СПОНТАННОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ АТОМОВ В СИЛЬНОМ ЛАЗЕРНОМ ПОЛЕ

А. В. Богацкая ^{a,b*}, Е. А. Волкова^a, А. М. Попов^{a,b,c}

^а Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына, Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова 119991, Москва, Россия

^b Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук 119991, Москва, Россия

^с Физический факультет, Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова 119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 28 апреля 2017 г.

В рамках последовательного квантовомеханического подхода, основанного на рассмотрении взаимодействия квантовой системы с набором мод квантованного поля, находящихся в вакуумном состоянии, рассмотрено спонтанное излучение атомной системы в поле высокоинтенсивного лазерного импульса фемтосекундной длительности. Показано, что в спектре излучения атома возникают как четные, так и нечетные гармоники воздействующего поля, и выяснены механизмы их генерации. Проведено сопоставление с полуклассической теорией генерации гармоник лазерного излучения. Продемонстрирована ограниченность полуклассического подхода при описании спонтанного излучения в сильных лазерных полях, особенно в условиях значительного опустошения основного (начального) состояния в лазерном поле.

DOI: 10.7868/S0044451017100078

1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие лазерных технологий привело к появлению широкого круга новых задач, связанных с взаимодействием высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом. Так, генерация электромагнитного излучения различных частотных диапазонов (от радиочастотного до ВУФ и мягкого рентгеновского излучения) в плазме с сильной неравновесностью спектра электронов является одной из наиболее актуальных проблем современной лазерной физики. Это обусловлено широким спектром практических приложений генерируемого лазерной плазмой излучения в задачах диагностики, обработки и анализа материалов, в том числе различных многоатомных молекул [1-4], в медицине и других областях. Развитие теории генерации гармоник высокого порядка лазерного излучения (ГГВП) в плазме, созданной высокоинтенсивным лазерным излучением, позволило получать когерентное излучение в области жесткого ультрафиолета и мягкого рентгеновского излучения аттосекундной длительности [5–7]. Дальнейшее совершенствование аттосекундных технологий в последние два десятилетия непосредственно связано с его широкой применимостью в физике, химии [8,9], науке о материалах и биологии [10, 11]. С другой стороны, различные механизмы генерации и усиления терагерцевого и инфракрасного излучения в лазерной плазме, созданной фемтосекундными лазерными импульсами, рассмотрены в работах [12–15].

При изучении атомной динамики в высокоинтенсивных лазерных импульсах спонтанные переходы в атомах, обусловленные взаимодействием квантовой системы с электромагнитным вакуумом, обычно не рассматриваются. Это обусловлено малостью взаимодействия атома с вакуумными модами поля по сравнению с взаимодействием с высокоинтенсивным лазерным полем. Кроме того, длительность фемтосекундных лазерных импульсов на несколько порядков меньше характерного времени спонтанных переходов (10^{-9} – 10^{-7} с). Следовательно, взаимодействие с вакуумными модами поля может не учитываться. С другой стороны, любой процесс вынуж-

^{*} E-mail: annabogatskaya@gmail.com

денного испускания квантов начинается со спонтанного фона излучения. Поэтому для корректного описания излучения различных частотных диапазонов из лазерной плазмы, созданной высокоинтенсивным фемтосекундным лазерным импульсом, по крайней мере на начальных этапах спонтанное испускание квантов атомом должно также приниматься во внимание. При этом важно, что атом может быть существенно перестроен («одет») лазерным полем. В такой ситуации спектр спонтанной эмиссии позволит также судить о структуре атомных уровней «одетого» атома.

Обычно спонтанное излучение атома при воздействии на него поля электромагнитной волны рассматривается в так называемом полуклассическом приближении [16], когда атомная динамика представляется квантовомеханически, а поле излучения — в соответствии с классическими законами. При этом в качестве дипольного момента квантовой системы берется величина

$$\mathbf{d}(t) = -e \int |\psi(\mathbf{r}, t)|^2 \mathbf{r} \, d^3 r, \qquad (1)$$

получающаяся при усреднении оператора дипольного момента по квантовому состоянию атома, взаимодействующего с лазерным полем, $\psi(\mathbf{r}, t)$. Если лазерное поле является достаточно слабым, т. е. его величина много меньше внутриатомных полей, то задача об эволюции атома в поле может быть решена по теории возмущений. Как результат, получается разложение поляризационного отклика по степеням поля [17]. В сильных полях, когда теория возмущений оказывается неприменимой, для изучения атомной динамики и определения поляризационного отклика обычно используют приближение сильного поля (SFA — strong filed approximation) или же методы численного интегрирования. В частности, приближение SFA на протяжении более двух десятилетий с успехом использовалось для анализа ГГВП [18-22], см. также недавний обзор [23]. Анализ поляризационного отклика на частоте воздействующего поля и вклад в него различных процессов на основе численного интегрирования нестационарного уравнения Шредингера был выполнен в работах [24,25].

Однако правомерность использования полуклассического подхода для анализа спонтанного излучения атомов и поляризационного отклика в сильных полях была поставлена под сомнение в [26]. В этой работе было обращено внимание на то, что в полуклассическом подходе переходы возможны между атомными состояниями, обладающими ненулевой населенностью. При этом полуклассический подход дает количественно правильное значение вероятности перехода только для случая, когда населенность состояния, в которое происходит переход, близка к единице. В частности, это означает, что анализ процесса ГГВП в рамках полуклассического подхода возможен лишь в относительно слабых полях, когда в течение лазерного воздействия не происходит опустошения основного (начального) состояния атома. В работах [27, 28] был развит новый подход, позволяющий рассмотреть спонтанные переходы в квантовой системе при воздействии на нее поля электромагнитной волны, в том числе высокой интенсивности. Этот подход основан на учете взаимодействия атома с совокупностью мод квантованного поля, находящихся в вакуумном состоянии, в первом порядке теории возмущений, в то время как взаимодействие с лазерным полем, которое полагается классическим, рассматривается вне рамок теории возмущений.

В данной работе рассматривается применение сформулированного в работах [27, 28] подхода для анализа спектра спонтанного излучения модельного одноэлектронного атома при воздействии на него фемтосекундного лазерного импульса (Ті-Sa-лазер и его вторая гармоника). Показано, что помимо линий, соответствующих гармоникам воздействующего излучения, в спектрах присутствует ряд линий, соответствующих переходам между дискретными состояниями атомного спектра, что свидетельствует об эффективном заселении возбужденных (ридберговских) состояний в сильном лазерном поле. Обнаружено, что помимо нечетных гармоник, которые обычно анализируются в полуклассическом подходе, в сильных полях атом излучает также четные гармоники лазерного излучения. Детально проанализированы различные механизмы генерации как нечетных, так и четных гармоник. Проведено сопоставление полученных данных с результатами расчетов в рамках полуклассического подхода. Определены области его применимости. В частности, показано, что в области сильных полей полуклассический подход даже на качественном уровне не может быть использован для описания спектра спонтанной эмиссии и генерации ВУФ-излучения в течение воздействия фемтосекундного лазерного импульса.

2. МОДЕЛЬ: АТОМ В СИЛЬНОМ ПОЛЕ ИЗЛУЧЕНИЯ И СПОНТАННЫЕ ПЕРЕХОДЫ

Следуя работе [28], будем полагать, что мы знаем решение уравнения

$$i\hbar \frac{\partial \psi(\mathbf{r},t)}{\partial t} = H_0(t)\psi(\mathbf{r},t), \qquad (2)$$

описывающего динамику атомной системы в поле электромагнитной волны при условии, что в начальный момент времени атом находился в некотором стационарном (или нестационарном) состоянии дискретного спектра или континуума $\phi(\mathbf{r})$:

$$\psi(\mathbf{r}, t=0) = \phi(\mathbf{r}). \tag{3}$$

Здесь $H_0 = H_{at}(\mathbf{r}) + W(\mathbf{r},t); H_{at}(\mathbf{r})$ — атомный гамильтониан,

$$W = -\frac{e}{mc} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p} + \frac{e^2 A^2(t)}{2mc^2}$$

— оператор взаимодействия с полем волны в дипольном приближении, $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0(t) \sin \omega t$ — векторный потенциал классического лазерного поля, $\mathbf{p} = -i\hbar \nabla$ — оператор импульса.

Если считать, что в начальный момент все полевые моды квантованного поля находились в вакуумном состоянии, то в первом порядке теории возмущений в одной из полевых мод $\{\mathbf{k}, \lambda\}$ (\mathbf{k} — волновой вектор, λ задает состояние поляризации) возникнет однофотонное состояние. Тогда, как показано в работе [28], для волновой функции атома $\delta \psi_{k\lambda}(\mathbf{r}, t)$, соответствующей появлению фотона в моде $\{\mathbf{k}, \lambda\}$, может быть написано уравнение

$$i\hbar \frac{\partial \delta \psi_{k\lambda}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = H_0(t) \delta \psi_{k\lambda}(\mathbf{r}, t) - \frac{e(\mathbf{e}_{k\lambda} \cdot \mathbf{p})}{mc} \times \frac{a_{norm}}{\sqrt{2}} \psi(\mathbf{r}, t) \exp(i\omega_{k\lambda}t), \quad (4)$$

где $\mathbf{e}_{k\lambda}$ — вектор поляризации, $a_{norm} = \sqrt{4\pi\hbar c^2/(\omega_{k\lambda}L^3)}$ — нормировочная константа, L^3 — нормировочный объем. Начальное условие к уравнению (4) записывается в виде

$$\delta\psi_{k\lambda}(\mathbf{r}, t=0) = 0. \tag{5}$$

Заметим, что уравнение (4) является неоднородным уравнением Шредингера для функции $\delta \psi_{k\lambda}(\mathbf{r},t)$ с источником в правой части, описывающим появление фотона заданного типа.

Таким образом, имеем систему уравнений (2), (4) с начальными условиями (3) и (5), которая описывает динамику квантовой системы в лазерном поле с учетом спонтанного излучения фотонов различных типов. Очевидно, что выражение

$$W_{k\lambda}(t) = \int |\delta\psi_{k\lambda}(r,t)|^2 d^3r \tag{6}$$

задает вероятность излучить фотон типа $\{\mathbf{k}, \lambda\}$ в зависимости от времени, а величина

$$W_{fi}(t) = \sum_{k,\lambda} W_{k\lambda}(t) \tag{7}$$

определяет полную вероятность испустить фотон (любой частоты и поляризации) при переходе $f \to i$.

В случае если спектр полевых мод полагается плотным, в (7) суммирование может быть заменено интегрированием:

$$\sum_{k,\lambda} \to 2L^3 \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} = \frac{2L^3}{8\pi^3 c^3} \int \omega_{k\lambda}^2 d\omega_{k\lambda} \int d\Omega. \quad (8)$$

В результате для вероятности спонтанного распада с появлением фотона в спектральном интервале частот $(\omega, \omega + d\omega)$ получим

$$W_{\omega}d\omega = \frac{L^3}{3\pi^2 c^3} \,\omega^2 d\omega \, W_{k=\omega/c,\lambda},\tag{9}$$

где $W_{k,\lambda}$ определяется выражением (6). Заметим, что в выражение (9) не входит нормировочный объем, поскольку $W_{k,\lambda} \sim 1/L^3$.

Поскольку мы рассматриваем задачу в первом порядке теории возмущений, должно быть выполнено условие $\int W_{\omega} d\omega \ll 1$, т.е. вероятность испускания фотона мала и двухквантовыми спонтанными переходами можно пренебречь. В фемтосекундном диапазоне длительностей лазерного импульса это условие легко выполнимо.

Для более глубокого понимания физики спонтанного излучения в сильном лазерном поле, когда спектр атома может быть существенно перестроен, волновые функции $\delta \psi_{k\lambda}(\mathbf{r},t)$ раскладывались по базису стационарных состояний свободного атома:

$$\delta\psi_{k\lambda}(\mathbf{r},t) = \sum_{n} C_{n}^{(k\lambda)}(t)\varphi_{n}(\mathbf{r}) \exp\left(-\frac{i}{\hbar}E_{n}t\right).$$
 (10)

Квадраты модулей коэффициентов разложения (10) $|C_n^{(k\lambda)}|^2$ имеют смысл вероятностей обнаружить атом в состоянии $|n\rangle$ при условии, что был испущен фотон в моду $\{\mathbf{k}, \lambda\}$. Именно эти данные по распределениям $|C_n^{(k\lambda)}|^2$ позволят нам в дальнейшем установить физику процессов, ответственных за испускание высоких гармоник.

3. ЧИСЛЕННАЯ МОДЕЛЬ

Остановимся коротко на численной модели, которая нами использовалась для моделирования

Таблица 1. Энергетический спектр одномерного одноэлектронного атома, описываемого потенциалом (11)

Квантовое число <i>п</i>	Энергия, эВ
1	-12.134
2	-5.910
3	-3.457
4	-2.220
5	-1.550
6	-1.135
7	-0.870
8	-0.685
9	-0.555
10	-0.457
11	-0.385

спонтанного излучения квантовой системы в присутствии сильного лазерного поля. Аналогично [27, 28], будем рассматривать одномерный одноэлектронный атом с потенциалом рочестерского типа [29]

$$V(x) = -\frac{e^2}{\sqrt{\alpha^2 + x^2}} \tag{11}$$

с параметром сглаживания $\alpha = 1.6165a_0$, где a_0 — боровский радиус. Для такого значения параметра сглаживания потенциал ионизации составляет $I_i = 12.13$ эВ, что соответствует потенциалу ионизации атома ксенона. Энергии нескольких нижних состояний в таком потенциале приведены в табл. 1.

Расчеты атомной динамики проводились для основного начального состояния n = 1. В качестве воздействующего лазерного излучения рассматривался импульс Ti–Sa-лазера ($\hbar \omega = 1.55$ эВ) со сглаженной трапецеидальной формой импульса с длительностью плато t_p и фронтов t_f , так что полная длительность импульса составляла $\tau_p = t_p + 2t_f$. Для излучения Ti–Sa-лазера параметры t_p и t_f были выбраны равными 2 и 10 периодам колебаний поля волны. В случае излучения второй гармоники ($\hbar \omega =$ = 3.1 эВ) мы полагали, что параметры t_p и t_f равны 5 и 14 периодам колебаний. Длительности импульсов соответственно составляли приблизительно 37 фс и 32 фс.

Как уже говорилось, уравнение (2), описывающее динамику электронов в классическом поле, решалось совместно с набором уравнений вида (4), соответствующих появлению фотонов в одной из мод квантованного поля. Процедура численного решения коротко изложена в работе [27]. Типичное значение интервала $\Delta\omega$ между модами квантованного поля составляло 0.02 от частоты воздействующего излучения, а число полевых мод, для которых проводилось моделирование, составляло 400-1200 в зависимости от интенсивности воздействующего лазерного излучения. Динамика системы анализировалась на временах, вдвое превосходящих длительность импульса, $\tau = 2\tau_p$. Это позволяло отличить спонтанные переходы, которые возможны и в отсутствие лазерного воздействия, от стимулированных переходов, таких как рассеяние рамановского или рэлеевского типов, или тормозного излучения в поле волны, т. е. процессов, когда спонтанные фотоны испускаются только в присутствии лазерного поля.

Для сопоставления полученных результатов с расчетами, выполненными в рамках полуклассической теории, мы также рассчитывали «полуклассическую» вероятность спонтанного излучения. В этом случае вероятность испустить квант в интервале частот ($\omega, \omega + d\omega$) определяется как

$$W_{\omega}^{(semi)}d\omega = \frac{4\omega^3}{3\hbar c^3} |d_{\omega}|^2 d\omega, \qquad (12)$$

где d_{ω} определяется как фурье-образ дипольного момента (1):

$$\mathbf{d}_{\omega} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int \mathbf{d}(t) \exp(-i\omega t) \, dt. \tag{13}$$

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Начнем анализ с обсуждения процесса ионизации атома импульсами Ti–Sa-лазера и его второй гармоники. Вероятности ионизации, а также вероятности обнаружить атом после импульса в основном состоянии представлены в табл. 2.

Отметим прежде всего, что для обоих значений частоты лазерного излучения в области интенсивностей, меньших или равных $(1-2) \cdot 10^{13}$ BT/см², атом преимущественно остается в основном состоянии, т.е. вероятности его ионизации и возбуждения малы. В соответствии с [26] в таком режиме вероятности переходов в основное состояние из вышележащих состояний дискретного спектра, а также континуума действительно могут быть получены в полуклассическом приближении. Наши расчеты в целом подтверждают это утверждение. Действительно, на рис. 1, 2 приведены спектры спонтанной эмиссии атома при воздействии на него им-

$\hbar\omega = 1.55 \text{ sB}$		$\hbar\omega = 3.1 \text{sB}$			
Интенсивность, ${ m Bt/cm^2}$	Вероятность ионизации	Населенность основного состояния	Интенсивность, $B_{\rm T}/c_{\rm M}^2$	Вероятность ионизации	Населенность основного состояния
10^{13}	$4.37274 \cdot 10^{-4}$	0.99927	$3 \cdot 10^{12}$	$1.45708 \cdot 10^{-1/4}$	0.9998
$2 \cdot 10^{13}$	0.00836	0.99086	10^{13}	0.01204	0.98635
$3 \cdot 10^{13}$	0.08737	0.84413	$3\cdot 10^{13}$	0.07963	0.57377
$4 \cdot 10^{13}$	0.28431	0.70324	10^{14}	0.79482	0.05579
$5\cdot 10^{13}$	0.52553	0.45724	$3\cdot 10^{14}$	0.93987	0.01048
$6 \cdot 10^{13}$	0.45933	0.47493	10^{15}	0.93271	0.00186
$8 \cdot 10^{13}$	0.58327	0.16376	$1.5\cdot 10^{15}$	0.89724	$4.9718 \cdot 10^{-4}$
10^{14}	0.94116	0.01716	$2 \cdot 10^{15}$	0.92983	$2.6393 \cdot 10^{-4}$

Таблица 2. Вероятности ионизации и нахождения в основном состоянии модельного атома после воздействия импульсов Ti–Sa-лазера и его второй гармоники



Рис. 1. Спектры спонтанной эмиссии атома в поле Ti-Sa-лазера с пиковой интенсивностью 10^{13} Bt/cm², полученные в полуклассических (*a*) и квантовомеханических (*б*) расчетах. Сплошные кривые определяют спектр эмиссии в конце лазерного импульса, пунктирные — в момент времени, равный удвоенной длительности импульса. Числа около пиков задают их положение в электронвольтах

пульсов Ti–Sa-лазера (рис. 1) и его второй гармоники (рис. 2) с интенсивностью излучения 10^{13} BT/см², полученные в полуклассическом приближении и при строгих квантовомеханических расчетах. При этом расчеты спектров проводились как в конце лазерного импульса (в момент времени τ_p), так и в момент времени $\tau = 2\tau_p$. В рамках полуклассической теории вследствие того, что стационарные атомные состояния характеризуются определенной четностью, пики в спектре эмиссии возникают только на частоте нечетных гармоник: $\Omega = (2j + 1)\omega$ (j = 1, 3, 5 для Ті–Sа-лазера и j = 1,3 для его второй гармоники). Такие же пики существуют и в спектрах квантовомеханических расчетов, причем эти пики формируются только в течение лазерного импульса. Расчет вероятностей обнаружить атом в основном состоянии при испускании указанных квантов дал $|C_{n=1}^{(k\lambda)}|^2 \approx 1$. Это означает, что гармоника на частоте воздействующего излучения возникает в результате рэлеевского рассеяния

$$|n=1\rangle + \hbar\omega \rightarrow |n=1\rangle + \hbar\Omega \quad (\Omega=\omega),$$



Рис. 2. То же, что на рис. 1, но для импульса второй гармоники ${\rm Ti-Sa}$ -лазера

а высшие (третья и пятая) гармоники излучаются в процессах вида

 $|n=1\rangle + (2j+1)\hbar\omega \rightarrow |n=1\rangle + \hbar\Omega \quad (\Omega = (2j+1)\omega).$

Кроме того, и в квантовомеханических и в полуклассических расчетах возникают дополнительные линии (их энергии приблизительно равны 6.22, 9.92 и 11.01 эВ), формирующиеся преимущественно в послеимпульсном режиме в результате спонтанных переходов из состояний $|n = 2\rangle$, $|n = 4\rangle$ и $|n = 6\rangle$ в основное состояние. Для всех обсуждаемых переходов результаты полуклассических расчетов находятся в количественном согласии с результатами квантовомеханических расчетов.

Однако кроме указанных выше переходов в квантовомеханических расчетах наблюдается еще группа линий, возникающих преимущественно после окончания лазерного импульса. Среди последних (см. рис. 16) можно выделить серию $\hbar\omega_{k\lambda} = 2.45$, 4.31, 5.02, 5.36, 5.58 эВ, соответствующую переходам $|n=3,5,7,9,11\rangle \rightarrow |2\rangle$, а также линию $\hbar\omega_{k\lambda} =$ = 1.23 эВ, излучаемую на переходе $|n = 4\rangle \rightarrow$ \rightarrow |3). Для расчетов с $\hbar\omega$ = 3.1
эВ большая часть этих линий отсутствует. Отмеченные переходы идут в изначально ненаселенные состояния и, следовательно, противоречат полуклассической теории [26]. Кроме того, на рис. 2б можно выделить линию с энергией 2.32 эВ, возникающую в процессе лазерного воздействия, причем при испускании такого кванта атом преимущественно оказывается в состоянии $|n = 4\rangle$. Эта линия возникает как результат гиперкомбинационного рассеяния при переходе $|n=1\rangle + 4\hbar\omega \rightarrow |n=4\rangle + \hbar\omega_{k\lambda}$ и она также отсутствует в полуклассической теории.

Подводя итог сказанному, отметим, что в слабых полях, когда в процессе лазерного воздействия атом остается преимущественно в основном состоянии, несмотря на ряд неудач, полуклассическая теория все же удовлетворительно описывает спонтанное излучение атома.

Перейдем теперь к рассмотрению сильных полей, когда опустошение основного состояния атома в процессе лазерного воздействия оказывается существенным. На рис. 3 представлены спектры спонтанного излучения для значений интенсивности $4 \cdot 10^{13}$ и $8 \cdot 10^{13} \text{ BT/cm}^2$, полученные в квантовомеханических расчетах. При таких значениях интенсивности опустошение начального состояния уже существенно (см. табл. 2), при интенсивности 10^{14} Br/см² его остаточная населенность составляет приблизительно 0.16. Заметим прежде всего, что в спектре доминируют нечетные гармоники лазерного излучения, которые отчетливо видны на фоне тормозного континуума, а также набор линий, соответствующих переходам между состояниями дискретного спектра, преимущественно возникающих после окончания лазерного воздействия. При этом в области высоких гармоник возникает характерное плато, простирающееся до энергий $3.17U_p + I_i (U_p =$ $= e^2 \varepsilon_0^2 / 4m \omega^2$ — пондеромоторный потенциал, ε_0 амплитуда электрического поля волны), присущее полуклассической теории и наблюдаемое в экспериментах (см., например, недавний обзор [23] и цитируемую там литературу). Однако помимо нечетных гармоник, характерных для расчетов в рамках по-



Рис. 3. Спектры спонтанной эмиссии атома в поле Ti-Sa-лазера, полученные в квантовомеханических расчетах для интенсивностей излучения $4 \cdot 10^{13}$ (*a*) и $8 \cdot 10^{13}$ BT/cm² (*б*). Сплошные кривые определяют спектр эмиссии в конце лазерного импульса, пунктирные — в момент времени, равный удвоенной длительности импульса

луклассического подхода, с увеличением интенсивности излучения все более отчетливо проявляются четные гармоники частоты воздействующего излучения. Так, для значения лазерной интенсивности $4 \cdot 10^{13}$ BT/см² отчетливо видна вторая гармоника ($\hbar\Omega = 3.1$ эВ), в случае интенсивности $8 \cdot 10^{13}$ BT/см² помимо второй и четвертой гармоник видны и более высокие, вплоть до границы плато, хотя в этой области энергий доминирует вероятность испускания нечетных гармоник. Появление четных гармоник противоречит обычно рассматриваемому подходу, объясняющему излучение гармоник в процессе фоторекомбинации электрона в основное состояние атома при его перерассеянии на родительском ионе [30].

Прямое сопоставление данных, полученных в квантовомеханических и полуклассических расчетах для частоты Ti-Sa-лазера и интенсивности 10^{14} Вт/см², представлено на рис. 4. Как видно, четные гармоники в «полуклассическом» спектре отсутствуют, также отсутствует и тормозной континуум, вклад которого с ростом интенсивности лазерного излучения в спектр эмиссии возрастает. Отметим также уменьшение интенсивности в области плато, наблюдаемое как в полуклассических, так и в квантовомеханических расчетах. Однако сравнение показывает, что в полуклассических расчетах интенсивность высоких гармоник в несколько раз занижена по сравнению с точными расчетами. По нашему мнению это связано со следующими обстоятельствами. Наблюдаемое убывание интенсивности высоких

гармоник в квантовомеханических расчетах связано со смещением в сильных полях процесса фотоионизации атома на передний фронт лазерного импульса, в то время как при меньших интенсивностях лазерного поля ионизация происходит в течение всего импульса. В результате в сильных полях более существенным оказывается расплывание волнового пакета в континууме, в результате чего вероятность фоторекомбинационных спонтанных переходов убывает. С другой стороны, в полуклассической теории существенным оказывается и другой процесс, приводящий к уменьшению интенсивности гармоник, а именно, сильное опустошение основного состояния атома. Этот процесс неоднократно обсуждался в литературе (см., например, [31–34]), однако, очевидно, он является артефактом, возникающим как результат неприменимости полуклассической теории в условиях опустошения начального состояния [26].

Для выяснения механизма генерации четных гармоник нами была проанализирована вероятность $|C_{n=1}^{(k\lambda)}|^2$ обнаружить атом в основном состоянии $|n = 1\rangle$ после испускания спонтанного кванта, отвечающего *j*-й гармонике излучения ($\Omega = j\omega, j = 1, 2, 3, \ldots$). Соответствующие вероятности для рассматриваемых выше значений интенсивности и энергии кванта 1.55 эВ приведены на рис. 5. Как видно, для нечетных гармоник вклад переходов в основное состояние с испусканием кванта составляет от 75% до 10% в зависимости от интенсивности излучения. Для гармоник с номерами j = 1, 3, 5, 7 эти переходы идут через состояния дискретного спек-



Рис. 4. То же, что на рис. 3, но для интенсивности излучения $10^{14}\ \mathrm{Bt/cm^2}$



Рис. 5. Распределение вероятностей обнаружить атом в основном стационарном состоянии после испускания фотона *j*-й гармоники лазерного излучения для интенсивностей 4 · 10¹³ (●), 8 · 10¹³ (■), 10¹⁴ (▲) Вт/см². Стрелка разграничивает гармоники, испускаемые в свободно-связанных (I), и в связано-связанных (II) переходах

тра и представляют собой гиперрэлеевское рассеяние, для больших значений j переходы идут через промежуточные состояния в континууме и могут быть интерпретированы как фоторекомбинация электрона в процессе перерассеяния на родительском ионе. Остальной вклад определяется преимущественно тормозным излучением при переходах между различными состояниями континуума. При этом с ростом интенсивности излучения

вклад тормозного излучения возрастает и в области $\sim 10^{14} \mathrm{\ Br/cm^2}$ оказывается доминирующим. Что касается четных гармоник, то все они возникают только в процессе тормозного излучения. Это понятно: континуум, даже одномерный, является вырожденным, поэтому с одной и той же энергией существуют состояния как положительной, так и отрицательной четности. Поэтому из некоторого состояния в континууме, четность которого определяется числом поглощенных квантов, при тормозном эффекте возможно испускание спонтанных фотонов, соответствующих как четным, так и нечетным гармоникам. Особняком стоит четвертая гармоника лазерного излучения, соответствующая энергии кванта, приблизительно равной 6.2 эВ, что близко к частоте атомного перехода $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$. Поэтому излучение этой гармоники выделено среди других четных гармоник, в ее формирование помимо тормозных процессов вносит вклад также указанный переход.

Остановимся теперь на процессе генерации гармоник в сильных полях для частоты $\hbar\omega = 3.1$ эВ. Спектры спонтанной эмиссии для значения интенсивностей 10^{14} и $2 \cdot 10^{15}$ BT/см², полученные в результате строгих квантовомеханических расчетов, приведены на рис. 6. В случае умеренно сильных полей, когда остаточная населенность основного и возбужденного состояний составляет около 20% (см. табл. 2) помимо нечетных первой и третьей гармоник возникает большое количество линий переходов между различными состояниями дискретного спектра, причем эти линии формируются преимущественно после окончания лазерного воздействия. Другая ситуация возникает в области пре-



Рис. 6. Спектры спонтанной эмиссии атома в поле второй гармоники Ti-Sa-лазера, полученные в квантовомеханических расчетах для интенсивностей излучения 10^{14} (*a*), $2 \cdot 10^{15}$ (*б*) Вт/см². Сплошные кривые определяют спектр эмиссии в конце лазерного импульса, пунктирные — в момент времени, равный удвоенной длительности импульса

дельно сильных полей (≥ 10¹⁵ Вт/см²). Спектр излучения состоит из четных и нечетных гармоник и простирается до энергий порядка U_p, причем плато в спектре гармоник, наблюдающееся для частоты излучения Ti-Sa-лазера, отсутствует. Такой результат согласуется с данными экспериментов (см., например, обзор [35]), однако, на наш взгляд, требует дополнительного осмысления. Анализ природы возникновения гармоник показал, что все они возникают в результате тормозного эффекта в континууме, а вкладом процесса рекомбинации можно пренебречь. Такой результат кажется естественным, если учесть, что в области интенсивностей порядка 10¹⁵ Вт/см² динамика атома происходит в так называемом режиме Крамерса – Хеннебергера (KX), который характеризуется качанием квазисвободного электрона в поле электромагнитной волны [16]. Качание такого почти свободного электрона в области существования атомного потенциала фактически представляет собой нелинейные колебания, спектр которых и состоит из набора гармоник, кратных частоте воздействующего поля. В этой ситуации динамика атома в режиме КХ очень похожа на рассмотренный в работе [36] процесс рассеяния электрона на атоме в присутствии лазерного поля в условиях, когда колебательная скорость электрона в поле волны $e\varepsilon_0/m\omega$ существенно больше скорости его направленного движения v_T . В таком режиме рассеяния электрон многократно совершает возвратное движение и фактически осциллирует в



Рис. 7. Спектр спонтанного тормозного излучения при рассеянии электрона на атоме в присутствии поля электромагнитной волны (по данным работы [36])

области действия потенциала. Аналогичным образом эволюционирует и электронный волновой пакет в режиме фотоионизации. Спектр спонтанной эмиссии в таком режиме рассеяния $(e\varepsilon_0/m\omega \gg v_T)$ был получен в работе [36] и схематически представлен на рис. 7. Как видно, он состоит из набора как четных, так и нечетных гармоник воздействующего поля, возникающих на фоне тормозного континуума. При этом, согласно [36], число этих гармоник определяется условием $N \approx U_p/\hbar\omega$. Такая же ситуация реализуется и в наших расчетах: полученные нами спектры (см. рис. 6) аналогичны по своей структуре предсказанным в [36], а именно, на фоне тормозного континуума возникают пики с энергиями $j\hbar\omega$, $j = 1, 2, 3, \ldots$

Подводя итог обсуждению спонтанной эмиссии атомов в лазерных полях, на основании проведенного анализа можно утверждать, что в спектре излучения присутствуют, с одной стороны, гармоники лазерного излучения, как нечетные, так и четные, причем роль четных гармоник растет с увеличением лазерной интенсивности, с другой стороны, линии, возникающие при спонтанных переходах из заселяемых в процессе лазерного воздействия возбужденных состояний в нижележащие. Однако в экспериментах (см. обзор [23] и цитируемую в нем литературу) наблюдаются, как правило, только нечетные гармоники излучения. Такая картина, очевидно, не всегда соответствует нашим расчетам. Однако следует иметь в виду, что эксперименты, как правило, выполнены для Ti-Sa-лазера в умеренно сильных полях, когда в процессе лазерного воздействия остается преимущественно заселенным основное состояние, т.е. в условиях, когда полуклассическая теория качественно правильно описывает процесс генерации гармоник. Вместе с тем в недавних экспериментах [37] в спектре излучения плазмы, созданной мощным фемтосекундным импульсом Ti-Sa-лазера в аргоне, помимо «обычных» линий, возникающих как результат фоторекомбинации фотоэлектронов на родительском ионе, были обнаружены дополнительные линии, обусловленные эффективным возбуждением атомов в процессе лазерного воздействия с последующим их спонтанным распадом в нижележащие состояния либо возникающие в процессе, когда эти возбужденные атомы сначала ионизуются в лазерном поле, а затем рекомбинируют в основное состояние. На возможность излучения как четных, так и нечетных гармоник в процессе надпороговой ионизации атома также обращалось внимание в работе [38].

В данной работе рассматривалось спонтанное излучение единственного атома, в то время как в экспериментах наблюдается излучение от ансамбля атомов, расположенных в различных точках пространства в пределах лазерного пучка. В такой ситуации эффективность излучения на той или иной длине волны зависит еще и от выполнения условий фазового синхронизма. Можно показать, что эти условия гораздо лучше выполнены для гармоник лазерного излучения, не совпадающих ни с одной из частот атомных переходов, чем для излучения, возникающего при переходах между дискретными атомными уровнями вследствие резонансного характера зависимости показателя преломления среды от частоты вблизи частоты атомного перехода.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе рассмотрен квантовомеханический подход для описания спонтанного излучения атомов при воздействии на них высокоинтенсивных лазерных импульсов. Проанализированы спектры излучения атомной системы, возникающие при воздействии на нее фемтосекундных импульсов Ті-Sа-лазера и его второй гармоники, а также проведено сравнение полученных данных с результатами вычислений в полуклассическом приближении, которое широко используется в настоящее время. Обнаружено, что помимо нечетных гармоник, которые обычно анализируются в полуклассическом подходе, в сильных полях атом излучает также четные гармоники лазерного излучения. Проанализированы различные механизмы генерации как нечетных, так и четных гармоник. В частности показано, что четные гармоники излучаются в процессе тормозного излучения электрона при рассеянии на родительском ионе, в то время как в излучении нечетных гармоник существенный вклад вносит также рекомбинационное излучение. Проведено сопоставление полученных данных с результатами расчетов в рамках полуклассического подхода. Определены области его применимости. В частности показано, что в области сильных полей полуклассический подход даже на качественном уровне не может быть использован для описания спектра спонтанной эмиссии и генерации ВУФ-излучения в течение действия фемтосекундного лазерного импульса.

В заключение мы хотели бы отметить, что применяемый в данной работе подход к изучению динамики квантовой системы, взаимодействующей с электромагнитным вакуумом, может быть с успехом использован также для анализа процессов квантовой релаксации, например, при описании взаимодействия квантовой точки (нити) с окружающей ее кристаллической матрицей. В этом случае вместо взаимодействия с электромагнитным вакуумом квантовый объект будет взаимодействовать с совокупностью фононных мод, представляющих собой колебания кристаллической решетки [39, 40].

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты №№ 15-02-00373, 16-32-00123). Численные расчеты проводились на суперкомпьютерном комплексе МГУ «Ломоносов». Авторы выражают благодарность М. В. Федорову за интерес к работе и полезные замечания.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. J. L. Skinner, Science 328, 985 (2010).
- K. Meister, S. Ebbinghaus, Y. Xu et al., Proc. Nat. Acad. Sci. 110, 1617 (2013).
- L. V. Titova, A. K. Ayesheshim, A. Golubov et al., Sci. Rep. 3, 2363 (2013).
- N. K. Grady, J. E. Heyes, D. R. Chowdhury et al., Science 340, 1304 (2013).
- P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger et al., Science 292, 1689 (2001).
- F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. 81, 163 (2009).
- D. Popmintchev, C. Hernández-Garcia, F. Dollar et al., Science 350, 1225 (2015).
- F. Lépine, M. Ivanov, and M. J. Vrakking, Nature Photon. 8, 195 (2014).
- O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii et al., Nature 460, 972 (2009).
- S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk et al., Nature Phys. 7, 138 (2011).
- F. Calegari, D. Ayuso, A. Trabattoni et al., Science 346(6207), 336 (2014).
- M. Kre
 ß, T. Löffler, M. D. Thomson et al., Nature Phys. 2, 327 (2006).
- V. B. Gildenburg and N. V. Vvedenskii, Phys. Rev. Lett. 98, 245002 (2007).
- 14. А. В. Богацкая, А. М. Попов, Письма в ЖЭТФ 97, 453 (2013) [А. V. Bogatskaya and A. M. Popov, JETP Lett. 97, 388 (2013)].
- A. V. Bogatskaya and A. M. Popov, Laser Phys. Lett. 12, 045303 (2015).
- M. V. Fedorov, Atomic and Free Electrons in a Strong Light Field, World Sci., Singapore (1997).
- С. А. Ахманов, С. Ю. Никитин, Физическая оптика, Изд-во МГУ, Москва (1988).
- A. L'Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, J. Larsson, and C. G. Wahlström, Phys. Rev. A 48, R3433 (1993).
- 19. K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause, in SILAP III, ed. by B. Piraux, Plenum Press, New York (1993), p. 95–110.
- M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A 49, 2117 (1994).

- 21. W. Becker, S. Long, and J. K. McEver, Phys. Rev. A 50, 1540 (1994).
- V. T. Platonenko and V. V. Strelkov, Quant. Electr.
 25, 564 (1998).
- 23. В. В. Стрелков, В. Т. Платоненко, А. Ф. Стержантов, М. Ю. Рябикин, УФН 186, 449 (2016).
- Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова, Письма в ЖЭТФ 94, 559 (2011) [Е. А. Volkova, А. М. Ророv, and O. V. Tikhonova, JETP Lett. 94, 519 (2011)].
- 25. Ε. Α. ΒΟΛΚΟΒΑ, Α. Μ. ΠΟΠΟΒ, Ο. Β. ΤИΧΟΗΟΒΑ, ЖЭΤΦ 143, 433 (2013) [Ε. Α. Volkova, Α. Μ. Ρορον, and O. V. Tikhonova, JETP 116, 372 (2013)].
- 26. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, V. Yu. Kharin, and A. M. Popov, Laser Phys. Lett. 13, 045301 (2016).
- 27. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, Europhys. Lett. 116, 14003 (2016).
- 28. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, Laser Phys. Lett. 14, 055301 (2017).
- 29. J. Javanainen, J. Eberly, and Q. Su, Phys. Rev. A 38, 3430 (1988).
- 30. P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993).
- 31. A. Pukhov, S. Gordienko, and T. Baeva, Phys. Rev. Lett. 91, 173002 (2003).
- 32. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, Las. Phys. 17, 103 (2007).
- 33. M. C. Kohler, C. Ott, P. Raith, R. Heck, I. Schlegel, C. H. Keitel, and Th. Pfeifer, Phys. Rev. Lett. 105, 203902 (2010).
- 34. A. S. Emelina, M. Yu. Emelin, and M. Yu. Ryabikin, Quant. Electr. 44, 470 (2014).
- **35**. Р. А. Ганеев, УФН **179**, 65 (2013).
- 36. R. V. Karapetyan and M. V. Fedorov, Sov. Phys. JETP 48, 412 (1978).
- 37. S. Beaulieu, S. Camp, D. Descamps, A. Comby, V. Wanie, S. Petit, F. Légaré, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, F. Catoire, and Y. Mairesse, Phys. Rev. Lett. 117, 203001 (2016).
- 38. D.-Sh. Guo, J.-T. Zhang, Zh.-R. Sun et al., Front. Phys. 9, 69 (2014).
- **39**. А. Ф. Зиновьева, А. В. Ненашев, А. В. Двуреченский, Письма в ЖЭТФ **82**, 336 (2005).
- 40. С. М. Сеид-Рзаева, ФТП 47, 793 (2013).