϑ при $I_\Omega = 1.6 \times 10^{14}$ Вт/см² и $I_{\Omega/2} = 5.66 \times 10^{13}$ Вт/см², полученные в рамках модели (7). Как и в случае модели (3), представленные результаты показывают возможность управления степенью возбуждения атома и эффективностью генерации спектральных компонент в его нелинейном отклике путем варьирования субцикловой задержки между компонентами двухчастотного лазерного поля. При этом, аналогично модели (3), эффективнее других заселяется состояние $|3p\rangle$ (хотя, как и в случае одноцветного поля, его населенность на 2 с лишним порядка меньше, чем населенность состояния $|6\rangle$ в модели (3)), а наибольшая эффективность возбуждения нелинейного отклика наблюдается для спектральной компоненты на частоте 3.5 Ω . В то же время, изображенные на рис. 7 энергии спектральных компонент второй производной дипольного момента имеют сопоставимую величину (так, эффективность возбуждения нелинейного отклика на частоте 4 Ω в модели (7) практически не уступает эффективности возбуждения компоненты на частоте 3.5 Ω).

Обсудим причины, лежащие в основе чувствительности представленных на рис. 6 и 7 величин к изменению фазовой задержки поля субгармоники ϑ , а также приводящие к расхождению результатов, полученных в рамках моделей (3) и (7). Осциллирующий характер зависимостей на рис. 6 и 7 обусловлен квантовой интерференцией различных каналов возбуждения состояний атома или возможных путей генерации фотонов фиксированной частоты при поглощении различного количества квантов УФ поля и его субгармоники. В частности, наиболее вероятными каналами возбуждения состояния $|6\rangle$ в модели (3) или состояния $|3p\rangle$ в модели (7), интерферирующими между собой, являются четырехфотонное возбуждение $\Omega + \Omega + \Omega + \Omega$ и три возможных шестифотонных процесса $\Omega + \Omega + \Omega/2 + \Omega/2 + \Omega/2 + \Omega/2$, $\Omega + \Omega + \Omega + \Omega + \Omega/2 - \Omega/2$ и $\Omega + \Omega + \Omega + \Omega + \Omega - \Omega$.

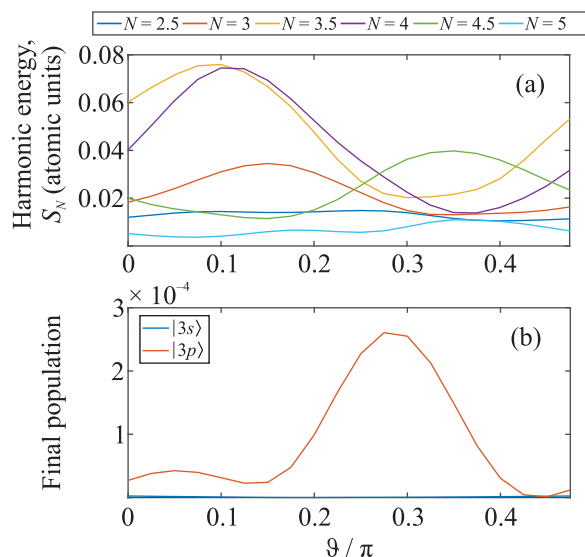


Рис. 7. (Цветной онлайн) Зависимости: (a) – энергий компонент в спектре второй производной индуцированного дипольного момента атома Ne на частотах $N\Omega$, S_N , и (b) – финальной населенностей низших возбужденных состояний от фазовой задержки поля субгармоники ϑ , полученные в рамках модели (7). Интенсивность УФ поля $I_\Omega = 1.6 \times 10^{14}$ Вт/см², интенсивность поля субгармоники $I_{\Omega/2} = 5.66 \times 10^{13}$ Вт/см²

(из всех возможных, данные процессы имеют наименьшую фотонную кратность). Генерация излучения на частоте 3.5Ω , в свою очередь, преимущественно обусловлена результатом интерференции двух путей: $\Omega + \Omega + \Omega + \Omega - \Omega/2$ с последующим излучением фотона 3.5Ω и $\Omega + \Omega + \Omega/2 + \Omega/2 + \Omega/2$ также с последующим излучением фотона 3.5Ω . При этом, в силу выбора частот УФ поля и его субгармоники (см. рис. 1 и 2), часть из указанных процессов происходит с промежуточным возбуждением состояний $|2\rangle$ и $|3\rangle$ в модели (3) или состояния $|3s\rangle$ в модели (7). Однако структура уровней в моделях (3) и (7) отличается (см. рис. 1 и 2). В модели (3) возбужденные состояния атома с топологиями $3s$ и $3p$ сильно связаны между собой полем субгармоники на частоте $\Omega/2$ (отстройка частоты $\Omega/2$ от частоты перехода между ними близка к нулю), в то время как в модели (7) такая связь между состояниями $|3s\rangle$ и $|3p\rangle$ практически отсутствует, что приводит к иному характеру взаимодействия атома с полем и к различию зависимостей, изображенных на рис. 6 и 7. Отдельно следует отметить, что в рамках модели (3) был найден глобальный максимум выхода гармоники на частоте 3.5Ω в двухчастотном поле, и зависимости на рис. 6 приведены при соответствующих оптимальных интенсивностях спектральных компонент I_Ω и $I_{\Omega/2}$.

В рамках модели (7) такую оптимизацию произвести было невозможно, что также может быть причиной расхождения результатов, представленных на рис. 6 и 7. Резюмируя, можно предположить, что в случае взаимодействия двухкомпонентного поля (1) с атомом Ne модель (3) дает более корректные результаты для населенностей низших возбужденных состояний и энергий подпороговых гармоник, так как она лучше воспроизводит энергетическую структуру уровней реального атома. Модель (7), в свою очередь, больше подходит для описания гармоник с частотами больше или порядка потенциала ионизации атома.

В заключение данного раздела отметим, что изменение фазовой задержки субгармоники ϑ позволяет управлять спектром не только подпороговых, но и околопороговых гармоник с энергиями фотонов, превышающими потенциал ионизации атома. На рисунке 8 приведены спектры второй производной ди-

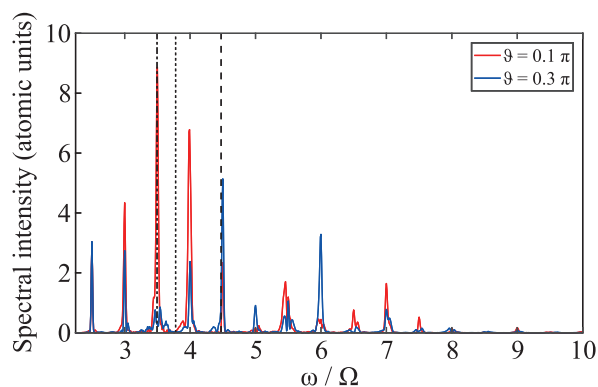


Рис. 8. (Цветной онлайн) Спектры второй производной индуцированного дипольного момента атома Ne (6b) в двухчастотном поле (1), рассчитанные в рамках модели (7). $I_\Omega = 1.6 \times 10^{14}$ Вт/см², $I_{\Omega/2} = 5.66 \times 10^{13}$ Вт/см². Красная и синяя кривые соответствуют значениям $\vartheta = 0.1\pi$ и $\vartheta = 0.3\pi$. Вертикальными штриховой, пунктирной и штрихпунктирной линиями обозначены положения невозмущенного потенциала ионизации и невозмущенных энергий возбуждения состояний $|3p\rangle$ и $|3s\rangle$ соответственно

польного момента, полученные в рамках модели (7), учитывающей ионизационно-рекомбинационный механизм генерации гармоник, в двухчастотном лазерном поле (1) с теми же интенсивностями спектральных компонент, что на рис. 7. Красная и синяя кривые на рис. 8 соответствуют значениям $\vartheta = 0.1\pi$ и $\vartheta = 0.3\pi$, первое из которых максимизирует, а второе – минимизирует энергию спектральной компоненты второй производной дипольного момента на частоте 3.5Ω в модели (7), см. рис. 7. Как следует из рис. 8, доминирующая надпороговая компонента ди-

польного отклика находится на частоте 6Ω (что соответствует длине волны излучаемого поля в вакууме 42.9 нм), а ее энергия с изменением фазовой задержки ϑ изменяется приблизительно в 4 раза. Резюмируя рис. 6, 7 и 8, следует отметить, что квантовая интерференция многофотонных процессов с участием различного числа квантов спектральных составляющих двухчастотного лазерного поля позволяет контролировать как эффективность генерации под- и околопороговых гармоник, так и спектральный состав генерируемого излучения.

Заключение. В данной работе предложен высокоэффективный метод когерентного управления квантовым состоянием атома и его нелинейным откликом на частотах гармоник лазерного поля, основанный на резонансном многофотонном возбуждении атома в комбинации УФ поля и его субгармоники. Переход к УФ полю, генерируемому посредством нелинейно-оптического преобразования излучения мощных твердотельных лазеров ИК диапазона в кристаллах, позволяет многократно повысить эффективность многофотонного возбуждения атомов среды по сравнению с непосредственным использованием ИК поля в результате уменьшения фотонной кратности резонансов. В то же время добавление к УФ полю его субгармоники позволяет управлять квантовым состоянием атома и спектром генерируемых гармоник посредством интерференции квантовых путей, в которых одно и то же финальное состояние системы “атом + поле” достигается с поглощением различного числа фотонов УФ поля и его субгармоники. Подобная квантовая интерференция открывает возможность управления динамикой электронных процессов в атоме как на временном масштабе огибающей лазерного поля, так и на масштабе, составляющем доли лазерного периода.

В качестве примера рассмотрен атом неона в комбинированном поле четвертой и второй гармоник итербиевого лазера с длинами волн 257.5 нм и 515 нм, соответственно, частоты которых близки к резонансам с четырех- и семифотонным переходами в возбужденные состояния Ne. Взаимодействие атома с лазерным полем описывалось посредством численного интегрирования нестационарного УШ. При этом были использованы два различных подхода. Первый из них основан на разложении волновой функции атома по достаточно большому числу невозмущенных многоэлектронных стационарных состояний, как связанных, так и состояний континуума, характеристики которых предварительно вычислялись многоконфигурационным методом Хартри–Фока, с последующим адиабатическим исключением состо-

яний континуума. Второй подход основан на прямом численном решении трехмерного нестационарного УШ в одноэлектронном приближении с использованием модельного потенциала, сохраняющего топологию начального состояния активного электрона и обеспечивающего близость энергий начального и первых двух возбужденных состояний к табличным значениям.

Расчеты показали, что при резонансном четырехфотонном возбуждении атома неона одночастотным импульсом УФ поля с длиной волны 257.5 нм ($\Omega = 0.1769$ ат. ед.) длительностью 30 фс и пиковой интенсивностью порядка 2.5×10^{14} Вт/см² населенность верхнего резонансного состояния атома по окончании лазерного импульса может составлять до 17 %, что недостижимо при возбуждении атома ИК полем. В то же время при добавлении поля субгармоники с частотой $\Omega/2$ финальная населенность данного состояния снижается в результате перераспределения населенности по другим возбужденным состояниям, в частности заселения высоковозбужденных состояний, и ускоренной ионизации из них. При этом спектр дипольного отклика атома обогащается комбинационными компонентами, расположенными между нечетными гармониками УФ поля.

В присутствии поля субгармоники энергия спектральных компонент дипольного отклика и финальная населенность возбужденных состояний атома периодически (с периодом $\pi/2$) зависят от фазовой задержки субгармоники, вариация которой эквивалентна изменению субцикловой задержки между ним и УФ полем фундаментальной частоты. Данные зависимости объясняются интерференцией квантовых путей, подразумевающих поглощение различного числа фотонов УФ поля и его субгармоники. Было показано, что при оптимальном соотношении интенсивностей УФ поля (1.6×10^{14} Вт/см²) и его субгармоники (4×10^{13} Вт/см²), обеспечивающем максимальный контраст квантовой интерференции (т.е. близость амплитуд интерферирующих путей), изменение фазовой задержки субгармоники приводит к существенному (на порядок величины) изменению эффективности возбуждения связанных состояний атома и позволяет управлять распределением населенности между ними. При этом пиковая населенность верхнего резонансного состояния атома снижается до 1.7 %, что, тем не менее, существенно больше характерных значений населенности одиночного возбужденного состояния, достижимых при использовании ИК поля. При этом в спектре дипольного отклика доминирует компонента на частоте 3.5 Ω с длиной волны в вакууме 73.6 нм, близкая к резонансам с

дипольно-разрешенными переходами из возбужденных в основное состояние атома неона, а ее энергия с изменением фазовой задержки субгармоники УФ поля изменяется в 13 раз.

Проведенные расчеты показали также возможность интерференционного управления генерацией надпороговых гармоник с энергиями фотонов, превышающими потенциал ионизации атома. Было показано, что при воздействии на атом Ne суммарным излучением УФ поля ($\Omega = 0.1769$ ат. ед.) с интенсивностью 1.6×10^{14} Вт/см² и его субгармоники ($\Omega/2$) с интенсивностью 5.66×10^{13} Вт/см² в надпороговой части спектра атомного отклика доминирует компонента с частотой 6Ω (что соответствует длине волны излучаемого поля в вакууме 42.9 нм), а энергия данной компоненты с изменением фазовой задержки субгармоники относительно основного УФ поля изменяется приблизительно в 4 раза.

Приложение.

Расчет энергий E_k связанных состояний атома в отсутствие поля, а также дипольных моментов переходов между ними и в состояния континуума проводился многоконфигурационным методом Хартри–Фока в программном пакете MCHF [52]. Сначала без учета релятивистских поправок оптимизировалось основное состояние иона $1s^2 2s^2 2p^5 \text{ } ^2\text{P}$ (в данной статье рассматриваются такие параметры лазерного поля (1), при которых вероятность заселения состояний с возбуждением двух электронов пренебрежимо мала, поэтому далее для удобства электронные конфигурации состояний будут записываться сокращенно, как $2p^5 nl$). Затем все орбитали замораживались, и на этом остоле на конфигурациях $2p^5 nl$ рассчитывались одноэлектронные волновые функции ns , np , nd ($n = 3-7$), nf ($n = 4-7$), ng ($n = 5-7$), nh ($n = 6-7$) и ni ($n = 7$). На этом же остоле на конфигурациях $2p^5 kl$ были получены волновые функции состояний континуума $ks - kk$ (орбитальный момент электрона в континууме от $l = 0$ до $l = 7$) в промежутке энергий ϵ от 0.005 до 1.5 ат. ед. Для основного состояния нейтрального атома $2p^6 \text{ } ^1\text{S}$ была отдельно оптимизирована $2p$ орбиталь. Затем из полученных связанных электронных конфигураций с учетом релятивистских поправок низшего порядка в гамильтониане Брейта–Паули были получены основное состояние атома $2p^6 \text{ } ^1\text{S}_0$ и состояния с возбуждением одного $2p$ электрона $2p^5 nl^{2S+1} L_J$ в LSJ -схеме связи, а также матричные элементы переходов между ними. Так как пакет MCHF не позволяет напрямую рассчитать дипольные моменты переходов из связанных состояний в состояния континуума в LSJ -схеме связи, сначала были рассчитаны матрич-

ные элементы переходов в LS -схеме связи, из которых затем были методами алгебры углового момента сконструированы матричные элементы переходов в LSJ -схеме. Отметим, что в конечный расчет вошли не все указанные состояния, а только те, что находятся по энергии ниже $2p^5 7s \text{ } ^3\text{P}_{0,1}$ [53]; при этом вклад вышележащих состояний учитывался только в качестве примеси к этим состояниям. Кроме того, важно отметить, что учет релятивистских поправок был необходим для получения схемы энергетических уровней, близкой к экспериментальной, так как возбужденные состояния Ne, в отличие от основного состояния, являются сильно смешанными по термам с разным спином. Таким образом, были получены энергии 91 четного состояния атома Ne и 84 нечетных состояний, а также дипольные моменты переходов между ними и переходов в состояния континуума. Хотя теоретические положения уровней в расчете оказались близкими к экспериментальным [53], для большей аккуратности в дальнейших расчетах были использованы именно экспериментальные значения. Для некоторых состояний (а именно всех состояний на электронной конфигурации $2p^5 6h$) экспериментальные энергии отсутствовали, и вместо них были использованы расчетные значения, исходя из систематики. Энергии основного и низколежащих возбужденных состояний, дипольно-связанных друг с другом, их электронные конфигурации, а также дипольные моменты переходов между ними приведены в табл. 1А и 2А.

Основное состояние атома Ne является синглетным, т.е. обладает нулевым спином. Однако, как уже упоминалось выше, из-за сильного спин-орбитального взаимодействия синглетные и триплетные (у которых спин равен единице) конфигурации возбужденных состояний оказываются сильно связанными друг с другом. В результате, ни одно возбужденное состояние нельзя назвать “чистым” синглетным или “чистым” триплетным состоянием, и наиболее адекватным является представление этих состояний в jK -схеме связи в соответствии с [53]. В таблице 1А также представлены лидирующие конфигурации в разложении состояний по конфигурациям с определенным угловым моментом L и спином S . Следует отметить, что под действием электрической составляющей лазерного поля спин атома не меняется. Это приводит к тому, что, например, переход $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ обладает примерно в три раза меньшим дипольным моментом, чем переход $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ (см. табл. 2А), так как в состоянии $|2\rangle$ вклад синглетной конфигурации в три раза меньше, чем в состоянии $|3\rangle$.

Таблица 1А. Лидирующая конфигурация, энергия и полный момент основного и низколежащих возбужденных состояний атома Ne, учитываемых в модели (3) и связанных дипольно-разрешенными переходами в линейно поляризованном лазерном поле

$ k\rangle$	State	Leading configurations in the LS-scheme	Total angular momentum, J	Energy (atomic units)
1	$ 1s^22s^22P^{6-1}s\rangle$	$ 1s^22s^22p^{6-1}S$	0	−0.7925
2	$ 2p^5(^2P_{3/2})3s[3/2]\rangle$	$0.95 2p^53s^3P\rangle + 0.32 2p^53s^1P\rangle$	1	−0.1798
3	$ 3p^5(^2P_{1/2})3s[1/2]\rangle$	$0.95 2p^53s^1P\rangle + 0.32 2p^53s^3P\rangle$	1	−0.1733
4	$ 2p^5(^2P_{3/2})3p[5/2]\rangle$	$0.74 2p^53p^1D\rangle - 0.67 2p^53p^3D\rangle$	2	−0.1098
5	$ 2p^5(^2P_{3/2})3p[3/2]\rangle$	$0.82 2p^53p^3P\rangle + 0.41 2p^53p^3D\rangle +$ $+ 0.4 2p^53p^1D\rangle$	2	−0.1076
6	$ 2p^5(^2P_{1/2})3p[3/2]\rangle$	$0.62 2p^53p^3D\rangle - 0.57 2p^53p^3P\rangle +$ $+ 0.53 2p^53p^1D\rangle$	2	−0.1051
7	$ 2p^5(^2P_{3/2})3p[1/2]\rangle$	$0.75 2p^53p^3P\rangle - 0.66 2p^53p^1S\rangle$	0	−0.1049
8	$ 2p^5(^2P_{1/2})3p[1/2]\rangle$	$0.76 2p^53p^1S\rangle + 0.66 2p^53p^3P\rangle$	0	−0.0955

Таблица 2А. Матричные элементы z -проекции оператора дипольного момента перехода между связанными состояниями из табл. 1А

Transition	$d_{sk}^{(z)}$ (atomic units)
$ 1\rangle \leftrightarrow 2\rangle$	0.1067
$ 1\rangle \leftrightarrow 3\rangle$	−0.3211
$ 2\rangle \leftrightarrow 4\rangle$	1.6900
$ 2\rangle \leftrightarrow 5\rangle$	0.3814
$ 2\rangle \leftrightarrow 6\rangle$	−1.3115
$ 2\rangle \leftrightarrow 7\rangle$	1.4030
$ 2\rangle \leftrightarrow 8\rangle$	0.5637
$ 3\rangle \leftrightarrow 4\rangle$	−1.2060
$ 3\rangle \leftrightarrow 5\rangle$	−0.8266
$ 3\rangle \leftrightarrow 6\rangle$	−1.7041
$ 3\rangle \leftrightarrow 7\rangle$	−0.6453
$ 3\rangle \leftrightarrow 8\rangle$	1.4510

Финансирование работы. Данная работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, грант 24-12-00461.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. O. Kittelmann, J. Ringling, A. Nazarkin, G. Korn, and I.V. Hertel, “Direct Observation of Coherent Medium Response under the Condition of Two-Photon Excitation of Krypton by Femtosecond UV-Laser Pulses”, *Phys. Rev. Lett.* **76**(15), 2682 (1996).
2. D. Meshulach and Y. Silberberg, “Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses”, *Phys. Rev. A* **60**(2), 1287 (1999).
3. S.A. Hosseini and D. Goswami, “Coherent control of multiphoton transitions with femtosecond pulse shaping”, *Phys. Rev. A* **64**(3), 033410 (2001).
4. H.K. Avetissian and G.F. Mkrtchian, “Multiphoton resonant excitation of atoms in strong laser fields and

implementation of coherent superposition states”, *Phys. Rev. A* **66**(3), 033403 (2002).

5. H.K. Avetissian, G.F. Mkrtchian, and M.G. Poghosyan, “Creation of coherent superposition states in hydrogenlike ions via multiphoton resonant excitation”, *Phys. Rev. A* **73**(6), 063413 (2006).
6. C. Trallero-Herrero, D. Cardoza, T.C. Weinacht, and J.L. Cohen, “Coherent control of strong field multiphoton absorption in the presence of dynamic Stark shifts”, *Phys. Rev. A* **71**(1), 013423 (2005).
7. A. Gandman, L. Chuntunov, L. Rybak, and Z. Amitay, “Coherent phase control of resonance-mediated (2+1) three-photon absorption”, *Phys. Rev. A* **75**(3), 031401(R) (2007).
8. C. Trallero-Herrero, J.L. Cohen, and T. Weinacht, “Strong-Field Atomic Phase Matching”, *Phys. Rev. Lett.* **96**(6), 063603 (2006).
9. S. Lee, J. Lim, J. Ahn, V. Hakobyan, and S. Guérin, “Strong-field two-photon transition by phase shaping”, *Phys. Rev. A* **82**(2), 023408 (2010).
10. S.-K. Son and S.-I. Chu, “Many-mode Floquet theoretical approach for coherent control of multiphoton dynamics driven by intense frequency-comb laser fields”, *Phys. Rev. A* **77**(6), 063406 (2008).
11. D. Zhao, F.-l. Li, and S.-I. Chu, “Coherent control and giant enhancement of multiphoton ionization and high-order-harmonic generation driven by intense frequency-comb laser fields: An *ab initio* theoretical investigation”, *Phys. Rev. A* **87**(4), 043407 (2013).
12. L. Liu, Y. Huang, F. Jin, and J. Zhao, “Dynamic control of population inversion and high harmonic generation in semiconductors using chirped laser pulses”, *Opt. Express* **32**(25), 43760 (2024).
13. L. Levin, W. Skomorowski, L. Rybak, R. Kosloff, C.P. Koch, and Z. Amitay, “Coherent Control of Bond Making”, *Phys. Rev. Lett.* **114**(23), 233003 (2015).

14. H.K. Avetissian, B.R. Avchyan, and G.F. Mkrtchian, "Two-color multiphoton resonant excitation of three-level atoms", *Phys. Rev. A* **74**(6), 063413 (2006).
15. H.K. Avetissian, A. Brown, and G.F. Mkrtchian, "Induced multiphoton adiabatic passage and coherent control of population transfer in quantum systems with high-energy transitions", *Phys. Rev. A* **80**(3), 033413 (2009).
16. M.F. Ciappina, J.A. Pérez-Hernández, A.S. Landsman, T. Zimmermann, M. Lewenstein, L. Roso, and F. Krausz, "Carrier-Wave Rabi-Flopping Signatures in High-Order Harmonic Generation for Alkali Atoms", *Phys. Rev. Lett.* **114**(14), 143902 (2015).
17. Q. Li, X.-M. Tong, T. Morishita, C. Jin, H. Wei, and C.D. Lin, "Rydberg states in the strong field ionization of hydrogen by 800, 1200 and 1600 nm lasers", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47**(20), 204019 (2014).
18. B. Piraux, F. Mota-Furtado, P.F. O'Mahony, A. Galstyan, and Yu.V. Popov, "Excitation of Rydberg wave packets in the tunneling regime", *Phys. Rev. A* **96**(4), 043403 (2017).
19. T. Nubbemeyer, K. Gorling, A. Saenz, U. Eichmann, and W. Sandner, "Strong-Field Tunneling without Ionization", *Phys. Rev. Lett.* **101**(23), 233001 (2008).
20. Y.-N. Liu, S.-P. Xu, M.-F. Zhu, Z.-R. Xiao, S.-G. Yu, L.-Q. Hua, X.-Y. Lai, W. Quan, W.-X. Yang, and X.-J. Liu, "Wavelength Dependence of Atomic Excitation for Ar Subject to Intense Midinfrared Laser Pulses", *Chin. Phys. Lett.* **40**(10), 103201 (2023).
21. H. Zimmermann, S. Patchkovskii, M. Ivanov, and U. Eichmann, "Unified Time and Frequency Picture of Ultrafast Atomic Excitation in Strong Laser Fields", *Phys. Rev. Lett.* **118**(1), 013003 (2017).
22. T. Riekes, L.P. Yatsenko, S. Steuerwald, T. Halfmann, B.W. Shore, N.V. Vitanov, and K. Bergmann, "Efficient adiabatic population transfer by two-photon excitation assisted by a laser-induced Stark shift", *J. Chem. Phys.* **113**(2), 534-546 (2000).
23. S. Kumar, J.D. Piel, C.H. Greene, and N. Shivaram, "Broadband femtosecond lasers enable efficient two-photon excitation of the ultranarrow linewidth singlet $1s2s$ state in helium", *Phys. Rev. Res.* **8**(1), 013009 (2026).
24. M. Flögel, J. Durá, B. Schütte, M. Ivanov, A. Rouzée, and M.J.J. Vrakking, "Rabi oscillations in extreme ultraviolet ionization of atomic argon", *Phys. Rev. A* **95**(2), 021401(R) (2017).
25. P. Ranitovic, X.M. Tong, B. Gramkow, S. De, B. DePaola, K.P. Singh, W. Cao, M. Magrakvelidze, D. Ray, I. Bocharova, H. Mashiko, A. Sandhu, E. Gagnon, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, I. Litvinyuk and C.L. Cocke, "IR-assisted ionization of helium by attosecond extreme ultraviolet radiation", *New J. Phys.* **12**(1), 013008 (2010).
26. N. Shivaram, H. Timmers, X.-M. Tong, and A. Sandhu, "Attosecond-Resolved Evolution of a Laser-Dressed Helium Atom: Interfering Excitation Paths and Quantum Phases", *Phys. Rev. Lett.* **108**(19), 193002 (2012).
27. M. Reduzzi, J. Hummert, A. Dubrouil, F. Calegari, M. Nisoli, F. Frassetto, L. Poletto, S. Chen, M. Wu, M. B. Gaarde, K. Schafer, and G. Sansone, "Polarization control of absorption of virtual dressed states in helium", *Phys. Rev. A* **92**(3), 033408 (2015).
28. P. Johnsson, J. Mauritsson, T. Remetter, A. L'Huillier, and K.J. Schafer, "Attosecond Control of Ionization by Wave-Packet Interference", *Phys. Rev. Lett.* **99**(23), 233001 (2007).
29. N. Shivaram, H. Timmers, X.-M. Tong, and A. Sandhu, "Photoionization dynamics in the presence of attosecond pulse trains and strong fields", *Chemical Physics* **414**, 139 (2013).
30. M. Wu, S. Chen, S. Camp, K.J. Schafer, and M.B. Gaarde, "Theory of strong-field attosecond transient absorption", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49**(6), 062003 (2016).
31. A.N. Pfeiffer and S.R. Leone, "Transmission of an isolated attosecond pulse in a strong-field dressed atom", *Phys. Rev. A* **85**(5), 053422 (2012).
32. M. Holler, F. Schapper, L. Gallmann, and U. Keller, "Attosecond Electron Wave-Packet Interference Observed by Transient Absorption", *Phys. Rev. Lett.* **106**(12), 123601 (2011).
33. S. Chen, K.J. Schafer, and M.B. Gaarde, "Transient absorption of attosecond pulse trains by laser-dressed helium", *Opt. Lett.* **37**(12), 2211 (2012).
34. M. Chini, X. Wang, Y. Cheng, Y. Wu, D. Zhao, D.A. Telnov, S.-I. Chu, and Z. Chang, "Sub-cycle Oscillations in Virtual States Brought to Light", *Sci. Rep.* **3**(1), 1105 (2013).
35. J. Heslar, D.A. Telnov, and S.-I. Chu, "Subcycle dynamics of high-order-harmonic generation of He atoms excited by attosecond pulses and driven by near-infrared laser fields: A self-interaction-free time-dependent density-functional-theory approach", *Phys. Rev. A* **89**(5), 052517 (2014).
36. J. Heslar, D.A. Telnov, and S.-I. Chu, "Subcycle dynamics of high-harmonic generation in valence-shell and virtual states of Ar atoms: A self-interaction-free time-dependent density-functional-theory approach", *Phys. Rev. A* **91**(2), 023420 (2015).
37. A. Chew, N. Douguet, C. Cariker, J. Li, E. Lindroth, X. Ren, Y. Yin, L. Argenti, W.T. Hill, and Z. Chang, "Attosecond transient absorption spectrum of argon at the $L_{2,3}$ edge", *Phys. Rev. A* **97**(3), 031407(R) (2018).
38. M. Chini, B. Zhao, H. Wang, Y. Cheng, S.X. Hu, and Z. Chang, "Subcycle ac Stark Shift of Helium Excited States Probed with Isolated Attosecond Pulses", *Phys. Rev. Lett.* **109**(7), 073601 (2012).

39. S. Gilbertson, M. Chini, X. Feng, S. Khan, Y. Wu, and Z. Chang, “Monitoring and controlling the electron dynamics in helium with isolated attosecond pulses”, *Phys. Rev. Lett.* **105**(26), 263003 (2010).
40. P. Ranitovic, X.M. Tong, C.W. Hogle, X. Zhou, Y. Liu, N. Toshima, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “Controlling the XUV Transparency of Helium Using Two-Pathway Quantum Interference”, *Phys. Rev. Lett.* **106**(19), 193008 (2011).
41. D.M. Villeneuve, P. Hockett, M. J. J. Vrakking, and H. Niikura, “Coherent imaging of an attosecond electron wave packet”, *Science* **356**(6343), 1150 (2017).
42. K.C. Prince, E. Allaria, C. Callegari et al. (Collaboration) “Coherent control with a short-wavelength free-electron laser”, *Nat. Photonics* **10**(3), 176 (2016).
43. V.A. Antonov, I.R. Khairulin, M.Yu. Emelin, M.M. Popova, E.V. Gryzlova, and M.Yu. Ryabikin, “Optimal conditions for the generation of moderate-order harmonics of a short-wave field by helium atoms”, *Phys. Rev. A* **111**(5), 053502 (2025).
44. J. Parker and C.R. Stroud, Jr., “Population trapping in short-pulse laser ionization”, *Phys. Rev. A* **41**(3), 1602 (1990).
45. P. B. Corkum, “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”, *Phys. Rev. Lett.* **71**(13), 1994 (1993).
46. M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum, “Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields”, *Phys. Rev. A* **49**(3), 2117 (1994).
47. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, “Динамический штарковский сдвиг атомных уровней”, *УФН* **169**(7), 753 (1999) [N.B. Delone and V.P. Krainov, “AC Stark shift of atomic energy levels”, *Phys.-Uspekhi* **42**(7), 669 (1999)].
48. М. В. Федоров, “Стабилизация атомов в сильном лазерном поле”, *УФН* **169**(1), 66 (1999) [M. V. Fedorov, “Stabilization of atoms in a strong laser field”, *Phys.-Uspekhi* **42**(1), 61 (1999)].
49. A. S. Emelina, M. Yu. Emelin, R. A. Ganeev, M. Suzuki, H. Kuroda, and V. V. Strelkov, “Two-color high-harmonic generation in plasmas: efficiency dependence on the generating particle properties”, *Opt. Express* **24**(13), 13971 (2016).
50. J. A. Fleck, J. R. Morris, and M. D. Feit, “Time-dependent propagation of high energy laser beams through the atmosphere”, *Appl. Phys.* **10**(2), 129 (1976).
51. K. Burnett, V. C. Reed, J. Cooper, and P. L. Knight, “Calculation of the background emitted during high-harmonic generation”, *Phys. Rev. A* **45**(5), 3347 (1992).
52. C. F. Fischer, T. Brage, and P. Jonsson, *Computational Atomic Structure: An MCHF Approach* (IOP Publishing, Bristol, 1997).
53. A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team (2024), NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.12), [Online]; <https://physics.nist.gov/asd> [2025, July 24]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD; DOI: <https://doi.org/10.18434/T4W30F>.